# Matthias Karl

# Lichteinschluss in pyramidalen und säulenförmigen Mikroresonatoren



Institut für Angewandte Physik



Universität Karlsruhe (TH) Forschungsuniversität • gegründet 1825

# Lichteinschluss in pyramidalen und säulenförmigen Mikroresonatoren

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

genehmigte

### DISSERTATION

von

Dipl.-Phys. Matthias Karl aus Lahr/Schwarzwald

Tag der mi	ind	lichen Prüfung : 15.05.2009
Referent	:	Prof. Dr. H. Kalt
Korreferent	:	Prof. Dr. U. Lemmer
Betreuer	:	PrivDoz. Dr. M. Hetterich

# Inhaltsverzeichnis

1	Ein	führun	ıg	1
<b>2</b>	Gru	indlage	en optischer Halbleiterresonatoren	7
	2.1	Chara	kteristika eines Mikroresonators	7
		2.1.1	Q-Faktor	8
		2.1.2	Modenvolumen	9
	2.2	Licht-	Materie-Wechselwirkung im Mikroresonator	9
		2.2.1	Schwache Kopplung und Purcell-Effekt	10
		2.2.2	Starke Kopplung und Kavitätspolaritonen	11
	2.3	Übers	icht verschiedener Mikroresonatortypen und deren Anwendungen	13
	2.4	Räum	liche und spektrale Anpassung zwischen Emitter und Resonator	17
		2.4.1	Positionierung von Quantenpunkten	17
		2.4.2	Beeinflussung der Resonatormode	18
		2.4.3	Verschiebung der Quantenpunktemission	19
3	Pyr	amida	le Mikroresonatoren	<b>21</b>
	3.1	Motiv	ation pyramidaler Strukturen	21
	3.2	Nasscl	hemische Herstellung definierter Facetten	23
		3.2.1	Epitaktisches Schichtsystem	23
		3.2.2	Monte-Carlo-Simulation des Ätzprozesses	24
		3.2.3	Ätzmaske	26
		3.2.4	Materialabtrag durch den Ätzprozess	27
		3.2.5	Facettenwinkel	29
		3.2.6	Erzielte Geometrien	31
		3.2.7	Zusätzliche Facettenverspiegelung	35
	3.3	Optise	che Charakterisierung	38
		3.3.1	Nachweis optischer Moden	38
		3.3.2	Reproduzierbarkeit	42
		3.3.3	Modenstruktur und Einfluss der Pyramidengeometrie	43
		3.3.4	Deckelpyramiden mit erhöhtem Lichteinschluss	44
		3.3.5	Moden in überwachsenen Pyramidenstümpfen	46

	3.4	imulation resonanter Moden				
		4.1 Finite Differenzen in der Zeitdomäne				
		4.2 Simulation mit finiten Elementen				
	3.5	azit				
4	Säu	aförmige Resonatoren 63				
-	4.1	ealisierung und Untersuchung einzelner Säulen 65				
	1.1	11 Herstellung 65				
		12 Durchmesserabhängige Resonanzen 68				
		1.3  O-Faktor der fundamentalen Mode $72$				
	4.2	imulation einzelner Säulen in der Frequenzdomäne 74				
	1.2	2.1 Vergleich simulierter und experimenteller Daten $75$				
		2.2 Obergrenze des <i>Q</i> -Faktors 77				
		2.3 Einfluss des Durchmessers 78				
		2.4 Einfluss der Braggspiegel				
		2.5 Einfluss der Seitenwandverkippung				
		2.6 Modenvolumen				
	4.3	ekoppelte Resonatorsäulen				
		3.1 Modenaufspaltung bei gleichen Durchmessern				
		3.2 Koexistenz lokalisierter und delokalisierter Moden				
	4.4	eobachtung einzelner Quantenpunkte in Säulenresonatoren				
		4.1 Temperaturabhängige Quantenpunktemission				
		4.2 Anlegen elektrischer Spannungen				
	4.5	azit $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $101$				
5	Zusa	nmenfassung und Ausblick 103				
Б						
Pι	ıblika	ionen 109				
Li	Literaturverzeichnis					
Danksagung 1						

# Kapitel 1

# Einführung

Auf der Größenskala von Nanostrukturen erweisen sich die Gesetze der klassischen Physik teilweise als unzureichend: Beispielsweise kann in einem Halbleiterquantenpunkt ein Elektron auf so kleinem Raum eingeschlossen werden, dass dessen Ausdehnung nur noch in der Größenordnung der de-Broglie-Wellenlänge dieses Elektrons liegt; dabei treten Quantisierungen in der Energie zu Tage, welche nur mit Hilfe der Quantenmechanik zu verstehen sind. Gleichzeitig eröffnen Effekte, die auf solchen quantenmechanischen Zuständen beruhen, ganz neue Anwendungsmöglichkeiten. Zu den prominentesten Beispielen auf diesem Gebiet zählen die Quantenkryptografie [1], welche zur Übertragung geheimer Schlüssel bereits kommerziell genutzt wird, und der Quantencomputer, an dessen ungleich größeren Herausforderungen intensiv geforscht wird [2]. Dafür würde die technische Umsetzung eines Quantencomputers einen riesigen Sprung in der Effizienz zur Lösung von Problemen einer bestimmten Komplexitätsklasse in der Informatik bedeuten [3].

In einem Quantencomputer liegt die Information in Form von Quantenbits (kurz Qubits) vor, beschrieben durch die Superposition in quantenmechanischen Zweiniveausystemen. Als solche kommen mehrere Realisierungsmöglichkeiten in Betracht: Kernspins werden dabei genauso untersucht wie Ionen in Fallen [4, 5]. Recht neu sind in diesem Bereich supraleitende Schaltkreise, um Qubits zu definieren [6, 7]. Darüber hinaus verspricht der Spin eines Elektrons ein guter Ansatz zu sein: Wie schon zu Beginn angedeutet, kann ein Elektron im elektrischen Potenzial eines Halbleiterquantenpunkts gefangen werden. Gleichzeitig ist mit diesem Einschluss auch der Spin des Elektrons ausreichend vor destruktiven Einflüssen der Umgebung isoliert und weist so eine lange Kohärenzzeit auf [8, 9].

Der Ansatz, Elektronenspins in Halbleiterquantenpunkten als Qubits zu definieren, ist für die Motivation dieser Arbeit von besonderer Relevanz. An ein Quantengatter, welches zwei solcher Qubits miteinander verschränken kann und so erst die Möglichkeit der Verarbeitung von Qubits erlaubt, werden in einem Halbleitersystem die folgenden Anforderungen gestellt:

- 1. eine Möglichkeit zur Initialisierung der einzelnen Elektronenspins,
- 2. eine schaltbare Wechselwirkung zwischen den Spins und
- 3. ein Prozess zum Auslesen der Spinzustände.

Die Initialisierung einzelner Elektronenspins in einem Quantenpunkt ist sowohl schon optisch als auch elektrisch gelungen [10, 11]. Das Auslesen erfolgt dabei, indem der Polarisationsgrad des Lichts, das durch die Rekombination des spinpolarisierten Elektrons mit einem Loch im Quantenpunkt entsteht, gemessen wird. Um nun die Spins in unterschiedlichen Quantenpunkten miteinander wechselwirken zu lassen, werden hauptsächlich zwei Wege verfolgt:

Einerseits werden die Quantenpunkte bei der Herstellung so dicht aneinander positioniert, dass die Wellenfunktionen der Exzitonen darin überlappen und ein *Quantenpunktmolekül* bilden [12, 13, 14]. Der Überlapp der Wellenfunktionen, d.h. die Kopplung zwischen den Quantenpunkten, kann dabei über ein äußeres elektrisches Feld beeinflusst werden [15].

Der zweite Weg verfolgt die Idee, Spins in räumlich getrennten Quantenpunkten über eine optische Resonatormode kohärent zu koppeln [16]. Dazu müssen die Quantenpunkte in einem Mikroresonator eingebettet sein und eine starke Kopplung zur Resonatormode aufweisen [17]. Dieser Ansatz der räumlich getrennten Quantenpunkte hat mehrere Vorteile: Zum einen ist dieser Ansatz skalierbar, denn auf diese Weise könnten leicht mehrere Qubits aneinander gekoppelt werden. Außerdem ist die Positionierung der Qubit-Quantenpunkte in der Herstellung unkritischer, weil die Toleranz nicht auf der Größenskala der de-Broglie-Wellenlänge der Elektronen liegt, sondern vielmehr auf der Größenskala der optischen Resonanzwellenlänge. Darüber hinaus lassen sich die einzelnen Spin-Qubits bei einer inaktiven Kopplung einfach separat adressieren; und Einzel-Qubit-Operationen wurden bereits erfolgreich demonstriert [18].

Bei der Untersuchung der Kopplung zwischen Quantenpunkten und Moden optischer Mikroresonatoren landet man unweigerlich in der *Quantenoptik* [19]. Dabei tritt neben der *starken* Kopplung, welche die oben erwähnte kohärente Verknüpfung der Spinzustände erlauben würde, auch das Phänomen der *schwachen* Kopplung auf. Letzteres äußert sich im Purcell-Effekt [20], der die Änderung der spontanen Emission eines Emitters in der Umgebung einer modifizierten optischen Zustandsdichte beschreibt – nutzbar für Einzelphotonenquellen oder schwellenlose Nanolaser [21, 22]. Die vorliegende Arbeit ist eingebettet in das Projekt A2 "Spinoptoelektronik" des DFG-Forschungszentrums Center for Functional Nanostructures (CFN). In diesem Rahmen gelang bereits die oben berichtete elektrische Spininjektion in einzelne Quantenpunkte [23]. Parallel dazu werden photonische Strukturen untersucht, die darauf abzielen, zukünftig räumlich getrennte Quantenpunkte nach dem erwähnten Konzept von Imamoğlu et al. über eine optische Mode eines Mikroresonators aneinander koppeln zu können. Zwei verschiedene Mikroresonatortypen werden unter diesem Gesichtspunkt untersucht: Säulenresonatoren und neuartige pyramidale Resonatoren.

#### Arbeiten anderer Gruppen auf diesem Gebiet

Die Pyramidenform ist bei Mikroresonatoren kaum erforscht. Im Jahr 1999 gelang Suemune et al. zum ersten Mal, ZnS-Pyramiden auf maskiertem GaAs-Substrat epitaktisch selbstorganisiert zu wachsen und optische Moden darin nachzuweisen [24]. Nachdem der GaAs-Sockel unter den quadratischen, 800 nm langen ZnS-Pyramiden durch einen Braggspiegel aus ZnSe/MgS ersetzt wurde, berichtete die gleiche Gruppe einen Qualitätsfaktor (*Q*-Faktor, welcher ein Maß für die Güte des Lichteinschlusses ist) von knapp 5.000 [25]. Etwa zur gleichen Zeit gab es weitere Versuche, ebenfalls selbstorganisierte hexagonale GaN-Pyramiden und quadratische GaAs-Stümpfe mit dem Ziel eines Mikroresonators herzustellen [26, 27].

Unabhängig davon wurde in einem anderen Kontext von Cambel et al. beschrieben, wie mit einem nasschemischen Ätzverfahren basierend auf einer phosphorsäurehaltigen Lösung durch den Einsatz einer zusätzlichen Opferschicht Facetten in kristallinem GaAs erzeugt werden können [28].

Im Gegensatz zu den Pyramiden gibt es bei den Resonatorsäulen einige Gruppen, die sich auch aktuell mit diesem Mikroresonatortyp beschäftigen. Bereits im Jahre 1996 gab es von Gérard et al. eine Veröffentlichung, in der gemessene optische Moden in säulenförmigen Braggresonatoren in guter Übereinstimmung mit Berechnungen sind. Mittlerweile konnten Reitzenstein et al. Säulen herstellen, deren Grundmoden Q-Faktoren über 150.000 besitzen [29]. Aber auch schon zuvor konnte an 1,5  $\mu$ m dicken Resonatorsäulen mit einem Q-Faktor von nur 8.000 die starke Kopplung zwischen der optischen Mode und einem einzelnen Quantenpunkt darin von Reithmaier et al. nachgewiesen werden [30]. Für diesen Nachweis wird die Emissionswellenlänge des Quantenpunkts relativ zur Resonatormode in der Regel über das unterschiedliche Temperaturverhalten verschoben. Im vergangenen Jahr ist es Kistner et al. erstmalig gelungen, die Quantenpunktemission unter Ausnutzung des Stark-Effekts, d.h. durch Anlegen eines elektrischen Feldes, zu verschieben und damit die starke Kopplung in der Säule nachzuweisen [31].

Zur Kopplung von räumlich getrennten Quantenpunkten über das Lichtfeld einer Resonatormode gibt es bislang nur theoretische Arbeiten zur Machbarkeit und Abstandsabhängigkeit in planaren Kavitäten [16, 17, 32]. Die Kopplung von Halbleiter-Mikroresonatoren wurde dagegen schon 1998 von Bayer et al. in Form von Resonatorblöcken realisiert; bekannt wurde sie unter dem Begriff der "photonischen Moleküle" [33]. Im Hinblick auf die optische Quantenpunktkopplung wurde experimentell bislang nur über die Kopplung von Moden zwischen zwei Mikroscheibchenresonatoren berichtet [34].

#### Zielsetzung und Gliederung dieser Arbeit

Für das Fernziel, räumlich getrennte Quantenpunkte kohärent über das elektromagnetische Feld in einem Mikroresonator kontrolliert aneinander koppeln zu können, sollen notwendige Vorarbeiten geleistet werden: Dazu werden zwei verschiedene Resonatortypen – *Mikropyramiden* und *Mikrosäulen* – sowohl experimentell als auch in Simulationen detailliert untersucht, um ihre Eignung für diesen Zweck zu überprüfen.

Als Einstieg soll Kapitel 2 die Grundlagen optischer Halbleiterresonatoren vermitteln. Neben den fundamentalen Eigenschaften von Mikroresonatoren und der Licht-Materie-Wechselwirkung werden eine Übersicht zu verschiedenen Halbleiterresonatortypen und Einblicke in die Möglichkeiten der spektralen Abstimmung zwischen optischer Mode und dem Quantenpunkt als Emitter gegeben.

Die Diskussion der beiden Resonatorformen folgt anschließend in zwei umfassenden Kapiteln:

Im Unterschied zu selbstorganisiert gewachsenen Pyramiden anderer Gruppen werden die hier betrachteten Pyramiden in Kapitel 3 mit einem nasschemischen Ätzverfahren geformt. Die Vorzüge dieser Methode, die sich in Bezug auf die Kontrolle der Facettenwinkel offenbart, und die Weiterentwicklungen des Herstellungsverfahrens werden nach einer vorangestellten Motivation für die pyramidale Form in diesem Kapitel erläutert. Temperaturabhängige Photolumineszenzmessungen der eingebetteten Quantenpunktensembles beweisen erstmals die Existenz optischer Moden in den auf GaAs/AlAs Braggspiegeln stehenden GaAs-Pyramiden. Anschließend decken Simulationsergebnisse an vergleichbaren Kegeln die Modenstruktur und die geometrischen Einflüsse auf den Q-Faktor der Moden auf.

Das Kapitel ist untergliedert in Herstellung, optische Messung und Simulation. Zusätzlich zur eben beschriebenen Pyramide auf dem Braggspiegel werden jedoch noch weitere pyramidale Mikroresonatoren, wie freistehende Pyramiden, vertikal oder lateral gekoppelte Pyramiden und Pyramidenstümpfe in einer Kombination von epitaktischem Wachstum und nasschemischem Ätzen gefertigt. Durch Lumineszenz detektierte Moden übersteigen darin sogar bei weitem die Güte der Moden in der einfachen GaAs-Pyramide auf einem Braggspiegel.

Die bislang noch recht unerforschten Mikropyramiden weisen somit ein hohes Potenzial auf: Möglichkeiten zur weiteren Optimierung werden diskutiert, und alternative Anwendungen auf dem Gebiet der Einzelphotonenquellen werden aufgezeigt.

Kapitel 4 ist ausschließlich den Säulenresonatoren gewidmet und beschränkt sich zunächst auf einzelne Säulen. Es wird dargelegt, wie sie mit fokussiertem Ionenstrahlätzen hergestellt und auf die gleiche Weise wie die Pyramiden optisch analysiert werden. Im Anschluss liefert eine Simulation, deren Zuverlässigkeit sich im Vergleich mit experimentellen Messungen hervorragend bestätigt, umfangreiche Erkenntnisse über diverse Einflüsse der Geometrie und der Absorption auf die Güte der Grundmode.

Aufbauend auf den Ergebnissen der einzelnen Säulen werden danach gekoppelte Säulen so entwickelt, dass gleichzeitig lokalisierte und delokalisierte Moden in einer Struktur vorliegen. Sie wären sowohl für die Kopplung räumlich getrennter Quantenpunkte als auch zu deren separater Adressierung einsetzbar.

Jenseits der Grundcharakterisierung der Mikroresonatoren durch die Messung von Quantenpunktensembles wird im letzten Teil geschildert, wie einzelne Quantenpunkte in den Spektren der Säulenmoden detektiert werden. Dabei ist zu beobachten, wie mit der Temperatur der Probe oder über elektrische Kontakte die Quantenpunktemission gezielt verschoben werden kann.

Im abschließenden Kapitel 5 werden die wichtigsten Ergebnisse der vorliegenden Arbeit noch einmal herausgehoben. Außerdem beinhaltet es einen Ausblick auf weiterführende Fragestellungen.

# Kapitel 2

# Grundlagen optischer Halbleiterresonatoren

In diesem Kapitel sollen grundlegende Eigenschaften optischer Resonatoren dargelegt werden. Es wird auf die Fragen eingegangen, welche Eigenschaften zwischen verschiedenen Resonatorarten vergleichbar sind und welche Anwendungen sich realisieren lassen. Im Detail wird das Regime schwacher und starker Wechselwirkung zwischen Resonator und darin befindlichen Emittern erläutert. Der letzte Teil dieses Kapitels gibt außerdem einen Überblick über die Möglichkeiten der spektralen Anpassung sowohl von Resonatormoden als auch von Emittern.

### 2.1 Charakteristika eines Mikroresonators

Moden in Mikroresonatoren besitzen zwei wesentliche Eigenschaften, die auch Resonatoren unterschiedlicher Geometrien vergleichbar machen:

- Der Qualitätsfaktor (Q-Faktor) gibt die Güte des optischen Einschlusses an.
- Das *Modenvolumen* beschreibt den Raum, auf welchen sich die Intensität der Mode konzentriert.

Beide Eigenschaften beziehen sich jeweils nur auf eine einzelne Mode. Typischerweise existiert aber eine Vielzahl an Moden, so dass mit einem speziellen Mikroresonator oft nur die günstigsten Moden assoziiert werden.

#### 2.1.1 *Q*-Faktor

Das elektromagnetische Feld einer Mode im Resonator schwingt zeitharmonisch entsprechend seiner Energie  $\hbar\omega_0$  mit der Frequenz  $\omega_0$ . Nach einer kurzen Anregung fällt die Amplitude dieser Schwingung auf Grund endlicher Verluste exponentiell ab [35], so dass sich das Feld **E** am Ort **r** zur Zeit *t* beschreiben lässt als

$$\mathbf{E}(\mathbf{r},t) = \mathbf{E}_0(\mathbf{r}) \exp\left(i\omega_0 t - \frac{t}{2\tau}\right).$$
(2.1)

Mit der Lebensdauer  $\tau$  sind sämtliche Verluste abgedeckt, seien es Reflexionsverluste, Absorption oder Streuung. Ein Maß für den optischen Einschluss dieser bestimmten Resonatormode ist der *Q*-Faktor. Er wird auch als Güte bezeichnet und ist allgemein definiert als

$$Q = \frac{2\pi \cdot \text{gespeicherte Energie}}{\text{Energieverlust pro Schwingungsdauer}}.$$
 (2.2)

Die gespeicherte Energie umfasst dabei die gesamte elektromagnetische Energie in der Mode des Resonators. Die Energieverluste beziehen sich auf die optische Schwingungsdauer, d.h. die Zeit zwischen zwei Maxima im zeitharmonisch elektromagnetischen Feld (Schwingungsdauer  $2\pi/\omega_0$ ).

Der einfachste Resonator besteht aus zwei gegenüber liegenden parallelen Spiegeln mit Verlusten ausschließlich an den beiden Reflektoren. An diesem einfachen Modell wird bereits deutlich, dass eine Verdoppelung der Resonatorlänge zu einer Verdoppelung des Q-Faktors führen muss. Denn die gespeicherte Energie der räumlich ausgedehnten Mode verdoppelt sich ebenfalls, während die Verluste pro Schwingungsdauer unverändert bleiben<sup>1</sup>.

Doch welcher Zusammenhang besteht zwischen dem Q-Faktor und der Lebensdauer  $\tau$ ? Die Fouriertransformation von Gl. 2.1 beschreibt die spektrale Intensitätsverteilung  $I(\omega)$ 

$$I(\omega) = \frac{I_0}{4(\omega - \omega_0)^2 \tau^2 + 1}$$
(2.3)

in Form einer Lorentzkurve. Die Breite dieser Kurve  $\Delta \omega$  (ganze Breite auf halber Höhe) ist bestimmt durch die Lebensdauer  $\tau$ , woraus sich der *Q*-Faktor letztlich über die Definition in Gl. 2.2 ableiten lässt:

$$Q = \frac{\omega_0}{\Delta\omega} = \omega_0 \tau \approx \frac{\Delta\lambda}{\lambda}.$$
 (2.4)

Experimentell kann der Q-Faktor somit in einem Spektrum durch das Anpassen einer Lorentzkurve bestimmt werden. Lediglich für Mikroresonatoren mit hohem

 $<sup>^1{\</sup>rm Im}$ Bild eines hin- und herlaufenden Lichtpakets bleibt die Gesamtenergie konstant, während die gemittelten Verluste pro Schwingungsdauer sich halbieren.

Purcell-Faktor (siehe Abschnitt 2.2.1) beschreibt der so ermittelte Q-Faktor eine Untergrenze; der tatsächliche Wert könnte aber höher liegen [36].

#### 2.1.2 Modenvolumen

Am Beispiel der doppelten Resonatorlänge zeigt sich, dass nicht nur der Q-Faktor zunimmt, sondern offensichtlich auch das Modenvolumen vergrößert wird. Wie sich in Unterkapitel 2.2 herausstellen wird, ist jedoch in den meisten Fällen ein großer Q-Faktor und gleichzeitig ein kleines Modenvolumen wünschenswert.

Im Allgemeinen klingen die elektromagnetischen Felder einer Resonatormode nicht nur zeitlich, sondern auch räumlich exponentiell ab, beispielsweise in das umgebende Material mit geringerem Brechungsindex oder in einem Braggspiegel. Definiert ist das Modenvolumen  $V_{\text{Mode}}$  deshalb in folgender Form [37]:

$$V_{\text{Mode}} = \frac{\int \epsilon(\mathbf{r}) |\mathbf{E}(\mathbf{r})|^2 d^3 r}{\epsilon(\mathbf{r}_{\text{max}}) |\mathbf{E}_{\text{max}}(\mathbf{r}_{\text{max}})|^2}.$$
(2.5)

Das Integral summiert das Betragsquadrat des elektrischen Feldes **E** der Mode am Ort **r**, multipliziert mit der jeweiligen Permittivität  $\epsilon(\mathbf{r})$ , über den gesamten Raum auf. Das Modenvolumen entspricht dann dem Integral, welches auf das Maximum der Energiedichte  $\epsilon |\mathbf{E}_{\text{max}}|^2$  an der Stelle  $\mathbf{r}_{\text{max}}$  normiert wird. Um die Werte verschiedener Resonatoren vergleichen zu können, wird das Volumen gewöhnlich in Einheiten der Resonanzwellenlänge  $\lambda$  im Material mit Brechungsindex *n* angegeben, also  $(\lambda/n)^3$ .

# 2.2 Licht-Materie-Wechselwirkung im Mikroresonator

In der allgemeinsten Form kann der Übergang eines Emitters (hier ausschließlich als Zwei-Niveau-System betrachtet) von einem Anfangszustand  $|i\rangle$  zu einem Endzustand  $|f\rangle$  mit *Fermis Goldener Regel* beschrieben werden [38]. Dabei ist die Übergangsrate  $\Gamma$  gegeben durch

$$\Gamma = \frac{2\pi}{\hbar} \rho(\omega) |\langle f | \mathbf{d} \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}) | i \rangle|^2.$$
(2.6)

 $\mathbf{E}(\mathbf{r})$  ist das elektrische Feld am Ort des Emitters, **d** das Dipolmoment. Entscheidend ist nun, dass die optische Zustandsdichte  $\rho(\omega)$  in einem Mikroresonator im Vergleich zu einem homogenen Medium stark modifiziert sein kann. Dadurch induziert die Modendichte eine abgewandelte Licht-Materie-Wechselwirkung.

Im Fall schwacher Koppelung äußert sich das darin, dass die spontane Emission im Resonanzfall mit der Mode verstärkt wird oder bei Nichtübereinstimmung mit der Resonatormode unterdrückt werden kann. Dieses Phänomen ist als *Purcell-Effekt* bekannt [20]. Im Falle der starken Kopplung wird die spontane Emission sogar zu einem reversiblen Prozess, wobei sich ein Polaritonzustand ausbildet.

#### 2.2.1 Schwache Kopplung und Purcell-Effekt

Im klassischen Sinne gibt es im Grundzustand des Vakuums keine elektrischen Felder. Würde man dennoch versuchen Fermis Goldene Regel (Gl. 2.6) aus der Quantenmechanik auf einen angeregten Emitter im klassichen Vakuum anzuwenden, so könnte dieser Emitter seine Energie nicht abstrahlen, da ein elektrisches Feld  $\mathbf{E}(\mathbf{r})$  zur Ankopplung fehlt. Erst ein treibendes E-Feld ermöglicht in dieser Betrachtung den Übergang, was durch die *stimulierte* Emission und Absorption zu Rabi-Oszillationen führt, d.h. der Emitter als Zweiniveausystem ist abwechselnd periodisch im Grundzustand oder dem angeregten Zustand besetzt.

Zur Erklärung, wie ein angeregter Emitter ohne treibendes E-Feld trotzdem abstrahlt, ist eine komplett quantenmechanische Herangehensweise unter Berücksichtigung von Fluktuationen im elektromagnetischen Vakuum notwendig [39]: Die Weisskopf-Wigner Theorie beschreibt diese erforderliche Wechselwirkung eines Emitters (Energie  $\hbar\omega_{\rm Em}$ ) mit dem elektromagnetischen Vakuum, welches aus einem Kontinuum an verschiedenen Moden besteht. In einem unendlich ausgedehnten, homogenen Medium kann unter Berücksichtigung dieser elektromagnetischen Vakuumzustände die *spontane* Emissionsrate  $\Gamma_0$  mit Hilfe von Gl. 2.6 zu

$$\Gamma_0 = \frac{\omega_{\rm Em}^3 |\mathbf{d}|^2}{3\pi\epsilon_0 \hbar c_0^3}.$$
(2.7)

hergeleitet werden.  $c_0$  ist die Lichtgeschwindigkeit im Vakuum. In einem homogenen Medium mit Brechungsindex n vergrößert sich die Rate aus Gl. 2.7 zusätzlich um diesen Faktor n [40].

In einem Mikroresonator weicht die optische Zustandsdichte von der des elektromagnetischen Vakuums ab. Die Zustände, in welche der eingebettete Emitter seine Anregung abgeben kann, werden vom Mikroresonator aufgeprägt. Die spontane Emissionsrate im Mikroresonator  $\Gamma_{\text{Res}}$  wird durch eine *m*-fach entartete Resonatormode der Energie  $\hbar\omega_{\text{Res}} = hc/\lambda_{\text{Res}}$  modifiziert [21, 40]:

$$\Gamma_{\text{Res}} = m \cdot \underbrace{\frac{1}{\underbrace{1 + 4Q^2(\lambda_{\text{Em}}/\lambda_{\text{Res}} - 1)^2}_{\text{spektrale Verstimmung}}} \cdot \underbrace{\frac{|\mathbf{E}(\mathbf{r}_{\text{Em}})|^2}{|\mathbf{E}(\mathbf{r}_{\text{max}})|^2} \cos^2\theta}_{\text{räumliche Verstimmung}} \cdot F_{\text{P}} \cdot \Gamma_0 + \Gamma_{\text{Leck}}.$$
 (2.8)

Dieser Ausdruck beinhaltet im ersten Bruch eine spektrale Verstimmung zwischen Emitter  $\lambda_{\rm Em}$  und Resonatormode  $\lambda_{\rm Res}$  mit entsprechendem Q-Faktor. Außerdem gilt Gl. 2.8 auch für den Fall, dass das E-Feld der Mode am Ort des Emitters  $\mathbf{E}(\mathbf{r}_{\rm Em})$  nicht mit dem Feldmaximum der Mode  $\mathbf{E}(\mathbf{r}_{\rm max})$  übereinstimmt, bzw. ein Winkel  $\theta \neq 0$  zwischen dem Dipolmoment des Emitters und der Richtung des E-Felds  $\mathbf{E}(\mathbf{r}_{\rm Em})$  besteht.  $\Gamma_0$  kann aus Gl. 2.7 entnommen werden,  $\Gamma_{\rm Leck}$  umfasst Leckmoden, in die der Emitter ebenfalls abstrahlen kann.

Im idealen Fall energetischer und räumlicher Ubereinstimmung zwischen einer einzelnen Mode (m = 1) und dem Emitter sowie keinerlei Leckmoden reduziert sich Gl. 2.8 auf  $\Gamma_{\text{Res}} = F_{\text{P}}\Gamma_{0}$ . Der Proportionalitätsfaktor  $F_{\text{P}}$ , auch *Purcell*-Faktor genannt, lässt sich mit den beiden Eigenschaften der Resonatormode *Q*-Faktor und Modenvolumen  $V_{\text{Mode}}$  (siehe Unterkapitel 2.1) berechnen:

$$F_{\rm P} = \frac{3}{4\pi} \left(\frac{\lambda_{\rm Res}}{n}\right)^3 \frac{Q}{V_{\rm Mode}}.$$
(2.9)

Der gesamte Effekt der verstärkten oder unterdrückten spontanen Emission wird als *Purcell-Effekt* bezeichnet. Im Vergleich zum homogenen Medium wurden für Quantenpunkte in einem Mikroresonator bereits Erhöhungen der spontanen Emissionsrate um einen Faktor acht experimentell bestätigt [21]. Umgekehrt ist auch die Unterdrückung der spontanen Emission durch Einbettung des Emitters in eine elektromagnetische Bandlücke einer periodischen Struktur möglich [41].

#### 2.2.2 Starke Kopplung und Kavitätspolaritonen

In einem Resonator sehr hoher Güte kann der im vorherigen Abschnitt 2.2.1 beschriebene irreversible Prozess umkehrbar werden. Das geschieht, wenn der Emitter seine Energie in Form von Licht abstrahlt, dieses Licht aber in der Resonatormode so lange verweilt, bis es vom Emitter erneut absorbiert wird. In diesem Fall, der als starke Kopplung bezeichnet wird, sind der Zustand des Emitters und der Zustand des Photons im Resonator miteinander verschränkt. Diese Verschränkung kann wiederum als Quasiteilchen aufgefasst werden, welches als Kavitätspolariton bekannt ist [42]. Im Fall dieser starken Kopplung ist die Entartung der ursprünglichen Zustände, d.h. dem angeregten Emitter ohne Photon in der Resonatormode  $|e, n\rangle$  (angeregter Emitter  $|e\rangle$ , *n* Anzahl der Photonen im Resonator, hier: n = 0) und dem Emitter im Grundzustand mit einem Photon in der Resonatormode  $|g, n + 1\rangle$ , aufgehoben.

Ohne jegliche Verlustkanäle des Photons bzw. des angeregten Emitters kann die Wechselwirkung bei starker Kopplung mit dem Jaynes-Cummings Hamiltonoperator beschrieben werden [40, 43]. Daraus ergibt sich für die Energieniveaus der verschränkten Zustände  $|e, n\rangle \pm |g, n+1\rangle$  eine Aufspaltung der Größe  $2\hbar g\sqrt{n+1}$ , je

nach Anzahl n der Photonen im Resonator. Die Frequenz 2g spiegelt gerade die Rabi-Oszillation zwischen den beiden Zuständen wider. Der Kopplungsparameter g

$$g = \sqrt{\frac{e^2 f}{4\epsilon_{\rm r}\epsilon_0 m_0 V_{\rm Mode}}} \tag{2.10}$$

setzt sich zusammen aus der Elementarladung e, der Elektronenmasse  $m_0$  sowie der Oszillatorstärke f des Emitters und dem Modenvolumen  $V_{\text{Mode}}$  [30]. Die Gesamtheit der resultierenden Energieniveaus in diesem quantenmechanisch gekoppelten System wird als Jaynes-Cummings-Leiter bezeichnet [44].

Im realen System kann diese kohärente Entwicklung nur auftreten, falls der Emitter und das Photon auf einer längeren Zeitskala als die Periodendauer der Rabi-Oszillation abklingen [40]. Außerdem wird für eine endliche spektrale Halbwertsbreite des Emitters ( $\Delta \omega_{\rm Em}$ ) und der Resonatormode ( $\Delta \omega_{\rm Res}$ ) die energetische Aufspaltung  $\Delta E$  kleiner [45].

$$\Delta E = 2\hbar \sqrt{g^2 - \left(\frac{\Delta\omega_{\rm Em} - \Delta\omega_{\rm Res}}{4}\right)^2} \tag{2.11}$$

Für Halbleitermikroresonatorsysteme bei tiefen Temperaturen spielt die Dekohärenz des Exzitons eine untergeordnete Rolle,  $\Delta \omega_{\rm Em} \ll \Delta \omega_{\rm Res}$ . Somit muss für starke Kopplung gemäß Gl. 2.11 lediglich die Bedingung  $g > \Delta \omega_{\rm Res}/4$  erfüllt sein [40]; andernfalls ist keine Energieaufspaltung zu beobachten und die komplexen Frequenzen  $\tilde{\omega}_{\pm}$  des gekoppelten Systems werden durch einen zusätzlichen Imaginärteil ergänzt

$$\tilde{\omega}_{\pm} = \omega \pm i \sqrt{\left(\frac{\Delta\omega_{\text{Res}}}{4}\right)^2 - g^2} - \frac{i}{4}\omega_{\text{Res}}, \qquad (2.12)$$

was für  $g < \Delta \omega_{\text{Res}}/4$  wiederum der schwachen Kopplung zuzuschreiben ist.

Zur Realisierung stark koppelnder Systeme muss der Kopplungsparameter g (Gl. 2.10) möglichst groß sein. Einfluss beim Design kann an dieser Stelle nur auf die Oszillatorstärke f und das Modenvolumen  $V_{\text{Mode}}$  genommen werden. Außerdem sollte die Mode des Resonators sehr scharf sein, d.h. miminales  $\Delta \omega_{\text{Res}}$ , was einer Optimierung des Q-Faktors entspricht (vgl. Gl. 2.4). Insgesamt müssen für ein stark koppelndes System das Verhältnis  $Q^2/V_{\text{Mode}}$  und f maximal sein [30].

In einem Festkörpersystem wurde erstmals im Jahr 1992 die energetische Aufspaltung der starken Kopplung für einen Quantentrog in einem Braggresonator experimentell bestätigt [46]. Quantentröge besitzen eine größere Oszillatorstärke f als einzelne Quantenpunkte [45]. Und so wurde erst 2004 die erste starke Kopplung eines einzelnen Quantenpunkts mit der optischen Mode eines optimierten Mikroresonators demonstriert [30, 47]. Die so gemessenen Vakuum-Rabi-Aufspaltungen entsprechen der ersten Sprosse der Jaynes-Cummings Leiter. Die zweite Sprosse wurde bislang nur in supraleitenden Systemen gefunden [43].

# 2.3 Übersicht verschiedener Mikroresonatortypen und deren Anwendungen

Um einen bestimmten Kopplungszustand zu beobachten, muss der Mikroresonator optimiert werden. So wurde im vorherigen Unterkapitel deutlich, dass auf der Seite des Resonators das Verhältnis  $Q/V_{\text{Mode}}$  (schwache Kopplung) bzw.  $Q^2/V_{\text{Mode}}$  (starke Kopplung) maximiert werden muss. Generell lässt sich der Lichteinschluss in Halbleitermikrostrukturen auf zwei Arten erreichen:

- $\bullet$ durch Totalreflexion an Grenzschichten zum optisch dünneren Medium und
- durch **Reflexion an periodischen Strukturen** wie bei einem planaren Braggspiegel in einer Dimension bzw. bei einem photonischen Kristall in zwei oder gar drei Dimensionen.

Die bedeutendsten Resonatortypen beruhen ebenfalls auf diesen beiden Prinzipien und nutzen sie meist in Kombination. Am intensivsten wurden bislang die drei Geometrien Säulenresonatoren, Defekte in photonischen Kristallen sowie Whispering-Gallery-Resonatoren in Form von Kugeln, Scheibchen oder Toroiden untersucht [48]. In Bezug auf die starke Kopplung findet sich in [49] eine Übersicht zu den Kopplungsparametern g für verschiedene Resonatortypen.

#### Säulenresonatoren

Der Säulenresonator ist ein Hauptgegenstand der vorliegenden Arbeit, weshalb ihm auch ein eigenes Kapitel (siehe Kapitel 4) gewidmet ist. Zur Vollständigkeit seien aber schon an dieser Stelle die Hauptmerkmale und die Arbeiten anderer Gruppen erwähnt.

Der Lichteinschluss im Säulenresonator (vgl. Abbildung 2.1(a)) erfolgt in axialer Richtung durch Braggspiegel, die sich durch viele Schichtpaare mit möglichst großem Brechungsindexkontrast und einer Dicke von jeweils einem Viertel der Designwellenlänge pro Einzelschicht auszeichnen [50]. Die eigentliche Resonatorschicht liegt zwischen dem unteren und dem oberen Braggspiegel mit einer Schichtdicke, die einem Vielfachen der halben Designwellenlänge im Material entspricht – typischerweise einer Wellenlänge. Lateral wird das Licht durch den Brechungsindexkontrast zur Umgebung eingesperrt, was wie bei einem Wellenleiter durch Totalreflexion funktioniert.

Besondere Bedeutung hat der Säulenresonator durch die Anwendung als vertikalemittierender Laser erlangt (siehe z.B. [50, 51]), welcher sich durch eine extrem niedrige Laserschwelle auszeichnet [52]. Zusätzlich macht man sich zu Nutze, dass die Abstrahlung der Lumineszenz aus der Säule heraus sehr stark gerichtet ist und das Licht dadurch die Säule unter fast beliebig kleinen Winkeln relativ zur Symmetrieachse verlässt (je nach Durchmesser, Material und Mode). Diese Eigenschaft kommt einer sehr effizienten Lichtauskopplung bei der Anwendung als Einzelphotonenquelle zugute, deren Licht durch elliptische Säulengrundflächen sogar direkt polarisiert werden kann [53]. Die Geometrie der Abstrahlung und der Purcell-Effekt spielen hier zusammen, so dass sich insgesamt eine sehr hohe Effizienz bei der Auskopplung der spontanen Emission ergibt [37].

Monolithische Halbleiter-Braggspiegel können inzwischen im ganzen Spektralbereich vom mittleren Infrarot bis ins nahe Ultraviolett hergestellt werden [50, 54]. Je größer der Brechungsindexkontrast zwischen den beiden Materialien ist, desto einfacher lässt sich eine hohe Reflektivität auf breitem Spektralbereich mit möglichst wenigen Braggspiegelpaaren erzielen. Gleichzeitig darf für ein gutes epitaktisches Wachstum die Gitterfehlanpassung zwischen den aufeinanderwachsenden Materialien nicht zu groß sein. Um beide Bedingungen zu erfüllen, behilft man sich mit ternären und quaternären Verbindungshalbleitern oder dem Wachstum von Übergittern, die entsprechend aufwändiger in der Herstellung sind [55].

Mit einer Gitterfehlanpassung im Promillebereich und einem Brechungsindex von 3,6 bzw. 2,9 sind Galliumarsenid und Aluminuiumarsenid eine sehr attraktive Kombination bei der Herstellung mit Molekularstrahlepitaxie [50, 56]. Um aus der planaren Struktur heraus die Säulen zu formen, gibt es zwei Ansätze: Reaktives Ionenätzen benötigt plasmaresistente Masken, dafür kann mit den chemischen Ätzbedingungen die Steilheit und Krümmung der Seitenwand beeinflusst werden [57]. Eine Herstellung mittels fokussiertem Ionenstrahl unterliegt zunächst der rein physikalischen Abtragung und ist damit in erster Linie materialunabhängig einsetzbar [58, 59, 60]. Zusätzlich kann bei der Bearbeitung mit dem Ionenstrahl auch ein Gas zugeführt werden, das die Abtragung beschleunigt [61], gleichzeitig aber oft die Oberfläche der gesamten Probe beeinträchtigt [62].

Für die Moden in GaAs/AlAs-Braggsäulen wird von Q-Faktoren bis 165.000 für einen Durchmesser von  $4\,\mu\text{m}$  berichtet [29]. Für 2- $\mu$ m-Säulen werden Modenvolu-



**Abbildung 2.1:** Elektronenmikroskopische Bilder unterschiedlicher Mikroresonatoren. (a) Säulenresonator mit Durchmesser  $10 \,\mu\text{m}$ , (b) Whispering-Gallery-Resonator in Form eines Toroids [65] und (c) zweidimensionaler photonischer Kristall mit Defekt als Mikroresonator [66].

mina um  $20 (\lambda/n)^3$  erreicht, welche aber nochmals um einen Faktor sechs kleiner werden, wenn das AlAs oxidiert wird. Oxidiertes AlAs besitzt relativ zum GaAs einen höheren Brechungsindexkontrast als einfaches AlAs, der damit verbesserte Lichteinschluss vermindert das Eindringen des elektromagntischen Feldes in den Braggspiegel; dabei wurde ein Purcell-Faktor von drei gemessen [63]. Auch die starke Kopplung mit einzelnen optimierten Quantenpunkten wurde nachgewiesen [30].

Gewöhnlich wird die Modenabstrahlung in axialer Richtung gemessen. Es konnten aber auch Whispering-Gallery-Moden in Messungen senkrecht zur Symmetrieachse beobachtet werden, welche überdies ein besseres Verhältnis von  $Q^2/V_{\text{Mode}}$  aufweisen sollen [64].

#### Whispering-Gallery-Resonatoren

Im Gegensatz zu den anderen Resonatortypen beruht der Lichteinschluss bei Whispering-Gallery-Resonatoren ausschließlich auf der Totalreflexion. Gemäß ihrer Namensgebung, der Flüstergalerie, läuft das Licht eingeschlossen innerhalb eines flachen Zylinders bzw. einer dünnen Scheibe an der Innenseite der Außenwand entlang. Die Lichtintensität konzentriert sich damit auf einen Ring im Resonator. An Stelle von Scheiben können daher auch Toroide benutzt werden, vgl. Abb. 2.1(b) [65]. Da die Intensität nahe der Grenzschicht zum umgebenden Medium konzentriert ist, dringen in letzteres evaneszente Felder ein. Folglich sind die Moden sehr sensitiv gegenüber Einflüssen an der Oberfläche, was sie zur Detektion einzelner Moleküle befähigt – einem Phänomen mit hohem Potenzial für biologische Analysemethoden [67, 68].

Scheibenresonatoren werden in einem zweistufigen Prozess hergestellt. Zuerst wird die Scheibe mittels reaktivem Ionenätzen gebildet, danach folgt ein isotroper Ätz-

schritt zur Herstellung des Fußes, der aus einem anderen Material besteht. Durch das Aufschmelzen der Scheibe kann man anschließend auch zu einem Toroid gelangen.

Bei Whispering-Gallery-Resonatoren sind das Modenvolumen und der Q-Faktor sehr starke Gegenspieler. Mit dem Modenvolumen nimmt für kleinere Scheibendurchmesser der Q-Faktor ebenfalls rapide ab, da (im Bild der geometrischen Optik) der Winkel für die Totalreflexion sehr schnell ungünstig wird. Jedoch ist dieser Resonatortyp für seine extrem hohen Q-Faktoren über  $10^8$  bekannt [65], wodurch im Kompromissfall zwischen Q und  $V_{\text{Mode}}$  ein Purcell-Faktor bis 150 möglich wird [40]. Außerdem wurde die starke Kopplung mit einem einzelnen Quantenpunkt in einer Scheibe nachgewiesen [69].

#### Defekte in photonischen Kristallen

Photonische Kristalle besitzen im Ortsraum eine periodische Modulation des Brechungsindex. Dadurch können sich photonische Bandlücken ausbilden, in denen das Licht nicht propagieren kann. Indem ein Defekt eingebaut wird (vgl. Abb. 2.1(c)), entsteht im photonischen Kristall ein optischer Zustand mit fast perfektem Einschluss – eine Resonatormode. Im Unterschied zu den anderen Resonatoren besitzt die so konstruierte Kavität keine Leckmoden [40]. Durch das Auslassen eines Lochs im Kristall kann das Licht auf sehr engem Raum eingesperrt werden. Die erzielten Modenvolumina liegen bei  $0,43 (\lambda/n)^3$  [70], gleichzeitig kann der *Q*-Faktor durch Variationen in der Geometrie auf einfachem Weg deutlich maximiert werden [71]. Somit ließe sich bereits ein Purcell-Faktor von 75 realisieren [72].

Entsprechend den Säulen- und Whispering-Gallery-Resonatoren konnte auch bei dieser Geometrie die starke Kopplung mit einem einzelnen Quantenpunkt nachgewiesen werden [47].

Die photonischen Kristalle kennzeichnen sich durch ihre "poröse" Struktur. Daher liegt der Gedanke nahe, sie potenziell als Gassensoren einzusetzen [73]. Der Brechungsindex der Luft ändert sich durch ein anderes Gas zwar nur minimal, aber die Resonanzmoden sind ausreichend scharf, um eine Modenverschiebung aufzulösen. Als weitere Anwendung werden schwellenlose Nanolaser propagiert. Dabei würden die eingebetteten Emitter bereits ihre gesamte spontane Emission in die Mode abgeben, eine Intensitätsschwelle wie bei einem üblichen Laser könnte dann nicht mehr beobachtet werden [74].

# 2.4 Möglichkeiten der räumlichen und spektralen Anpassung zwischen Emitter und Resonator

Zur Beobachtung und Ausnutzung der starken oder schwachen Kopplung ist sowohl ein räumlicher Überlapp zwischen dem Maximum der Resonatormode und dem Emitter als auch eine spektrale Übereinstimmung zwischen diesen beiden erforderlich (vgl. Gl. 2.8 bzw. Gl. 2.11). Durch die monolithische Bauweise der Halbleiter muss dieser Aspekt bereits bei der Herstellung berücksichtigt werden, vor allem was die räumliche Überlagerung angeht. Die spektrale Anpassung zwischen Emitter und Mikroresonator ist in Grenzen auch nach der Herstellung der dreidimensionalen Struktur noch möglich und oft auch notwendig.

### 2.4.1 Positionierung von Quantenpunkten

Für einen maximalen Kopplungseffekt muss die Position des Emitters mit dem Maximum der Resonatormode übereinstimmen, vgl. Gl. 2.8. Als Emitter werden im Halbleiter Quantenpunkte verwendet, die sich üblicherweise bei einem selbstorganisierten Wachstum auf einer epitaktisch ebenen Schicht bilden [75]. Der Nachteil dabei: Die Positionen der Quantenpunkte sind zufällig. Um dennoch eine räumliche Übereinstimmung zu erreichen, gibt es verschiedene Ansätze:

Werden die selbstorganisierten Quantenpunkte auf einem vorstrukturierten Substrat gewachsen, so siedeln sie sich auf Grund der Oberflächenenergie bevorzugt in mikroskopischen Einkerbungen an. In Kombination mit Markern lässt sich der nachfolgende Lithographieschritt zur Herstellung des Resonators sehr exakt ausrichten [76, 77], zumindest wenn die aufgewachsene Struktur nicht zu dick ist.

Bei recht dünnen Schichten über den Quantenpunkten besteht die Möglichkeit, die zufällig verteilten Positionen mittels Rasterkraftmikroskopie als kleine Erhöhung zu detektieren und die Herstellung daran auszurichten [78].

Ein sehr neuer Ansatz eignet sich auch für dicke Schichten wie bei Braggresonatoren. Dabei werden in einem Kryostaten zwei Laser mit unterschiedlicher Energie auf die selbe Position fokussiert. Auf diese Weise kann an einer Probe mit dem einen Laser die Quantenpunktlumineszenz gemessen werden und mit dem anderen eine lithografische Belichtung ausgelöst werden [79].

Darüber hinaus gibt es Versuche, die Quantenpunkte direkt lithographisch aus einem Quantentrog herzustellen und so in den gesamten Herstellungsprozess des Resonators zu integrieren [80].

### 2.4.2 Beeinflussung der Resonatormode

Insbesondere um die Energieaufspaltung der starken Kopplung zu messen, bedarf es einer Möglichkeit, die Emission des Emitters relativ zur Resonatormode spektral zu verschieben. Dazu muss entweder die Resonatormode oder der Emitter spektral durchgefahren werden. Betrachten wir zuerst den Resonator: Zum Nachweis der Kopplung wird ein *reversibler* Prozess benutzt, so dass eine Wiederholung der Messung möglich ist. Zum Zweck der dauerhaften Abstimmung können auch *irreversible* Verfahren benutzt werden, wodurch sich meist ein größerer Spielraum ergibt.

#### **Reversible Modenverschiebung**

Die einfachste Art der spektralen Verschiebung vollzieht sich mit einer Temperaturänderung, die mit einer Änderung des Brechungsindex einhergeht [81]. In einem Kryostaten kann die Temperatur der gesamten Probe variiert werden. Mittels eines (gepulsten) Lasers ist auch eine lokale Erhitzung eines Teils der Gesamtstruktur möglich [82, 34]. Als wesentlicher Nachteil der Erwärmung erweist sich der gleichzeitige Einfluss auf den Emitter, also dessen Energie, die Effizienz der strahlenden Rekombination und die Lebensdauer der Exzitonen (Linienbreite).

In Anlehnung an den photonischen Kristall als Gassensor kann ein umströmendes Gas auch bewusst zur Verschiebung der Resonanz verwendet werden, allerdings ist der Effekt sehr gering [73]. Stärker wirkt sich eine Veränderung der effektiven Dicke und der Porendurchmesser zweidimensionaler photonischer Kristalle durch die Kondensation von Stickstoff oder Xenon bei tiefen Temperaturen aus [83].

#### Irreversible Modenverschiebung

In einem selbstlimitierenden Prozess kann Metalloxid atomlagenweise auf einen Halbleiter aufgebracht werden. Wird dieser Prozess nach der Herstellung des Mikroresonators angewandt, so kann die Geometrie nachträglich verändert und damit die Resonanz in sehr feinen Schritten verschoben werden [84].

Die meisten Methoden bedienen sich jedoch der Materialabtragung: So kann bei Säulenresonatoren durch eine Nachbearbeitung mit dem fokussierten Ionenstrahl eine Abstimmung erfolgen [60]. Andere Verfahren benutzen einen zweistufigen Prozess aus Oxidation und Ablösung des Oxids, was sich theoretisch fast beliebig wiederholen lässt und unter *digitalem Ätzen* firmiert [85, 86]. Dieser isotrope Ätzprozess kann noch verfeinert werden, indem der Oxidationsschritt ortsaufgelöst mit Hilfe eines Rasterkraftmikroskops induziert wird [87].



Abbildung 2.2: (a) Temperaturabhängige Mikrophotolumineszenz-Messung eines einzelnen Quantenpunkts (dick unterlegter Linienabschnitt) und einer Resonanz eines Säulenresonators (mit grauer Fläche markiert). (b) Übergangsenergien einiger Quantenpunktproben unter dem Einfluss eines äußeren elektrischen Feldes (Stark-Effekt) gemessen über den Photostrom (aus [89]).

#### 2.4.3 Verschiebung der Quantenpunktemission

Quantenpunkte werden bei der epitaktischen Herstellung direkt eingebaut. Danach sind Position und Übergangsenergie fest "eingefroren". Eine Verschiebung der Quantenpunktemission ist dennoch in einem schmalen Spektralbereich auf zwei Arten möglich: Über die Temperatur und über ein elektrisches Feld.

Die Temperatur verändert die effektive Bandlücke des Quantenpunkts und damit dessen Emissionswellenlänge [88]. Im Vergleich zur thermischen Änderung des Brechungsindex und damit der Verschiebung der Resonanzwellenlänge ist die Auswirkung auf die effektive Bandlücke viel stärker (ca. vierfach). Und so zeigt sich in den Spektren in Abb. 2.2(a), dass die Quantenpunktemission mit zunehmender Temperatur viel deutlicher rotverschiebt als die Resonanz des Säulenresonators und damit eine Möglichkeit zur spektralen Anpassung des Emitters besteht. Allerdings büßt bei höheren Temperaturen der Quantenpunkt an Effizienz ein und die Emission wird breitbandiger. Ein äußeres elektrisches Feld induziert im angeregten Quantenpunkt einen Dipol, welcher sich darin entsprechend ausrichtet. Als Folge ist die Übergangsenergie des Emitters rotverschoben. Die Emission des Quantenpunkts als Funktion der elektrischen Feldstärke bildet damit eine Parabel, deren Maximum durch einen intrinsischen Dipol im Quantenpunkt verschoben sein kann, vgl. Abb. 2.2(b). Bekannt ist dieses Phänomen als Stark-Effekt in Quantensystemen (engl. quantum-confined Stark shift) [89]. Die erreichbare Verschiebung der Quantenpunktemission, die mit Lumineszenz beobachtbar ist, hängt über den Bandverlauf vom Material (bzw. dessen Konzentration bei ternären Verbindungshalbleitern) sowie von der Ausrichtung des elektrischen Feldes in Wachstumsrichtung [90] oder senkrecht dazu [91] ab. Sie beträgt aber für typische InAs/GaAs-Quantenpunkte meist 0,5 bis maximal 1 nm. Durch die Bandverbiegung wird das Exziton im Quantenpunkt nicht mehr so gut eingeschlossen, Ladungsträger können heraustunneln [92]. Im ungünstigsten Fall tritt fast keine messbare Verschiebung auf und die Ladungsträger rekombinieren auf sonst verbotenen Kanälen, z.B. ein Elektron im s-Zustand mit einem Loch im p-Zustand [93].

Gegenüber der trägen Temperaturverschiebung liegen für eine Anwendung des Stark-Effekts die Hauptvorteile in der schnelleren Schaltbarkeit. Gemessen wurden Modulationsraten bis 300 kHz [94], was aber noch lange nicht die physikalische Grenze sein dürfte. Außerdem tritt diese Stark-Verschiebung auch bei Elektrolumineszenz auf [95], womit sich eine komplett elektrische Ansteuerung realisieren ließe.

# Kapitel 3

# Pyramidale Mikroresonatoren

### 3.1 Motivation pyramidaler Strukturen

Der Lichteinschluss in Halbleitermikroresonatoren lässt sich immer auf die Totalreflexion an Grenzschichten oder eine Reflexion an periodischen Strukturen zurückführen (vgl. Unterkapitel 2.3). Galliumarsenid besitzt einen relativ hohen Brechungsindex von 3,55 im Wellenlängenbereich des nahen Infrarot. Gemäß dem Snelliusschen Brechungsgesetz findet somit für alle Winkel größer als 16, 4° relativ zur Normalen der Grenzfläche eine Totalreflexion statt. Eine Pyramide besitzt nicht-parallele Seitenflächen, und so lässt sich im vereinfachten Bild der geometrischen Optik leicht verstehen, dass es darin in Abhängigkeit der Winkel nichttriviale, geschlossene Lichtpfade geben wird, siehe Abb. 3.1. Folglich können sich auf diesem Lichtpfad *resonante Moden* ausbilden, wenn die Wellenlänge gerade derart hineinpasst, dass sich das Licht nach einem Umlauf konstruktiv überlagert.

Die Existenz solcher optischer Moden wurde erstmals in 800 nm großen Pyramiden aus ZnS nachgewiesen [24]. Für ZnS-Pyramiden auf einem Braggspiegel aus ZnSe und MgS wurde danach über einen *Q*-Faktor von knapp 5000 berichtet [25, 96]. Auch in hexagonalen GaN-Pyramiden wurde die Existenz von Moden gezeigt [26].

Im Vergleich zu ZnS bietet die Verwendung von GaAs Vorteile: Einerseits ist die Technologie weiter fortgeschritten, andererseits besitzt GaAs ( $n_{\text{GaAs}} = 3,55$ ) einen viel größeren Brechungsindex als ZnS ( $n_{\text{ZnS}} = 2,5$ ), was einen besseren Lichteinschluss verspricht. Auch die Herstellung eines GaAs/AlAs-Braggspiegels unter der Pyramide ist unproblematisch. Das in dieser Arbeit weiterentwickelte nasschemische Verfahren zur Ausbildung der Facetten ist äußerst flexibel und erlaubt eine einfache Variation von Pyramidenwinkel und -größe. Letzteres könnte ein entschei-



Abbildung 3.1: Schema eines pyramidalen Mikroresonators auf einem Braggspiegel. In der Pyramide befindet sich eine Quantenpunktlage (inklusive Benetzungsschicht). Ein geometrisch vorstellbarer Lichtpfad zur Ausbildung einer resonanten Mode ist eingezeichnet.

dender Vorteil auf der Suche nach Mikroresonatoren mit maximalen Verhältnissen von  $Q/V_{\text{Mode}}$  bzw.  $Q^2/V_{\text{Mode}}$  sein, siehe Unterkapitel 2.2.

Darüber hinaus ist die frei wählbare Position der Quantenpunktlage(n) bei epitaktischer Herstellung für zwei Aspekte nicht zu unterschätzen:

Erstens könnte bei bekannter Intensitätsverteilung der Resonatormoden, von denen es in dieser Geometrie viele nicht-entartete geben wird, die Position der Quantenpunktschicht so gewählt werden, dass die Quantenpunkte nur an ganz bestimmte Moden ankoppeln können. Damit würde sozusagen eine Vorauswahl getroffen.

Zweitens lässt sich die absolute Anzahl der Quantenpunkte beeinflussen. Durch das selbstorganisierte Wachstum wird eine statistische Flächendichte von Quantenpunkten eingestellt. Die nach oben spitz zulaufende Pyramide erlaubt durch die Lagekontrolle eine einfache Reduzierung der Quantenpunktanzahl. Letzteres ist insbesondere für die Kopplung einzelner Quantenpunkte an eine Mode von Interesse. Denkbare Anwendungen umfassen die Kopplung räumlich getrennter Quantenpunkte (auch gekoppelte Pyramiden sind möglich) oder die effiziente Auskopplung einzelner Photonen.

Resonatormoden in GaAs-Pyramiden in Abhängigkeit bestimmter Geometrien experimentell zu finden, nachzuweisen, ihre Güte zu bestimmen und ihr Potenzial als Mikroresonator aufzudecken, sind die Schwerpunkte dieser Arbeit an den Pyramiden und werden im vorliegenden Kapitel dargestellt.

# 3.2 Nasschemische Herstellung definierter Facetten

Bislang untersuchte Pyramidenstrukturen basieren auf selbstorganisiertem Wachstum [24]. Dabei wird zum Beispiel eine kohlenstoffhaltige Maske mit Elektronenstrahllithographie auf GaAs aufgebracht. Wird nun ZnS zum Überwachsen angeboten, so scheidet es sich nur an den unmaskierten Flächen ab. Dadurch entstehen ZnS-Pyramiden, deren Grundflächen durch die Masken direkt bestimmt werden. Die resultierenden Facetten stimmen mit kristallografischen Ebenen überein, die ein sehr langsames Wachstum zeigen. Die extrem ebenen Facetten erweisen sich als großer Vorteil für den optischen Einschluss. Im Gegenzug muss aber in Kauf genommen werden, dass die Facettenwinkel durch die Kristallstruktur fixiert sind.

Unser Ansatz hingegen beruht auf einem nasschemischen Ätzprozess und erlaubt die volle Kontrolle sowohl über die Kantenlänge der Pyramide als auch über den Winkel der Facetten. Letzteres bedeutet einen weiteren entscheidenden Freiheitsgrad bei der Herstellung der Pyramiden. Die Simulation zur Berechnung optischer Resonatormoden wird in Unterkapitel 3.4 herausstellen, wie kritisch dieser Winkel ist.

### 3.2.1 Epitaktisches Schichtsystem

Nasschemische Ätzverfahren zur Ausbildung von Facetten beruhen auf unterschiedlichen Ätzraten zwischen dem Material, in dem die Facetten entstehen sollen, und einer zusätzlichen Opferschicht [28], vgl. Abb. 3.2(a). Das Ausgangsverfahren, das im Rahmen dieser Arbeit weiterentwickelt wurde, nutzt eine AlAs-Opferschicht eingebettet in GaAs [97]. Das gesamte Schichtsystem, das den Ausgangspunkt für diese nasschemische Herstellung bildet, wurde monolithische in der Molekularstrahlepitaxieanlage des CFN von Shunfeng Li bzw. in Kooperation mit der CFN-Nachwuchsgruppe von Daniel Schaadt gewachsen. Insgesamt muss das epitaktische Schichtsystem dafür folgende Anforderungen erfüllen:

- Zur Ausnutzung der nasschemischen Facettenbildung muss eine Abfolge aus GaAs-Deckschicht, AlAs-Opferschicht und einer weiteren GaAs-Schicht erstellt werden. Die Opferschicht ist 100 nm dick, die beiden GaAs-Schichten haben in der Standardpyramidenprobe Dicken von 1  $\mu$ m oben und 2  $\mu$ m unten.
- Um in der Endstruktur Resonatormoden mit Hilfe von Photolomineszenz zu detektieren, werden InAs-Quantenpunkte mit einer Emissionswellenlänge zwi-



**Abbildung 3.2:** (a) Entstehung der Facetten beim nasschemischen Ätzen mit einer Opferschicht (aus [28]). (b) Schema der geätzten Pyramidenstruktur.

schen 900 und 1000 nm in die untere GaAs-Schicht eingebaut, aus der später die einfache Pyramide geformt wird.

• Die einfache GaAs-Pyramide muss nach unten durch einen Braggspiegel abgeschlossen sein (vgl. Abb. 3.2(b)). Denn eine GaAs-Pyramide auf GaAs-Substrat könnte das elektromagnetische Feld einer Mode nicht einschließen. Dieser Braggspiegel (DBR von engl. *distributed Bragg reflector*) wird spektral an die Emission der Quantenpunkte angepasst und umfasst 20,5 oder 25,5 Paare.

#### 3.2.2 Monte-Carlo-Simulation des Atzprozesses

Den Kernprozess zur Herstellung der Facetten bildet das nasschemische Ätzen. Abbildung 3.2(a) zeigt den Vorgang schematisch.

Um den Ablauf zu untersuchen und die Auswirkungen auf den Braggspiegel darunter zu verstehen, wurde ein zeitdiskretes Monte-Carlo-Modell entwickelt. Als Ausgangspunkt dient ein dreidimensionaler Raum aus gestapelten Würfeln. Jedem Würfel ist ein Material zugewiesen und damit eine Wahrscheinlichkeit, im nächsten Zeitschritt abgetragen zu werden, d.h. durch Ätzlösung ersetzt zu werden. Diese Wahrscheinlichkeit p ist nur größer als Null, wenn in der angrenzenden Nachbarschaft ein Materialwürfel aus Ätzlösung besteht. Im dreidimensionalen Raum können 26 Nachbarn eines Würfels berücksichtigt werden, vgl. Abb. 3.3. Der größte Einfluss auf die Abtragung muss durch die Nachbarn mit gemeinsamer Seitenfläche gegeben sein (6 Stück,  $p_x, p_y, p_z$ ). Weniger bedeutsam sind die Nachbarelemente mit gemeinsamer Kante (12 Stück, z.B.  $p_{xy}, p_{yz}$ , gewichtet mit  $p_{xy} = p_x/10$ ) und vernachlässigbar sind die Elemente mit gemeinsamer Ecke (8 Stück,  $p_{xyz}$ ). Über die Zahlenwerte der Wahrscheinlichkeiten p wird die Größe des Einflusses bestimmt, und mit  $p_x \neq p_y \neq p_z$ 



Abbildung 3.3: Einfluss auf ein herausgegriffenes Würfelelement (dick unterlegt) der Monte-Carlo-Simulation, verschiedene Richtungen sind mit unterschiedlichen Abtragungswahrscheinlichkeiten p behaftet. Übersicht über einige der 26 Nachbarn.

kann für geometrisch gleichwertige Elemente zusätzlich eine Anisotropie des Kristalls in das Modell eingebaut werden.

Wie im Experiment so muss auch die Monte-Carlo-Simulation mit einer teilweise maskierten Oberfläche starten, die nicht von der Ätzlösung angegriffen wird. Für einen Zeitschritt in der Simulation werden folgende Aktionen ausgeführt:

- 1. Für jedes einzelne Element i aus GaAs und AlAs, das an die Atzlösung angrenzt, wird die Abtragungswahrscheinlichkeit  $p_i$  berechnet. Dazu werden die richtungsabhängigen Einzelwahrscheinlichkeiten aufaddiert, wenn sich ausgehend vom Element i in der entsprechenden Richtung ein Nachbarwürfel aus Ätzlösung befindet.
- 2. Für jedes Element wird eine separate Zufallszahl  $0 \le r_i \le 1$  gezogen.
- 3. Ist die Zufallszahl  $r_i$  kleiner als die Wahrscheinlichkeit  $p_i$ , so wird das Material durch die Ätzlösung ersetzt.

In dieser einfachen Betrachtung wird die Diffusion vernachlässigt. Die Darstellung bei der Ausbildung der Facetten erfolgt im Querschnitt, siehe Abb. 3.4. Doch um dem lateralen Verhalten beim Ätzprozess Rechnung zu tragen, muss die Simulation in drei Dimensionen durchgeführt werden.<sup>1</sup> In die Berechnung in Abb. 3.4 geht ein

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>Im zweidimensionalen Fall entstehen grobe Unebenheiten bis hin zu tiefen Poren, die sich in drei Dimensionen kaum ausbilden können. Durch die additive Gesamtwahrscheinlichkeit werden in 3D nicht geätzte Elemente im folgenden Zeitschritt zusätzlich seitlich angegriffen und damit wie auch im Experiment schneller eingeebnet.





Abbildung 3.4: Zeitlicher Verlauf des Ätzprozesses, basierend auf einer Monte-Carlo-Simulation für ein Ätzratenverhältnis von 2,5 zwischen AlAs und GaAs. Oben auf der Struktur befindet sich jeweils die Maske, ganz unten ist gestreift der Braggspiegel zu sehen. Die Facetten bilden sich im GaAs (grau) in der Nachbarschaft zur AlAs-Opferschicht (schwarz dazwischen).

Atzratenverhältnis von 2,5 zwischen AlAs und GaAs ein. Im ersten Schritt findet ein isotropes Ätzen im GaAs statt. Die aufsitzende Maske wird leicht unterätzt. In (2.) wird die AlAs-Opferschicht erreicht, die in (3.) schon deutlich stärker unterätzt wird als das GaAs und damit den herausgeätzten Turm auf Höhe des AlAs einschnürt. Ausgehend von dieser AlAs-Schicht bilden sich im GaAs die Facetten nach oben und unten aus. Im letzten Schritt (6.) wurde die Opferschicht bereits durchgeätzt. Der obere Deckel (ebenfalls eine Pyramide) wird zusammen mit der Maske in der Ätzlösung weggespült. Die unteren Facetten bilden die GaAs Pyramide, platziert auf einem Braggspiegel, der ebenfalls angeätzt ist.

### 3.2.3 Ätzmaske

Vor dem nasschemischen Prozess müssen die Ätzmasken hergestellt werden. Der negative Elektronenstrahllack AR-n 7700.08 (Allresist<sup>TM</sup>) ist ätzresistent gegenüber einer Lösung aus Phosphorsäure und Wasserstoffperoxid und kann somit nach dem Entwickeln direkt als Ätzmaske eingesetzt werden. Die Belichtung des Lacks erfolgt mit dem Elektronenmikroskopsystem LEO SUPRA 55 VP des CFN. Das in Abschnitt 3.2.1 diskutierte planare Schichtsystem wird in (001)-Richtung epitaktisch gewachsen. Wegen kristallografischen Anisotropien im GaAs beim Ätzen muss darauf geachtet werden, die quadratischen Masken mit wenigen Mikrometern Kantenlänge für einzelne Pyramiden entlang den äquivalenten (100)- und (010)-Achsen auszurichten. Gleichwohl zeigte sich im Experiment, dass die exakte Ausrichtung nicht so kritisch ist. Sogar bei runden oder elliptischen Masken wurde die Tendenz zur Ausbildung von Kanten entlang der (100)- und (010)-Richtung beobachtet [98]. Abbildung 3.5 zeigt, dass trotz einer runden Maske eine abgestumpfte pyramidenähnliche



Abbildung 3.5: Elektronenmikroskopische Aufnahme geätzter Strukturen mit runder Maske (oben links) bzw. elliptischen Masken.

Struktur (mit Deckelschicht) entsteht.

### 3.2.4 Materialabtrag durch den Ätzprozess

Die Ätzlösung zur Facettenbildung setzt sich zusammen aus Phosphorsäure ( $H_3PO_4$ , 85%-ige Konzentration), Wasserstoffperoxid ( $H_2O_2$ , 30%-ige Konzentration) und Wasser ( $H_2O$ ). Über das Mischungsverhältnis lässt sich im Schichtsystem mit der AlAs-Opferschicht der Facettenwinkel kontrollieren (siehe Abb. 3.6(b) und folgenden Abschnitt). Die gleichen Lösungskomponenten wurden bereits ohne Opferschicht von einer anderen Gruppe benutzt, um pyramidenähnliche GaAs-Strukturen zu erzielen; jedoch wird dabei ein zusätzliches Überwachsen nach dem Ätzen unumgänglich und führt damit unweigerlich zu kristallografisch orientierten Facetten wie beim selektiven Wachstum [27]. Das hier beschriebene Verfahren beschränkt sich dagegen auf einen einzigen Ätzschritt und erlaubt zudem die Kontrolle über den sich ausbildenden Winkel.

Im Detail lässt sich das Ätzen in Einzelprozesse untergliedern [99]: Das Wasserstoffperoxid muss sich zunächst an der Oberfläche anlagern und eine Oxidation auslösen. Erst danach kann die Phosphorsäure das Oxidationsprodukt angreifen und ablösen. Eine genaue Betrachtung der Reduktions- und Oxidationsreaktionen findet sich in Ref. [100].

Innerhalb des Dreiecks in Abbildung 3.6(a) steht jeder Punkt für eine Zusammensetzung der dreikomponentigen Ätzlösung. Die Bereiche a bis d stellen Regionen



Abbildung 3.6: (a) Abhängig von der Zusammensetzung der Ätzlösung gibt es im GaAs vier Bereiche, in denen der Ätzvorgang durch verschiedene Unterprozesse begrenzt ist; gestrichelte Kurven geben die Ätzrate in  $\mu$ m/min an (aus [99]). (b) Facettenwinkel der Pyramide in Abhängigkeit des Wasserstoffperoxidanteils in der Ätzlösung, siehe [98]. Die drei am häufigsten verwendeten Ätzlösungen sind in (a) und (b) durch gleiche Symbole hervorgehoben, die zugehörigen Ätzbereiche sind mit gleichen Buchstaben bzw. Farben markiert.

dar, in denen unterschiedliche chemische Teilprozesse die Gesamtätzrate begrenzen. Die überwiegend benutzten Ätzlösungen (als graue Symbole mit schwarzem Umriss markiert) befinden sich in Bereichen, in denen der Ätzprozess durch die Anlagerung von  $H_2O_2$  (in *a*) bzw. von  $H_3PO_4$  (in *d*) limitiert ist. Besonders der Bereich *a* verspricht mit moderaten Ätzgeschwindigkeiten einen gut kontrollierbaren Ätzprozess [99].

Für eine hohe Reproduzierbarkeit des Ätzprozesses sind folgende Punkte zu beachten:

- eine gute Durchmischung der Ätzlösung,
- eine konstante Temperatur der Lösung durch ein selbstreguliertes Wasserbad
- und ein fixierbarer Probenhalter, um störende, ungleichmäßige Bewegungen zu vermeiden.

Die Facettenoberfläche kann in den hochauflösenden Bildern der Abb. 3.7 begutachtet werden<sup>2</sup>. Zu Testzwecken wurde hier kein Braggspiegel darunter gewachsen. Die

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup>Prinzip der Pyramidenadressierung siehe Ref. [98].



**Abbildung 3.7:** Elektronenmikroskopische Aufnahmen geätzter Pyramiden mit verschiedenen Facettenwinkeln: (a) 27,5° (Pyramide: A0627aa\_10-01-02), (b) 49,5° (Pyramide: A0627al\_10-01-13) und (c) 58° (Pyramide: A0627ad\_10-01-13).

Pyramiden sitzen lediglich auf dem GaAs-Puffer und einer dünnen Schicht AlAs. Die Facetten sind eben und zeigen eine wohldefinierte Geometrie. Nur bei genauer Betrachtung sind auf der Oberfläche verstreut kleine Körner mit einer Größe von 10 bis 30 nm zu erkennen. Die Dichte dieser Ätzrückstände schwankt von Probe zu Probe, ihre Zusammensetzung ist aber unklar<sup>3</sup>. Einmalig zeigten sich bei einem Facettenwinkel von 58° (Abb. 3.7(c), größte Ätzraten) zusätzlich relativ grobe Körner bis 250 nm, die sich unter Betrachtung der gesamten Probe fast ausschließlich an den unteren Kanten der Pyramiden befanden.

#### 3.2.5 Facettenwinkel

Um an der Grundfläche der Pyramide eine definierte und saubere Kante beim Ätzen zu erhalten, sollte die Pyramide auf einem Braggspiegel stehen oder zumindest auf einer AlAs-Schicht sitzen, vgl. Abb. 3.7. Wird die Pyramide nicht bis zur AlAs-Schicht darunter geätzt, kann auch das Licht nicht in der Pyramide gehalten werden – die verbleibende GaAs-Schicht wirkt dann wie ein Wellenleiter. Des Weiteren ist es wichtig, dass noch tiefer als bis zu dieser AlAs-Schicht geätzt wird. Abbildung 3.8(a) zeigt, dass sich sonst keine vollständig ebene Pyramidenfacette ausbildet, sondern eine abgeknickte Facette mit zwei verschiedenen Winkeln. Die Ätztiefe, die zusätzlich notwendig ist, kann vom Mischungsverhältnis abhängen. In Abb. 3.8(b) ist die Facettenebene ohne Knick mit drei geätzten DBR-Paaren fast erreicht. Anzumerken ist, dass es sich in Abb. 3.8(a) und (b) um die gleiche Probe handelt, d.h. der Ätzvorgang in diesem Fall nicht homogen über der ganzen Probe verlief.

Die Spanne der realisierbaren Facettenwinkel zeigt sich im Diagramm der Abb. 3.6(b): Facettenwinkel von 21,5° bis 58° konnten ohne weiteres hergestellt werden.

<sup>&</sup>lt;sup>3</sup>Reines Gallium hätte sich durch reine Säuren lösen müssen – was es aber nicht tat; eine organische Zusammensetzung ist ebenfalls unwahrscheinlich, weil sich die Tröpfchen im Plasmaverascher kaum veränderten.



**Abbildung 3.8:** Unterschiedlich tief geätzte Pyramiden: (a) ein DBR-Paar tief (Pyramide: A0475a\_12-01-19); (b) drei DBR-Paare tief, Facette fast vollständig ausgebildet (Pyramide: A0475a\_19-01-01).

Dabei wurde der Volumenanteil x an Wasserstoffperoxid bei festen Anteilen von Phosphorsäure (1 Volumeneinheit) und Wasser (8 Volumeneinheiten) variiert. Zur Auswertung wurden die Pyramiden elektronenmikroskopisch vermessen und damit der Winkel zwischen den Pyramidenfacetten und der Grundfläche berechnet.

Die am häufigsten eingesetzten Lösungskompositionen sind in Abb. 3.6 mit einem Symbol gekennzeichnet. Vom Kreuz über die Raute bis zum Kreis steigt der resultierende Facettenwinkel, vgl. Abb. 3.6(b). Gleichermaßen erhöht sich auch die Ätzgeschwindigkeit, wie man in Abb. 3.6(a) über die gestrichelten Linien der Ätzraten abschätzen kann. Diese Tatsache ist für den zu erzielenden Winkel bei der Herstellung unproblematisch, kann jedoch zeitkritisch bei der Herstellung einer bestimmten Kantenlänge bzw. der damit verbundenen absoluten Ätztiefe sein. Mit Hilfe verschieden skalierter Masken auf einer Ätzprobe ist dieses Problem aber leicht lösbar, da sich mit ausreichend kleiner Abstufung der Maskengrößen die gewünschte Pyramidengröße finden wird.

Der Hauptvorteil der nasschemischen Herstellung beruht im Gegensatz zum selbstorganisierten Wachstum der Facetten auf der Realisierbarkeit diverser Facettenwinkel durch die entsprechende Mischung der Ätzlösung. Kristallografische Anisotropien werden dabei weitgehend unterdrückt [28]. Im zeitlich fortschreitenden Ätzprozess besteht die Winkelkontrolle jedoch nur solange, wie die AlAs-Opferschicht geätzt wird. Sobald die AlAs-Opferschicht vollständig aufgelöst ist, d.h. nur die untere Pyramide noch steht (vgl. z.B. Schritt (6.) der Ätzsimulation in Abb. 3.4), wird die Pyramide in einem weiter laufenden Ätzprozess kleiner geätzt und die Facetten tendieren wiederum zu bevorzugten Kristallebenen mit kleiner Ätzrate. Zur besten Kontrolle des Facettenwinkels sollte der Ätzprozess folglich nach Durchtrennung der Opferschicht gestoppt werden. Und wie man aus Abbildung 3.8 entnehmen kann, sollte gleichzeitig bis zu diesem Zeitpunkt in mindestens drei Braggspiegelpaare hineingeätzt worden sein. Somit müssten die Dicke der unteren GaAs-Schicht und die Größe der Maske für eine gewünschte Struktur konzipiert und die Ätzzeit genau danach berechnet werden (Details siehe Ref. [101]).

### 3.2.6 Erzielte Geometrien

Dieser Abschnitt soll die Vielfalt der Geometrien hervorheben, die im Rahmen dieser Arbeit mittels nasschemischer Facettenausbildung erzielt wurden. Erste Pyramidenstrukturen wurde bereits in der Arbeit von Dr. Jaime Lupaca-Schomber hergestellt [97]. Die optische Charakterisierung dieser Strukturen findet sich im anschließenden Unterkapitel 3.3.

#### Pyramiden auf Braggspiegeln

Den Ausgangspunkt zur Untersuchung pyramidaler Mikroresonatoren bildeten Pyramiden auf Braggspiegeln, wie sie in Abbildung 3.9(a) zu sehen sind. Die Pyramidenform prägt sich besonders gut aus, wenn ausreichend tief in den DBR geätzt wurde.



**Abbildung 3.9:** Pyramiden auf Braggspiegel: (a) ideal ausgebildete Struktur (Pyramide: A0300JLSd\_01-08-08, siehe Ref. [97]); (b) Homogenität des Ätzens auf einem Unterfeld (Feld: A0475a\_16-01); (c) scharfe Kanten sehr gut in Draufsicht erkennbar (Pyramide: A0648d\_022-01-16). (d) Auch Pyramiden mit 1  $\mu$ m Kantenlänge zeigen wohldefinierte Geometrie (Pyramide: A0648i\_u07-01-19).
Die Probe in Abb. 3.9(b) wurde zwar nicht tief genug geätzt, doch sie zeigt eindrucksvoll, wie homogen der Ätzprozess abläuft. Auf einem Unterfeld entstehen auf diese Weise simultan 25 fast identische Pyramidenstrukturen. Kleine Abweichungen können meist mit Unreinheiten auf der Ätzmaske erklärt werden. Bei der Draufsicht auf die Pyramiden kann im Elektronenmikroskop ein empfindlicher Detektor zu Messung der direkt zurück gestreuten Elektronen eingesetzt werden. Damit werden die scharfen Kanten der Struktur besonders gut beobachtbar, vgl. Abb. 3.9(c). Bemerkenswerterweise stellt sich heraus, dass auch sehr klein geätzte Pyramiden wie in Abb. 3.9(d) die wohldefinierte pyramidale Geometrie beibehalten.

#### Umgekehrte Pyramiden

Wie bereits aus der zeitlichen Entwicklung in der Monte-Carlo-Simulation abzusehen war (vgl. Abb. 3.4), ist auch die Herstellung vertikal gekoppelter Pyramiden möglich, wenn der Ätzprozess vor der Durchtrennung der Opferschicht angehalten wird. Unter diesen Bedingungen entsteht eine wie zuvor diskutierte untere Pyramide und gleichzeitig bleibt ein Teil der GaAs-Deckschicht in Form einer umgekehrten Pyramide erhalten. Die obere Pyramide, im folgenden oft als *Deckelpyramide* bezeichnet, wird lediglich über die AlAs-Opferschicht von unten gehalten, siehe Abb. 3.10. Die Kantenlänge an der Einschnürung in Abb. 3.10(a) beträgt weniger als 200 nm, während sich die Kantenlänge der Deckelpyramide an der Grundfläche oben auf mindestens das Dreizehnfache beläuft. Trotz solcher Dimensionen scheint die mechanische Stabilität recht hoch zu sein, denn nur äußerst selten wurden abgebrochene Deckelpyramiden im Elektronenmikroskop sichtbar.

Bei der Herstellung der vertikal gekoppelten Pyramiden darf die AlAs-Opferschicht



**Abbildung 3.10:** Vertikal gekoppelte Pyramiden. (a) Schön ausgebildete obere Pyramide (auf Feld: A0255JLS21b\_06, siehe Ref. [97]); (b) obere Pyramide mit senkrechter Flanke (Pyramide: A0795e\_04-01-06).

dazwischen nicht vollständig aufgelöst werden. Eine zu kurze Atzzeit hat jedoch senkrechte Flanken an der Deckelpyramide zur Folge, siehe Abb. 3.10(b); d.h. im letzten Fall hätte die Ätzmaske größer sein müssen, damit länger geätzt werden kann. Denn diese Flanke bildet sich herstellungsbedingt erst allmählich zurück, wenn sich die eigentliche Facette ausgehend von der Opferschicht ausbreitet, vgl. Abb. 3.4. Bei optischen Untersuchungen (siehe Abschnitt 3.3.4) wiesen beide Strukturen, die einer Sanduhr ähnlich sehen, einen überraschend guten Lichteinschluss auf.

#### Lateral verbundene Strukturen

Mit einer geeigneten Ätzmaske lassen sich auch lateral verbundene Strukturen realisieren. Auf diesem Weg würden sich gekoppelte Mikroresonatoren fertigen lassen, die zur Kopplung von Quantenpunkten eingesetzt werden könnten. Über die Länge und den Querschnitt des Verbindungsstegs ließe sich die Kopplungsstärke anpassen.

Die laterale Verbindung ist sowohl für einfache Pyramiden auf einem Braggspiegel als auch für Deckelpyramiden umsetzbar (Abb. 3.11). Die Formen und Ausrichtungen der Ätzmasken sind in der Abbildung mit enthalten. Für eine Verbindung der unteren Pyramiden reicht es aus, die einfachen Masken an den Spitzen überlappen zu lassen. Bei der Kopplung der Deckelpyramiden muss sich eine freitragende Brücke ausbilden. Brücken mit einer Spannweite von mehr als  $12 \,\mu$ m konnten problemlos geätzt werden. Denkbar wäre diese Methode auch für eine elektrische Kontaktierung von Deckelpyramiden über einen dotierten Steg, was wiederum für eine Anwendung der Deckelpyramide als Einzelphotonenquelle interessant sein könnte.



**Abbildung 3.11:** Lateral verbundene Pyramiden: (a-b) Kopplung der unteren Pyramiden mit zugehöriger Maske, siehe [97]. (c-d) Kopplung von Deckelpyramiden und entsprechende Ätzmaske (Pyramiden: A0829d E-24-2), siehe [101].

#### Pyramidenstümpfe

Pyramidenstümpfe wurden mit dem Ziel hergestellt, sie mit einem epitaktisch gewachsenen Braggspiegel zu überdecken (siehe Abschnitt 3.2.7). Denn eine normale Pyramide wie in Abb. 3.9(a) kann nicht ohne Weiteres überwachsen werden: Zum einen ist das epitaktische Wachstum auf verkippten Oberflächen generell problematisch, und außerdem ist es schwierig, qualitativ hochwertige Facetten für die Epitaxie auf den Oberflächen der Pyramiden (nasschemisch) zu erzeugen. Damit sich die Pyramidenfacetten als Ebenen ausbilden, muss einerseits ausreichend tief geätzt werden, vgl. Abschnitt 3.2.5. Andererseits resultiert diese Anforderung in angeätzten unteren Braggspiegeln, welche sich als Stufen im Profil bemerkbar machen. Für epitaktisches Überwachsen sind diese Stufen jedoch äußerst problematisch. Es können keine homogene (Braggspiegel-)Schichten mit geringer Defektdichte aufgebracht werden. Auch die Pyramidenspitze ist ein kritischer Punkt; von dort aus werden sich beim Wachsen Defekte ausbreiten. Um diese beiden Probleme zu entschärfen, wurde ein mehrstufiger Ätzprozess zur Herstellung von Pyramidenstümpfen entwickelt.

Abbildung 3.12 zeigt die einzelnen Stufen der Herstellung. Oben auf der Struktur sitzt wie zuvor eine quadratische Maske (schwarz). Wichtig für das Schichtsystem ist außer der AlAs-Opferschicht in der Mitte (schwarz) nun eine weitere AlAs-Schicht unter der zweiten GaAs-Schicht, welche als Stoppschicht dient.

Im ersten Schritt wird mit einer beliebigen  $H_3PO_4$ - $H_2O_2$ - $H_2O$ -Mischung geätzt, die den Winkel bestimmt (siehe 3.6(b)). Dieser erste Ätzprozess muss vor Erreichen der AlAs-Stoppschicht angehalten werden. Danach wird mit Aceton die Maske abgelöst. Im zweiten Schritt wird die AlAs-Opferschicht selektiv angegriffen, um den Deckel abzuheben. Dafür kann prinzipiell Flusssäure verwendet werden oder alternativ wie hier verdünnte Phosphorsäure (z.B. 1  $H_3PO_4$ :  $8H_2O$ ).



Abbildung 3.12: Mehrstufiger Herstellungsprozess eines Pyramidenstumpfs: (1.) Ausbildung der Facetten im GaAs (grau) mit bisheriger Ätzlösung; (2.) selektives Ätzen der Opferschicht zum Abheben der GaAs-Deckelschicht; (3.) selektives Ätzen des GaAs bis zur Stoppschicht; (4.) selektives Entfernen der Stoppschicht.



Abbildung 3.13: Pyramidenstumpf auf AlAs (Pyramide: A0792c\_20-01-01).

Im dritten Schritt wird das GaAs selektiv mit einem Gemisch aus Zitronensäure  $(100 \text{ g C}_6\text{H}_8\text{O}_7 \text{ gelöst in } 100 \text{ ml H}_2\text{O})$  und Wasserstoffperoxid (Verhältnis 5 : 1) bis auf die Stoppschicht heruntergeätzt. Bei diesem Prozess bleibt der Facettenwinkel jedoch nicht erhalten. Die Facetten tendieren zu einer kristallografischen Ebene, oft in Richtung (114) [101]. Außerdem verliert der Pyramidenstumpf bei diesem Prozess an Höhe.

Im letzten Schritt kann wieder mit der verdünnten Phosphorsäure das AlAs der Stoppschicht selektiv entfernt werden. Damit endet der Prozess auf freigelegtem GaAs, das unkritischer zu überwachsen ist als AlAs. Die zuvor problematischen Stufen im Profil (Abb. 3.9(a)) reduzieren sich auf eine Stufe mit der Höhe der AlAs-Stoppschicht, für die ca. 10 nm ausreichen [101]. Der Braggspiegel kann unter die AlAs-Stoppschicht gesetzt werden, und so bleibt er bei diesem Vorgang komplett erhalten. Abbildung 3.13 zeigt als elektronenmikroskopische Aufnahme einen solchen Pyramidenstumpf, bevor er überwachsen werden kann.

#### 3.2.7 Zusätzliche Facettenverspiegelung

Braggspiegel weisen Reflektivitäten nahe 100% auf [50]. Die einfachen untersuchten Pyramiden sitzen auf einem Braggspiegel, und so würde man erwarten, dass bezüglich des optischen Einschlusses am ehesten die Facetten Probleme bereiten könnten. Um diese vermeintlichen Verluste zu umgehen, wurden zwei Ansätze zur Verspiegelung der Pyramidenfacetten verfolgt: Zum einen die Bedampfung mit Gold, um die metallische Oberfläche direkt als Spiegel nutzbar zu machen, und zum anderen ein Überwachsen der Facetten in der Molekularstrahlepitaxieanlage.

#### Goldbedampfung

Gold zeigt im Bereich des nahen Infrarot, in dem die Quantenpunkte ihr Licht emittieren, eine große Reflektivität [102]. Gleichzeitig fällt dieser Wert im sichtbaren Bereich zu höherer Energie hin ab. Diese Materialeigenschaft von Gold sollte auch nach einer Bedampfung der Facetten die Anregung der Quantenpunkte durch einen Laser im sichtbaren Bereich gut ermöglichen.

Vorversuche zeigten für eine Schichtdicke von etwa 30 nm den besten Kompromiss aus guter Verspiegelung (möglichst dicke Schicht) und Minimierung der Absorption des emittierten Lichts (möglichst dünne Schicht). Eine Vorbehandlung der Probe mit einem Plasmaverascher reduzierte die Oberflächenrauigkeit und erlaubte in einer Elektronenstrahlverdampfungsanlage das Aufbringen einer homogenen Goldschicht [98].

Die optischen Eigenschaften können an dieser Stelle schon vorweg genommen werden: Es zeigte sich keine Verbesserung, der Lichteinschluss war sogar oft schlechter. Eine mögliche Erklärung beinhaltet die Tendenz von Gold, sich mit dem darunter liegenden GaAs zu mischen. Als Folge wäre die ehemals ebene Facette bzw. Grenzfläche damit zunichte – der optische Einschluss dadurch mit mehr Verlusten verbunden. Parallel zeigte aber auch eine Bedampfung mit Aluminium keinen Erfolg, obwohl Aluminium diese Tendenz zur Durchmischung mit dem Halbleiter nicht aufweisen sollte. Wahrscheinlich ist die Absorption im Metall zu hoch.

#### Epitaktisches Überwachsen

Epitaktisch gewachsene Schichten besitzen hohe kristalline Qualität. Optische Störzentren sind damit rar, und so eignet sich das mit diesem Verfahren hergestellte Material sehr gut für Mikroresonatoren. Im Vergleich zu Metall ist die Absorption in der Bandlücke eines Halbleiters vernachlässigbar. Nach dem Überwachsen einer Pyramide ist der optische Einschluss rundum durch die Braggspiegel sicher gestellt. Solche Braggresonatoren, zu denen auch die Säulenresonatoren in Kapitel 4 zählen, sind für ihre hohen *Q*-Faktoren bekannt.

Wie bereits in Abschnitt 3.2.6 motiviert und vorgestellt, wurden zum epitaktischen Überwachsen Pyramidenstümpfe präpariert. Im Gegensatz zur Pyramide besitzt der Pyramidenstumpf keine Spitze, von wo aus sich sonst beim Überwachsen ausgeprägte Kristalldefekte ausbreiten. Außerdem konnte durch die spezielle Herstellungsmethode (vgl. Abb. 3.12) das Ätzen in den unteren Braggspiegel hinein vermieden werden, wodurch die Ausbildung markanter Stufen verhindert wurde.

Das Uberwachsen der Pyramidenstümpfe wurde wie die Herstellung aller Schicht-



Abbildung 3.14: Querschnitt durch einen mit 25 DBR-Paaren überwachsenen Pyramidenstumpf (Kontur gestrichelt), siehe auch Ref. [101]. Fortsetzung der oberen Kanten des Pyramidenstumpfs zwischen den entsprechenden Pfeilen; Defekt auf ursprünglicher Pyramidenstumpfoberfläche überträgt sich in überwachsene DBR-Schichten innerhalb der gestrichelten Ellipse.

strukturproben in dieser Arbeit innerhalb der Kooperation mit der CFN-Nachwuchsgruppe von Daniel Schaadt bewerkstelligt [101]. Wie erfolgreich die präparierten Stümpfe überwachsen werden konnten, ist in der Abbildung der mit einem fokussierten Ionenstrahl aufgeschnittenen Struktur 3.14 sichtbar. Die aufgewachsenen Schichten lagern sich ohne größere Defekte übereinander. Die Grenzflächen verlaufen im Wesentlichen parallel zur Kontur des darunter liegenden Pyramidenstumpfes, dessen Facetten hier mit (114)-Ebenen übereinstimmen. Außerdem setzen sich die oberen Kanten des Stumpfes symmetrisch im überwachsenen DBR nach oben hin fort (Verlauf ist durch je zwei parallele Pfeile hervorgehoben).

In dem Querschnitt findet sich lediglich ein Defekt, der sich von der Pyramidenstumpfoberfläche bis zur obersten DBR-Schicht fortsetzt (innerhalb der gestrichelten Ellipse, rechts in der Abbildung). Vermutlich verursachte ein Partikel aus Ätzrückständen diesen Fehler. Ein schwacher kastenförmiger Umriss über dem Stumpf sowie dicke Tröpfchen auf der obersten DBR-Schicht sind Effekte, die dem Aufschneiden mit dem fokussierten Ionenstrahl zuzurechnen sind.

Es stellte sich insgesamt heraus, dass das Überwachsen auf diesen (114)-Facetten deutlich den anderen Ebenen vorzuziehen ist [101]. Aus diesem Grund wurden abgewandelte Pyramidenstümpfe hergestellt, die möglichst viele dieser Facetten aufweisen, siehe Abb. 3.15. Tatsächlich zeigten solche Strukturen einen sehr guten Lichteinschluss (vgl. Abschnitt 3.3.5).



**Abbildung 3.15:** Modifizierter Pyramidenstumpf mit gaubenförmig angeordneten (114)-Facetten zum Überwachsen [101].

# 3.3 Optische Charakterisierung

Nach dem Schwerpunkt der Herstellung im vorherigen Unterkapitel stellt sich die Frage nach den optischen Eigenschaften dieser pyramidalen Strukturen. Zuerst muss ganz grundsätzlich die Existenz optischer Moden mit geeigneten Mitteln nachgewiesen werden. Denn vergleichbare, nasschemisch hergestellte Strukturen wurden bislang nicht erforscht. Aufbauend auf diesen Ergebnissen kann die Reproduzierbarkeit und der Einfluss der Geometrie auf die Modenstruktur, d.h. die Anzahl der Moden und deren Güte, näher betrachtet werden.

## 3.3.1 Nachweis optischer Moden

Bereits bei der Herstellung des Schichtsystems werden in die Pyramidenstrukturen ein oder mehrere Lagen InGaAs-Quantenpunkte in das GaAs eingebettet. Im so genannten Stranski-Krastanov-Wachstumsmodus bilden sich auf Grund einer Gitterfehlanpassung zum darunter liegenden GaAs kleine InGaAs-Inseln [75, 103]. Die einzelnen InGaAs-Inseln sind über eine dünne InGaAs-Benetzungsschicht, die einen Quantentrog bildet, miteinander verbunden und im darüber wachsenden GaAs vollständig eingebettet. Jede InGaAs-Insel bildet einen Quantenpunkt. Die Ubergangsenergien angeregter Elektron-Loch-Paare, die in diesen Inseln lokalisiert sind. werden bestimmt durch die Bandlücke des ternären Halbleiters InGaAs, d.h. dem In-Gahalt, und der Quantisierungsenergie, d.h. der Größe dieser InGaAs-Inseln. In Zusammenhang mit den Pyramiden werden in dieser Arbeit ausschließlich Quantenpunktensembles betrachtet. Eingebettet in die pyramidalen Mikrostrukturen dienen sie bei der Messung der Mikrophotolumineszenz ( $\mu$ -PL) als breitbandige, interne Lichtquelle im Bereich von etwa 900 nm bis 1000 nm. Diese Breitbandigkeit des Ensembles resultiert aus den unterschiedlichen Größen der Quantenpunkte beim Wachstumsprozess; ein einzelner Quantenpunkt erzeugt hingegen scharfe spektrale



Abbildung 3.16:  $\mu$ -PL-Messung einer Pyramide (A0527c\_14-01-03, Kantenlänge 2,3  $\mu$ m) zwischen 80 K und 120 K. Die Peaks in den Spektren verschieben sich mit der Temperatur und lassen sich in zwei Kategorien einordnen: kleine Verschiebungsraten (violett) verhalten sich wie der Brechungsindex und entsprechen deshalb den Moden, größere Verschiebungsraten verlaufen wie die effektive Bandlücke und deuten auf Quantenpunkte bzw. die Benetzungsschicht (Quantentrog) hin.

Linien (vgl. Unterkapitel 4.4).

In einem konfokalen Messaufbau werden die Quantenpunkte in den Pyramiden durch das gleiche Mikroskopobjektiv optisch angeregt und deren Lumineszenz gemessen (Aufbau siehe z.B. [62]). Durch die starke Fokussierung des Anregungslasers auf einen Durchmesser von etwa 2  $\mu$ m wird tatsächlich auch nur eine einzelne Struktur angeregt und detektiert. Abbildung 3.16 zeigt Lumineszenzspektren einer Pyramide bei Temperaturen zwischen 80 K und 120 K. Die breitbandige Emission der Quantenpunkte erzeugt einen starken Untergrund, der in seiner Form von Temperatur und Anregungsstärke abhängt. Stimmt die Wellenlänge mit der Resonanz einer Mode überein, so wird für die Lumineszenz ein erhöhtes Signal erwartet, das sich durch die Ankopplung der Quantenpunkte an die Mode und/oder ein gerichtetes Abstrahlungsverhalten aus dem Untergrund hervorhebt. Gleichzeitig muss bedacht werden, dass in der Pyramide größenordnungsmäßig nur etwa 1000 Quantenpunkte Licht

emittieren. Mit ihrer statistischen spektralen Verteilung können sie einzeln oder als Gruppe ebenfalls an gewissen spektralen Positionen zu einem erhöhten Signal führen. Diese beiden Fälle müssen für den Nachweis optischer Moden unterschieden werden.

Die einfachste Möglichkeit hierzu bietet die Temperaturabhängigkeit [104]: Die Moden sind durch die Geometrie eines Resonators fest gegeben. Temperaturabhängig ändert sich jedoch die optische Weglänge mit dem Brechungsindex, welcher mit steigender Temperatur ebenfalls zunimmt und so eine Rotverschiebung der Resonanzwellenlänge bewirkt [81]. Auch die Emission der Quantenpunkte schiebt temperaturabhängig zu kleineren Energien [88]. Letzteres ist mit der effektiven Bandlücke verknüpft, welche je nach absoluter Temperatur eine zwei- bis viermal größere thermische Rate als der Brechungsindex besitzt [105], d.h. die Quantenpunktemission wird mit der Temperatur viel stärker verschoben als die Maxima der Moden.

In Abbildung 3.16 sind exemplarisch drei gut erkennbare Maxima, die sich in allen Spektren eindeutig wiederfinden, auf die Wellenlänge-Temperatur-Ebene projiziert. In diesem 40-K-Intervall liegen die Punkte jeweils auf einer Geraden, deren Steigung jedoch unterschiedlich ist. Das Maximum unter 900 nm mit einer Steigung von 0,15 nm/K offenbart sich als Benetzungsschicht der Quantenpunkte. Sie verhält sich erwartungsgemäß wie die effektive Bandlücke der InGaAs-Quantenpunkte [88, 106, 107]. Die eingezeichneten Maxima oberhalb von 900 nm zeigen dagegen nur eine Verschiebung von 0,07 nm/K, was also nur halb so viel ist, wie die Verschiebung der Benetzungsschichtemission. Schon hier liegt der Schluss auf Resonatormoden nahe. Doch vergleichen wir zur Sicherheit zusätzlich die Daten über einen größeren Temperaturbereich mit einem anderen GaAs-Mikroresonator:

Die Spektren in Abb. 3.17(a) sind einzeln normiert und farbkodiert. Mit zunehmender Temperatur sinkt die Effizienz der Photolumineszenz durch einen größeren Anteil an nichtstrahlender Rekombination. Jedoch ist die Quantenpunktemission von diesem Abfall der Effizienz stärker betroffen, so dass die Emission der Benetzungsschicht (braun-schwarz gestrichelt) bei hohen Temperaturen dominiert. Auch der Untergrund des Quantenpunktensembles tendiert zu dieser großen Rate. Drei weitere relative Maxima sind in violett hervorgehoben. Eine lineare Mittelung ihrer Verschiebung von 50 K bis 250 K ergibt einen Wert von 0,05 nm/K.

Zum Vergleich ist die Messung eines GaAs-Mikroresonators in Form einer Säule gegenüber gestellt, Abb. 3.17(b). Bei diesem Resonatortyp ist die Hintergrundemission des Quantenpunktensembles stark unterdrückt, so dass die Moden eindeutig identifizierbar sind (vgl. Abschnitt 4.1.2). An den scharfen Moden ist gut zu erkennen, dass die Temperaturverschiebung keineswegs linear ist. Doch zur Unterscheidung zwischen brechungsindex-ähnlichem und bandlücken-ähnlichem Temperaturverhal-



Abbildung 3.17: Thermisches Verhalten: (a) Farbkodierte Photolumineszenzspektren einer Pyramide (A0353JLS29a\_04-06-01b); die violett umschlossenen Bereiche verdeutlichen die Tendenz des thermischen Verhaltens einiger relativer Maxima (stellen sich als Moden heraus). Der Verlauf der Benetzungsschicht ist braun-schwarz gestrichelt hervorgehoben. (b) Temperaturabhängige  $\mu$ -PL-Messung von 10K bis 200K in 5-K-Schritten optischer Moden am Beispiel eines Säulenresonators aus GaAs und lineare Regression der Modenverschiebung zwischen 50K und 200K.

ten ist die lineare Regression an die Verschiebung der Maxima einfacher anwendbar und auf Grund eines Faktors von zwei bis vier auch ausreichend genau.

Gemäß Abb. 3.17(b) lässt sich im Temperaturbereich von 50 K bis 200 K eine durchschnittliche Verschiebungsrate von 0,05 nm/K für optische Resonanzen in einem Säulenresonator im hier relevanten Wellenlängenbereich berechnen. Diese Rate spiegelt den temperaturabhängigen Verlauf des Brechungsindex wieder und ist deshalb auch unabhängig von der Größe bzw. Geometrie des GaAs-Resonators. Der Wert von 0,05 nm/K stimmt hierbei exakt mit der kleinen Rate aus der Pyramidenmessung in Abb. 3.17(a) überein. Die Benetzungsschicht weist dagegen im selben Temperaturbereich eine viel höhere Verschiebungsrate auf (linear approximiert mehr als das Vierfache: 0,22 nm/K). Auf Grundlage dieser Indizien zeigen die Maxima mit kleiner thermischer Verschiebungsrate eindeutig den Charakter resonanter Moden.

### 3.3.2 Reproduzierbarkeit

Pyramiden mit gleichen Herstellungsbedingungen, wie sie in einem Unterfeld von Pyramiden auf einer Probe vorkommen, erscheinen sehr homogen, vgl. Abb. 3.9(b). Typische Pyramiden, in denen Moden nachgewiesen wurden, hatten eine Kantenlänge von etwa 2  $\mu$ m (siehe Abschnitt 3.3.3). Die Spektren fünf beliebiger Pyramiden in solch einem Unterfeld sind in Abbildung 3.18 dargestellt. Die spektralen Positionen, bei denen mittels Temperaturabhängigkeit eindeutig Moden nachgewiesen wurden, sind markiert. Abgesehen vom hochenergetischsten Maximum bei 874 nm, welches durch die Benetzungsschicht verursacht ist, deuten die anderen unmarkierten Maxima oder Schultern auf Quantenpunktcharakter hin oder lassen sich zum Beispiel auf Grund einer Kombination aus beidem nicht zweifelsfrei zuordnen.

Eine Pyramide zeigt so meist drei bis vier Moden in einem Intervall von 60 nm. Um 920 nm könnte man eine Tendenz zu ähnlichen Moden bzw. Doppelmaxima erahnen. Jedoch sind die Spektren nicht direkt vergleichbar. Unter Berücksichtigung der Vakuumwellenlänge (950 nm) und des Brechungsindex von GaAs (3,55) entspricht die Ausdehnung der Pyramide etwa sieben bis acht Wellenlängen im Material. Resonante Moden im untersuchten Spektralbereich besitzen folglich eine hohe Ordnung. Damit wirken sich bereits kleine geometrische Variationen sehr stark auf die energe-



Abbildung 3.18: Messung fünf beliebiger Pyramiden mit einer Kantenlänge von  $2 \,\mu m$ und einem Facettenwinkel von 41° auf einem Unterfeld (A0648d\_12-02, Pyramidennr. im Diagramm) bei 80 K. Die Analyse der temperaturabhängigen Messungen bis 130 K (nicht abgebildet) zeigen eindeutig Modencharakter an den markierten Stellen. Die Maxima bei 874 nm beruhen auf der Benetzungsschicht. Siehe auch [98].



**Abbildung 3.19:** (a) Übersicht der gemessenen Q-Faktoren in Abhängigkeit von der Kantenlänge der Grundfläche. Unterschiedliche Facettenwinkel sind durch die Symbole dargestellt. (b)  $\mu$ -PL-Spektrum der Pyramide (A0527c\_14-01-03) mit dem größten gemessenen Q-Faktor von knapp 700.

tische Lage der Moden aus. Bei linearer Skalierung hätte zum Beispiel eine um 1% ( $\simeq 20 \text{ nm}$ ) größere oder kleinere Pyramide ein um fast 10 nm verschobenes Modenspektrum. Um die Moden ähnlicher Geometrie vergleichbar zu machen, wäre es vielversprechender, kleinere Pyramiden zu untersuchen, weil so die Ordnung der Moden kleiner wird. Gerade im Hinblick potentieller Anwendungen wären diese kleineren Pyramiden mit besser vorhersehbaren Modenstrukturen zweckmäßiger. Betrachten wir nun also die geometrischen Einflüsse auf die Moden.

#### 3.3.3 Modenstruktur und Einfluss der Pyramidengeometrie

Viele  $\mu$ -PL-Spektren verschiedener Pyramiden wurden analysiert. Die kleinsten Pyramiden hatten eine Basislänge, also eine Kantenlänge der Grundfläche, von etwa 350 nm [98]. Sie zeigten jedoch keine Modenstruktur, da ihre Oberfläche vermutlich zu rau war. Ab 1,1  $\mu$ m sind Moden ohne Zweifel zu identifizieren, vgl. Abb. 3.19(a). Die Anzahl der Moden im Spektrum steigt mit der Basislänge. So sind bei 2,0  $\mu$ m (41°) meist drei bis vier Moden zu beobachten (vgl. Abb. 3.18), aber bereits bei 2,4  $\mu$ m (38°) sechs bis sieben (siehe scharfe Maxima in 3.19(b)). Jenseits einer Basislänge von 3  $\mu$ m wurden keine Moden detektiert. Möglicherweise liegen die Moden dann zu dicht beieinander und können vom Untergrund nicht mehr unterschieden werden.

Wie man es für größere Resonatoren erwartet (siehe Unterkapitel 2.1), zeigten die gemessenen Q-Faktoren in Abhängigkeit von der Kantenlänge der Grundfläche eine

Tendenz zu besserem Lichteinschluss für ausgedehntere Pyramiden, Abb. 3.19(a). Über eine mögliche Winkelabhängigkeit lässt sich aus dieser Zusammenfassung der Messergebnisse keine Aussage treffen. Gleichwohl muss hier bemerkt werden, dass für Winkel von z.B. 30° oder 35° keine Moden auffindbar waren; eine mögliche Erklärung lieferen die Simulationen resonanter Moden in Unterkapitel 3.4.

Q-Faktoren größer 600 konnten für drei verschiedene Facettenwinkel von 38° bis 48° gemessen werden. Das  $\mu$ -PL-Spektrum mit dem besten Lichteinschluss von  $Q \approx 700$  zeigt Abb. 3.19(b) für eine Pyramide mit 38° Facettenwinkel und einer Basislänge von 2,4  $\mu$ m. Die Q-Werte wurden mit Hilfe einer Anpassung an eine Lorentzkurve bestimmt.

## 3.3.4 Deckelpyramiden mit erhöhtem Lichteinschluss

Je nach Geometrie wurden an einzelnen Pyramiden auf Braggspiegeln Q-Faktoren bis maximal 700 gemessen (siehe Abb 3.19). Umso erstaunlicher ist die Tatsache, dass die so genannten Deckelpyramiden (Herstellung siehe Abschnitt 3.2.6) ohne angrenzenden Braggspiegel den Lichteinschluss noch übertrumpfen konnten. Die Modenlokalisierung ist zunächst nicht auszumachen, denn es besteht die Möglichkeit einer Kopplung zwischen der oberen und der unteren Pyramide über die verbleibende AlAs-Opferschicht. Die ersten Moden in dieser sanduhrähnlichen Struktur wurden in  $\mu$ -PL-Messungen nachgewiesen, bei denen ausschließlich in der unteren Pyramide Quantenpunkte eingebettet waren. Dieses Ergebnis zeigt gleichzeitig eine Kopplung zwischen der oberen und der unteren Pyramide, da sonst die Quantenpunkte unten nicht an diese Moden gekoppelt hätten. Gleichwohl wurden optische Moden in Strukturen bestätigt, die Quantenpunkte nur in den Deckeln hatten und deren Sockelpyramide direkt mit dem Substrat verbunden war, d.h. keinerlei optischer Einschluss in der unteren Pyramide vorliegen konnte. Daraus ist zu ersehen, dass diese Moden vorwiegend im Deckel lokalisiert sein müssen.

Das Spektrum in Abb. 3.20(a) wurde an einer Deckelpyramide ähnlich der in Abb. 3.10(b) gemessen. Auch hier wurde der Modencharakter der Maxima durch ihr Temperaturverhalten bestätigt. Der *Q*-Faktor der Messung in Abb. 3.20(a) beläuft sich auf bis zu 2950 und damit auf das Vierfache des bisherigen Maximalwerts.

Bei der Messung des  $\mu$ -PL-Signals kommt hinter dem Spektrometer eine CCD<sup>4</sup>-Kamera zum Einsatz (siehe [62]). Das zweidimensionale Messbild besitzt eine spektrale und eine räumliche Auflösung entlang des Spektrometereingangsspalts. Durch eine Verschiebung der Probe senkrecht zum Eingangsspalt kann über die einzeln

<sup>&</sup>lt;sup>4</sup>von engl. *charge coupled device* 



Abbildung 3.20: (a)  $\mu$ -PL-Messung einer Deckelpyramide (A0648i\_u22-01-05) mit scharfen Maxima; die *Q*-Faktoren der markierten Maxima sind angegeben und betragen bis zu 2950, siehe [98]. (b) Farbkodierte relative  $\mu$ -PL-Intensität (blau: minimale Intensität) bei einer Wellenlänge von 976,26 nm mit doppelter Ortsauflösung. Die Umrisse der Pyramide (A0829c\_3I-08) sowie einzelne räumliche Modenmaxima sind klar in der Intensität erkennbar, siehe [101].

aufgenommenen Messbilder auf die räumliche Intensitätsverteilung in zwei Richtungen zurückgerechnet werden. Wählt man nun spektral die Position einer Mode, so entsteht wie in Abb. 3.20(b) eine Intensitätslandkarte. Dabei wurde an Stelle der absoluten Intensität ein relatives, normiertes Signal aufgetragen [101]. Die Grundfläche der Pyramide, die um 45° gedreht gemessen wird, kommt als Kontur in der Intensitätsverteilung zum Vorschein. Darüber hinaus werden mehrere räumliche Maxima bei der Wellenlänge von 976,26 nm beobachtbar. Mit üblichen temperaturabhängigen Messungen konnte gleichzeitig der Modencharakter bestätigt werden. Maxima anderen Ursprungs (z.B. mit quantenpunktartigem Verhalten) zeigten hingegen kein spezielles räumliches Profil.

Die zweidimensionale Intensitätslandkarte der Maxima und das modenartige Temperaturverhalten bestärken sich in diesem Fall gegenseitig. Sie passen genau in das Bild der resonanten Moden in der vertikal gekoppelten Pyramidenstruktur. Ergänzend zu ihrer Existenz gibt die oben beschriebene Methode zusätzlich Aufschluss über die Verteilung der Intensitätsmaxima einer Mode. Auf Grund der gemessenen Landkarte in Abb. 3.20(b) könnte über eine gitterartige, regelmäßige Anordnung der Modenmaxima spekuliert werden.

# 3.3.5 Moden in überwachsenen Pyramidenstümpfen

Nach intensiver Optimierung des Herstellungsprozesses konnten auch in überwachsenen Pyramidenstümpfen Moden nachgewiesen werden. Dem optischen Einschluss liegt ausschließlich die Reflexion an den in allen Richtungen umgebenden Braggspiegeln zu Grunde. Die Güte dieser Moden ist außerordentlich hoch. Zur Geometrie muss angemerkt werden, dass bislang nur in überwachsenen Pyramiden*stümpfen* Resonanzen gefunden wurden – spitz zulaufende Pyramiden zeigten dieses Verhalten nicht. Mögliche Erklärungen hierfür sind die unzureichende Qualität beim epitaktischen Überwachsen der Spitzen sowie optische Verluste in lateraler Richtung (vgl. Simulation spitzer Kegel in Abschnitt 3.4.1).

Abbildung 3.21(a) zeigt ein  $\mu$ -PL-Spektrum eines gemessenen Pyramidenstumpfes, der in allen Richtungen mit 25 DBR-Paaren eingehüllt ist. Die eingeschlossenen Moden heben sich darin auffallend stark von der Hintergrundemission der Quantenpunktensembles ab. Durch Anpassungen an Lorentzkurven wurden in diesem Spektrum Q-Faktoren bis 4200 bestimmt.

Elektronenmikroskopische Aufnahmen von Stümpfen vor dem Überwachsen haben durch die dabei stattfindende Anlagerung von Kohlenstoff auf der Probenoberfläche nachteiligen Einfluss auf den anschließenden Wachstumsprozess. Aufnahmen nach dem Überwachsen geben dagegen wenig Information zur Geometrie, außer wenn die Struktur mit einem fokussierten Ionenstrahl aufgeschnitten und damit zerstört wird.



**Abbildung 3.21:** (a)  $\mu$ -PL-Spektrum eines überwachsenen länglichen Pyramidenstumpfes (A0793f\_13U-4). (b) Aufnahme von Pyramidenstümpfen mit nominell gleichen Abmaßen vor dem Überwachsen (A0793g\_13U).

Deshalb sind in Abb. 3.21(b) nominell gleichgroße Pyramidenstümpfe zu sehen<sup>5</sup>. Bei deren Herstellungsprozess wurde allerdings die AlAs-Opferschicht nicht vollständig abgelöst, so dass die Deckelfläche der Stümpfe nicht plan ist, sondern jeweils eine Erhöhung in der Mitte aufweist.

Die Stümpfe in Abb. 3.21 sind länglich und verglichen mit den bisherigen Pyramidenstrukturen recht groß. Die Facetten bilden (114)-Ebenen im Kristall, worauf das epitaktische Überwachsen besonders gut funktioniert [101]. Manche kleinere Pyramidenstümpfe besaßen sogar Moden mit Q-Faktoren um 5000, allerdings waren diese Maxima weniger stark in den Spektren ausgeprägt. Bei noch kleineren Kantenlängen der Ätzmaske bildeten sich Pyramiden ohne Abstumpfung aus, worin keine Moden detektiert werden konnten.

# 3.4 Simulation resonanter Moden

Die Existenz resonanter Moden in Mikropyramiden konnte mittels optischer Messungen zweifelsfrei belegt werden. Allerdings ist bislang unklar, wieviele Moden sich in Abhängigkeit der Geometrie ausbilden, welche räumliche Intensitätsverteilung und welchen Q-Faktor sie besitzen und wie weit der Lichteinschluss optimiert werden kann. Eine Simulation des Lichteinschlusses soll darüber Aufschluss geben.

Für hexagonale (GaN-) Pyramiden wurde in Ref. [26] ein strahlenoptischer Ansatz entwickelt. Diese Methode der geometrischen Optik lässt jedoch genauso wie die anfänglich eingesetzte Betrachtung metallischer Randbedingungen keine Aussage über die *Q*-Faktoren zu [105, 108]. Eine hypothetische metallische Oberfläche der Pyramide bewirkt zudem eine unrealistisch hohe Abschätzung der Modendichte, da alle Moden gleich gut eingeschlossen werden [109].

Für eine realistische Simulation muss die Grenzfläche zwischen der Pyramide und der Umgebung in das Rechengebiet mit einbezogen werden. Als problematisch erweist sich die Geometrie der Pyramide, denn sie erzwingt auf Grund ihrer quadratischen Grundfläche eine dreidimensionale Berechnung. Letzteres erfordert enorme Rechenkapazitäten, weshalb die simulierte Geometrie auf eine rotationssymmetrische Struktur reduziert wurde. Das bedeutet, dass an Stelle der Pyramiden Kegel simuliert wurden. Diese Vereinfachung lässt sich im Quasi-Zweidimensionalen gut umsetzen und erlaubt so die Berechnung vieler verschiedener Geometrien und Wellenlängenbereiche. Wichtig für eine realistische Q-Faktorenabschätzung ist vor allem die Einbeziehung der Pyramidenumgebung. Sie ist in dem reduzierten 2D-Modell einfach zu integrieren, da sie kaum zusätzliche Ressourcen erfordert.

 $<sup>^5\</sup>mathrm{Die}$ Stümpfe wurden für einen anderen Zweck mit 30 nm Aluminium überwachsen.

## 3.4.1 Finite Differenzen in der Zeitdomäne

#### Simulationsprinzip

Eine Simulation in der Zeitdomäne berechnet ausgehend von einer anfänglichen elektromagnetischen Feldverteilung deren zeitliche Entwicklung mit Hilfe der Maxwell-Gleichungen. Die elektrischen Felder im Rechengebiet werden auf einem würfelförmigen Gitter definiert und berechnet, die magnetischen Felder werden auf einem dazu verschobenen Gitter bestimmt – diese Kombination ist als Yee-Gitter bekannt [110]. Diese Gitteranordnung ist besonders effizient für die Berechnung der Rotationsfelder, wie sie aus den Maxwell-Gleichungen hervorgehen. Der Ort und die Zeit werden diskretisiert, was der Methode den Namen gibt (FDTD von engl. finite difference time domain). Für die Simulation in der Zeitdomäne wurde in dieser Arbeit das am Massachusetts Institute of Technology (MIT) entwickelte Softwarepacket  $MEEP^6$  verwendet [111].

Um eine Feldentwicklung zeitdiskret zu verfolgen, muss ein Anfangsfeld definiert werden. Dafür werden Punktquellen innerhalb oder außerhalb der Resonatorgeometrie eingebaut, die beim Simulationsstart einen (zeitlich) gaußförmigen Puls mit definierter spektraler Position und Breite erzeugen. Die Suche resonanter Moden ist dann ebenfalls auf diesen Spektralbereich beschränkt. Die Energie von Frequenzen, bei denen keine Moden existieren, wird zeitlich recht schnell nach außen abgestrahlt. Diese abgestrahlten Wellen werden am Rand des Rechengebiets in den so genannten perfectly matched layers absorbiert, so dass sie nicht mehr in das Rechengebiet zurückreflektiert werden können [111]. Mit diesem Trick wird ein unendlich ausgedehnter Raum ohne Rückkopplung auf die Struktur implementiert. Nachdem der anfängliche Gaußpuls und die nicht gehaltenen Frequenzen abgeklungen sind, verbleiben nur noch Frequenzen, die von der Geometrie unterstützt werden, d.h. Resonanzfrequenzen. Um sie zu analysieren, wird der zeitliche Feldverlauf an einem oder mehreren Punkten in der Geometrie aufgenommen. Mit Hilfe einer Fouriertransformation des Zeitsignals kann man Rückschlüsse auf die langlebigen Einzelfrequenzen ziehen. Im Zeitsignal ist zudem der zeitliche Abfall der einzelnen Frequenzen enthalten, woraus sich der Q-Faktor berechnen lässt. Das Softwarepacket MEEP beinhaltet eine Filterdiagonalisierungsmethode [112], welches auf eine effizientere Art als die Fouriertransformation die komplexen Resonanzfrequenzen ermittelt. Der Q-Faktor kann so über den Real-  $\Re(\omega_{\text{Res}})$  und Imaginärteil  $\Im(\omega_{\text{Res}})$  der Resonanzfrequenz  $\omega_{\text{Res}}$ bestimmt werden:

$$Q = \frac{\Re(\omega_{\text{Res}})}{2\Im(\omega_{\text{Res}})}.$$
(3.1)

 $<sup>^{6}\</sup>underline{M}IT \underline{E}$ lectromagnetic  $\underline{E}$ quation  $\underline{P}$ ropagation

#### Geometrie und Intensitätsverteilung

Feld- und Intensitätsverteilungen können aus der Simulation direkt exportiert werden. Abbildung 3.22 zeigt zwei Querschnitte durch simulierte Kegel. Die Simulationsgeometrie wurde so gewählt, dass der GaAs-Kegel direkt auf einem planaren GaAs/AlAs-Braggspiegel aufsitzt. Die dünnen Konturen zeigen die obersten Schichten des Braggspiegels, der aus insgesamt 20 Paaren besteht. Für die Rotationssymmetrie der Simulation lässt sich eine azimutale Quantenzahl  $m \in \{0, 1, 2, \ldots\}$  definieren, die die Feldverteilung  $\mathbf{E}(\rho, \phi, z)$  in Zylinderkoordinaten auf einem Umlauf um die Rotationsachse in der Form

$$\mathbf{E}(\rho, \phi, z) = \mathbf{E}(\rho, z) \exp(im\phi) \tag{3.2}$$

beschreibt. Dieser *m*-Wert ist in den Intensitätsbildern angegeben. Die Verteilung der Intensitätsmaxima ist sehr regelmäßig und bestätigt in dieser Form die ortsaufgelöste Detektion des  $\mu$ -PL-Signals der Deckelpyramide in Abb. 3.20(b), die ebenfalls ein sehr regelmäßiges Muster erahnen ließ.

Als wesentliches Ergebnis indizieren die Querschnitte, dass die Intensität fast vollständig im Kegel gehalten wird und nur zu einem geringen Teil im Braggspiegel lokalisiert ist, wo sie nach unten hin schnell abzuklingen scheint.



Abbildung 3.22: Beispiele für Intensitätsverteilungen (schwarz minimale, gelb maximale Intensität) im Kegelquerschnitt (Höhe = Radius =  $0.9 \,\mu$ m) für eine Resonanzmode. mund  $\lambda$  geben die azimutalen Quantenzahlen bzw. Resonanzwellenlänge an. Die Konturen der Grenzschichten sowie der Brechungsindex sind der farbkodierten Intensitätsverteilung überlagert. In (a) ist zusätzlich der Winkel  $\alpha$  eingezeichnet (hier:  $\alpha = 45^{\circ}$ ), der im folgenden als Kegelwinkel bezeichnet wird.

#### Modenspektrum

Der zuvor erwähnte Startpuls in Form einer Gaußkurve sollte bei der Simulation möglichst schmalbandig sein, da ansonsten gehäuft numerische Artefakte in den Lösungen, d.h. den Resonanzfrequenzen, auftauchen. Ein Modenspektrum wie in Abbildung 3.23(a) setzt sich aus mehreren aneinander gereihten, gefundenen Resonanzen zusammen. Außerdem sind hier alle Moden mit verschiedenen m-Werten zusammengefasst. Das Softwarepacket *MEEP* verwendet skalierbare, normierte Einheiten. Über die Längeneinheit a wird mit der Lichtgeschwindigkeit c automatisch die Zeiteinheit a/c festgelegt. Umgerechnet hat der simulierte Kegel mit einem Radius in der Grundfläche von 1,13  $\mu$ m ein vergleichbares Volumen zu den gemessenen Pyramiden.

Im Modenspektrum Abb. 3.23(a) besitzen mehr als die Hälfte aller gefundenen Moden einen Q-Faktor unter 100 und damit unter 10% des maximalen Wertes. Lediglich fünf Moden dominieren das Spektrum herausragend. Vergleichen wir dieses Resultat mit einer gemessenen Pyramide, siehe Abb. 3.23(b). Eindeutig identifizierte Moden sind mit Pfeilen gekennzeichnet. Sechs Moden können gezählt werden und damit etwa genauso viele wie in Abb. 3.23(a) herausstechen. Mit Hilfe der Simulation können die experimentellen Daten wie folgt interpretiert werden: Zwar mag bei der Simulation die Anzahl der Moden im betrachteten Wellenlängenintervall relativ hoch sein, doch nur wenige Moden besitzen einen hohen Q-Faktor und werden damit im Experiment messbar. Alle anderen Niedrig-Q-Moden verschwinden bei der Messung mit ihren breiten Maxima im Untergrund der Quantenpunktemission. Als Folge wäre es am wahrscheinlichsten, dass alle gemessenen modenartigen Maxima tatsächlich einzelne Moden sind und keine Gruppe von Moden, wie zuvor spekuliert [109].



**Abbildung 3.23:** Gegenüberstellung von Kegelsimulation und Pyramidenmessung: (a) Einzelne Resonanzmoden der Simulation eines Kegels auf einem Braggspiegel. (b)  $\mu$ -PL-Messung einer Pyramide auf einem Braggspiegel (A0527c\_14-01-03, siehe auch 3.19(b)).

Außerdem sind die absoluten Werte der Q-Faktoren in Simulation und Experiment in der gleichen Größenordnung, was die Simulation sehr realistisch erscheinen lässt.

#### Abhängigkeit vom Kegelwinkel

Die bisher vorgestellten Simulationsergebnisse sollten beispielhaft einen Eindruck zum Lichteinschluss der Moden vermitteln. Als konkretes Ergebnis können die Moden und die zugehörigen *Q*-Faktoren für eine gegebene Geometrie abgelesen werden. Eine Untersuchung, wie der Winkel den *Q*-Faktor beeinflusst, liegt also auf der Hand.

Für alle Kegelwinkel  $\alpha$  (definiert in Abb. 3.22(a)) wurden die Q-Faktoren der Resonanzmoden für  $m = 0, 1, \ldots, 10$  berechnet. Abbildung 3.24 gibt eine Übersicht aller Q-Werte für Resonanzmoden im spektralen Bereich von 900 bis 1000 nm für Kegel, die etwa der Größe einer Pyramide mit 2  $\mu$ m Kantenlänge entsprechen. Das Gros der Moden befindet sich unterhalb Q = 1000. Im Bereich um  $\alpha = 46^{\circ}$  gibt es jedoch Moden, die sich deutlich von den anderen abheben. Das absolute Maximum befindet sich bei  $\alpha = 45, 5^{\circ}$  mit einem Wert von Q = 3600.

Dieses Ergebnis zeigt, wie kritisch der Q-Faktor der besten Moden vom Winkel abhängt. Obgleich die Simulation auf einem Kegel beruht und damit die absoluten Werte nicht unmittelbar auf eine Pyramide übertragen werden können, muss hier festgehalten werden, dass bereits die Abweichung von einem Grad (z.B. von 46° auf 45°) eine Halbierung des maximalen Q-Faktors bewirken kann. Im Hinblick auf die Pyramide mit quadratischer Grundfläche dürfte ein ähnliches, winkelkritisches Verhalten zu erwarten sein.



Abbildung 3.24: FDTD-Rechnung mit *MEEP*: Jede Raute repräsentiert eine Resonanzmode für  $0 \le m \le 10$ . Der maximale *Q*-Faktor hängt sehr kritisch vom Kegelwinkel  $\alpha$  ab.

Motiviert wurde die Pyramide unter anderem mit einem kleinen zu erwartenden Modenvolumen. Und tatsächlich ergeben Berechnungen für das Modenvolumen nach Gl. 2.5 der besten Moden recht kleine Werte, die in der Größenordnung von  $7 (\lambda/n_{\text{eff}})^3$ (in den üblichen Einheiten der kubischen Wellenlänge im Material) liegen und damit sehr gut vergleichbar mit dünnen Säulenresonatoren sind (siehe Abschnitt 4.2.6).

#### Überwachsene Kegel

An den hergestellten Pyramiden, die auf Braggspiegeln sitzen, konnten *Q*-Faktoren bis 700 gemessen werden, siehe Abb. 3.19. Ein Ansatz, den Lichteinschluss zu verbessern, bestand darin, einen weiteren Braggspiegel darüber zu wachsen (Abschnitt 3.2.7). Mit Hilfe der FDTD-Simulation sollte der Einfluss einer derart konzipierten Struktur berechnet werden.

Vor dem Hintergrund der Schichtauftragung durch epitaktisches Wachsen erscheint ein resultierendes Schichtsystem wie in Abb. 3.25 am plausibelsten. An den Stellen, wo der obere Braggspiegel direkt auf dem unteren liegt, stoßen zwei AlAs-Schichten zusammen.

Beispielhaft für gefundene Moden ist die Intensitätsverteilung in Abb. 3.25. Dabei ist die komplette Intensität in den Braggspiegeln gefangen. Der zu Grunde liegende Kegel zwischen den Braggspiegeln ist annähernd feldfrei. Lediglich die Facetten



Abbildung 3.25: Intensitätsverteilung einer resonanten Mode in einer Kegelstruktur (Höhe = Radius =  $0.9 \,\mu$ m) mit planarem Braggspiegel darunter und einem weiteren dem Untergrund angepassten darüber.

zwischen oberem Braggspiegel und Umgebung zeigen sich hochreflektierend. Der überwachsene DBR auf den Facetten ist für Licht mit senkrechtem Einfall optimiert. Ein für ihn schiefer Einfall, wie er sich in vertikaler Richtung auf dem Bild andeutet, führt zu keiner hohen Reflexion. Zusätzlich scheint der Bereich der aufeinander treffenden AlAs-Schichten wie ein Wellenleiter zu fungieren. Licht wird in großem Maße dadurch seitlich wegtransportiert und geht der Struktur verloren. Die errechneten Q-Faktoren erreichten höchstens Werte von 200 bis 300.

Der Lichtleitereffekt zur Seite könnte erklären, warum im Experiment an solchen Strukturen kaum Intensität gemessen wurde.

#### Einschränkungen und Schwachpunkte der FDTD-Simulation

Ein Grundproblem der FDTD-Simulation ist das quadratische (oder würfelförmige) Rechengitter. Damit können nur rechtwinklige Geometrien exakt wiedergegeben werden. Alles andere, wie z.B. die schiefe Seite des Kegels, wird treppenförmig angenähert. Um die Stufen möglichst klein zu halten, kann das Gitter verfeinert werden. Gleichzeitig mit der räumlichen Auflösung ( $\Delta x, \Delta y, \Delta z$ ) werden aber auch die Zeitschritte feiner:  $\Delta t < \sqrt{\Delta x^2 + \Delta y^2 + \Delta z^2}/c$  [110]. Und so steigt der Ressourcenbedarf enorm an.

Als weiterer Schwachpunkt machte sich eine oft recht große Unsicherheit der Resonanzfrequenzen bemerkbar, teilweise bedingt durch möglichst kurze simulierte Einschwingdauern. Aneinander gereihte disjunkte Frequenzintervalle wiesen als Folge in der Zusammensetzung manchmal dieselbe Mode mit unterscheidlichen Frequenzen doppelt auf<sup>7</sup>, was die Modendichte verfälschte.

## 3.4.2 Simulation mit finiten Elementen

Die zweite verwendete Simulationsmethode beruht auf finiten Elementen (FEM) und umgeht einige Schwachpunkte der FDTD-Methode. Insbesondere wird die Geometrie auf diesem FEM-Rechengitter exakt wiedergegeben. Im Rahmen einer Kooperation mit dem Zuse-Institut in Berlin (ZIB) konnte dabei auf das umfangreiche Softwarepacket *JCMsuite* der JCMwave GmbH zugegriffen werden.

<sup>&</sup>lt;sup>7</sup>Dieser Effekt konnte nur durch systematische Auswertungen eines geometrischen Parameters (z.B. Winkel) im Abgleich mit den Modenbildern festgestellt und herausgerechnet werden.

Kapitel 3. Pyramidale Mikroresonatoren



Abbildung 3.26: Radialer Schnitt durch das Rechengebiet mit finiten Elementen (einzelne Dreiecke). Die Farben der ausgefüllten Flächen bedeuten unterschiedliche Materialien im Innen- und Außenraum. Der Außenraum (gelb umschlossenes Gebiet) sorgt für die transparente Randbedingung.

#### Simulationsprinzip

Aufbauend auf den Maxwell-Gleichungen geht die Simulationsmethode von einer zeitharmonischen Entwicklung der Felder in der Form

$$\mathbf{E}(\mathbf{r},t) = \mathbf{E}(\mathbf{r})\exp(i\omega t) \tag{3.3}$$

mit einer Frequenz  $\omega$  aus [113]. Damit vereinfacht sich die Wellengleichung zu

$$\epsilon^{-1}\nabla \times \mu^{-1}\nabla \times \mathbf{E} - \omega^2 \mathbf{E} = 0, \qquad (3.4)$$

womit gleichzeitig Anschlussbedingungen für die Felder außerhalb des Rechengebiets verknüpft werden [114].

Bevor das Eigenwertproblem aus Gl. 3.4 numerisch gelöst werden kann, wird das Rechengebiet in *finite Elemente* aufgeteilt. Im Zweidimensionalen bilden sie ein flächenfüllendes Netz aus zusammenhängenden Dreiecken (siehe Abb. 3.26), in 3D sind es Tetraeder. Auf jedem finiten Element wird das Feld mit einem Polynom n-ten Grades approximiert. n = 3 stellt dabei einen guten Kompromiss zwischen Genauigkeit und Systemressourcen dar. Das abgebildete Netz sollte nicht über die mögliche Genauigkeit hinwegtäuschen. Adaptive Verfeinerungen sorgen nach jedem Simulationsdurchlauf sukzessive dafür, dass an den entscheidenden Stellen im Rechengebiet die Hälfte aller finiten Elemente in vier kleinere Dreiecke für den nächsten Durchlauf unterteilt wird.

Um die Resonatorstruktur isoliert betrachten zu können, müssen – wie schon im FDTD-Fall – transparente Randbedingungen auf dem Rand des Rechengebiets gefordert werden. Sie werden auch hier durch die so genannten *perfectly matched layers* gewährleistet, welche sich als zusätzliche Schicht im "Außenraum" befinden, vgl. Abb. 3.26. Um die bestmögliche Transparenz zu erzeugen, werden diese Schichten adaptiv angepasst [115, 116]. Untersuchungen beweisen eine schnelle Konvergenz der Lösung [117].

Auch für diese Simulation wird die Pyramide auf einen rotationssymmetrischen Kegel reduziert. Die Geometrie wird dafür auf einem radialen Schnitt definiert, die Symmetrieachse entspricht in Abb. 3.26 der linken Begrenzung des Rechengebiets. Zur Berechnung resonanter Moden muss ein *m*-Wert vorgegeben werden, vgl. Gl. 3.2. Dieser Parameter (sowie besonders die geometrischen Abmaße) können in der Simulation sehr einfach durch die Ansteuerung über ein Skript (MATLAB<sup>®</sup>-Schnittstelle) variiert werden.

#### Einfluss des Kegelwinkels

Um die Ergebnisse der FDTD-Methode zu bestätigen oder zu widerlegen, wurde das Eigenwertproblem mit dem Algorithmus von *JCMsuite* auf die gleiche Geometrie wie zuvor angewandt. Resonante Moden wurden für alle simulierten Kegelwinkel  $30^{\circ} \leq \alpha \leq 60^{\circ}$  gefunden. Die Abbildung 3.27(a) fasst die Ergebnisse zusammen. Tatsächlich stimmt die  $\alpha$ -Abhängigkeit sowohl qualitativ als auch quantitativ sehr gut mit der vorherigen FDTD-Berechnung überein, vgl. Abb. 3.24. Erneut findet



Abbildung 3.27: FEM-Rechnung mit JCMsuite: Jede Raute repräsentiert eine Resonanzmode im Kegel mit dem Radius  $1,13 \,\mu\text{m}$  in der Grundfläche. In (a) sind die Moden bezüglich dem Kegelwinkel  $\alpha$  sortiert (vgl. FDTD-Simulation in Abb. 3.24), in (b) sind die gleichen Moden in Abhängigkeit der azimutalen Quantenzahl m dargestellt.

man im Bereich um  $\alpha = 46^{\circ}$  den höchsten *Q*-Faktor (Q = 3600 wie zuvor) und einen rapiden Abfall zu kleineren und größeren Winkeln.

Trotz vergleichbarer Ergebnisse der beiden Simulationsmethoden bietet die Berechnung mit *JCMsuite* einen ausschlaggebenden Vorteil: Für annähernd gleiche Genauigkeiten benötigt *JCMsuite* nur einen Bruchteil der Rechenzeit. Damit kann ein großer Parameterraum schneller durchfahren werden.

Der optimale Winkel von 46° konnte ebenso für kleinere Kegel bestätigt werden. Die charakteristischen Intensitätsverteilungen resonanter Moden stimmen ebenso mit denen der FDTD-Simulation in Abb. 3.22 überein. Auf eine erneute Darstellung wurde deshalb an dieser Stelle verzichtet.

Als zusätzliche Information sind in Abb. 3.27(b) die Moden nach der azimutalen Quantenzahl m sortiert. Dabei befinden sich die Moden überdurchschnittlicher Q-Faktoren im Bereich  $0 \le m \le 3$ . Auf dieses Ergebnis werden wir bei der Simulation der Deckelkegel später noch einmal zurückkommen.

Rotationssymmetrien begünstigen in Resonatoren die Ausbildung so genannter Flüstergaleriemoden (engl. *whispering gallery modes*) [118]. Moden hoher *m*-Werte tendieren dabei zu besonders hohen *Q*-Faktoren. Die besten Moden in Abb. 3.27(b) besitzen dagegen kleine *m*-Werte und Intensitätsmaxima nahe oder auf der Rotationsachse, vgl. Abb. 3.22. Möglicherweise erfahren Moden mit großem *m*, deren Intensitätsmaxima in der Regel weiter von der Rotationsachse entfernt sind, besonders hohe Verluste in radialer Richtung, z.B. durch die obersten Schichten des Braggspiegels, der seitlich wie ein Wellenleiter fungieren kann (vgl. Abb. 3.25).

#### Einfluss des Braggspiegels unter dem Kegel

In realen Strukturen werden die obersten Paare des Braggspiegels um die Pyramide weggeätzt, vgl. Abb. 3.9. Um diesen Einfluss des Braggspiegels unter dem Kegel zu testen, kann er (zumindest in der Simulation) nur so groß wie dessen Grundfläche gewählt werden, siehe Abb. 3.28(a).

Unter diesen Umständen verschiebt sich der Bereich maximaler Q-Faktoren leicht von 46° (vgl. Abb. 3.27(a)) zu 48°, siehe Abb. 3.28(b). Eine einzelne Mode weist hier sogar Q = 5100 auf. Neu im Vergleich zum unendlich ausgedehnten DBR finden sich für  $54^{\circ} \leq \alpha \leq 60^{\circ}$  Moden mit Q-Werten bis 1400. Bei letzteren handelt es sich vorzugsweise um Moden mit hoher azimutaler Quantenzahl m. Nach dieser Simulation zu beurteilen, besitzen diese durch den Wegfall des unendlich ausgedehnten DBRs, der sonst direkt auf den Kegelrand trifft, einen geringeren Verlustkanal.

Der Einfluss der Anzahl der Braggspiegelpaare erwies sich als nachrangig. Für ein-



Abbildung 3.28: FEM-Simulation eines Kegels auf einem an die Kegelgrundfläche angepassten DBR: (a) Geometrie mit finiten Elementen; die oberen 10 DBR-Paare sind nur so groß wie die Grundfläche des Kegels, die unteren 10 DBR-Paare sind wie zuvor unendlich ausgedehnt. Die Grenze zwischen Struktur und Umgebung (Luft: grün im Innenraum, violett im Außenraum) ist mit einer blauen Linie hervorgehoben, alle anderen Farben entsprechen Abb. 3.26. (b-c) Jede Raute repräsentiert eine Resonanzmode im Kegel mit dem Radius 1,13  $\mu$ m in der Grundfläche, sortiert nach dem Kegelwinkel  $\alpha$  bzw. der azimutalen Quantenzahl m.

zelne Moden konnte der Q-Faktor bei einer Anderung des Braggspiegels von 20 auf 35 Paare maximal um 20% gesteigert werden. Damit ist der Braggspiegel zumindest in vertikaler Richtung nicht der begrenzende Verlustkanal für den optischen Einschluss.

#### Vertikal gekoppelte Kegel

Die vertikal gekoppelten Pyramiden bewiesen im Experiment überraschend hohe Q-Faktoren (siehe Abschnitt 3.3.4). Zur Simulation wurde die Struktur wie zuvor auf eine Rotationssymmetrie reduziert, vgl. Abb. 3.29(a). Zu Beginn der Simulationsreihe wurde in *JCMsuite* kein Eigenwertproblem gelöst, sondern ein Streuproblem berechnet. Diese Methode erlaubt einen groben Überblick über das spektrale Verhalten bzgl. Resonanzen. Dabei wird die Struktur mit einer ebenen Welle monochromatischen Lichts angeregt und die Intensität in den verschiedenen Bereichen ausgewertet<sup>8</sup>. Wird sukzessiv ein Wellenlängenbereich abgetastet, ergibt die wel-

<sup>&</sup>lt;sup>8</sup>Jede Farbe in Abb. 3.29(a) entspricht einem eigenen Bereich. Der obere und untere Kegel sind bzgl. ihren Materialeigenschaften zwar identisch, können aber durch getrennt definierte Bereiche unabhängig voneinander ausgewertet werden.



Abbildung 3.29: Vertikal gekoppelte Kegelstruktur: (a) Geometrie mit finiten Elementen am Beispiel  $\alpha = 30^{\circ}$ ; (b) Moden der Simulation zeigen ausschließlich im oberen Kegel Intensitätsmaxima ( $\alpha = 40^{\circ}$ ).

lenlängenabhängige Intensität ein Spektrum [114]. Ähnlich einem  $\mu$ -PL-Spektrum entspricht ein Maximum dabei einer Mode. Die Information über die *m*-Zahl geht beim Streuproblem allerdings verloren.

Wie sehr sich die Intensität einer gefundenen Mode im oberen Kegel konzentriert, ist der Abbildung 3.29(b) zu entnehmen. Damit ein Q-Faktor bestimmt werden kann, müssen entsprechend viele einzelne Wellenlängen beim Streuproblem berechnet werden. Erst dann ist es möglich, den Verlauf des Spektrums im Bereich der Maxima an Lorentzkurven anzupassen. Eine erste Abschätzung ergab einen Q-Faktor von etwa 10.000. Dieser Wert soll im Folgenden durch Eigenwertberechnungen bestätigt werden. Außerdem sollen diverse geometrische Parameter variiert werden.

Als völlig irrelevant stellte sich die Anzahl der Braggspiegelpaare unter dem unteren Kegel heraus. Er konnte genauso gut entfernt werden. Dieses Verhalten deckt sich mit der ursprünglichen Annahme, dass die Moden ausschließlich im oberen Kegel lokalisiert sind.

Der Kegelwinkel  $\alpha$  wurde für den oberen und unteren Kegel gleichermaßen geändert. Eine deutliche Abhängigkeit wie für den Kegel auf dem DBR konnte nicht gefunden werden. Vielmehr gibt es für alle simulierten Winkel Moden mit  $0 \le Q \le 200.000$ . Lediglich sieben einzelne Moden heben sich unregelmäßig davon ab, wobei es sich aber auch um numerische Artefakte handeln könnte.

Bei der Sortierung der Moden nach der azimutalen Quantenzahl m hingegen zeichnet sich ein interessanter Effekt ab. Für größere m-Werte existieren Moden mit höherem Q-Faktor, siehe Abb. 3.30(b). Der Übergang ist sehr drastisch, weshalb hier eine logarithmische Auftragung gewählt wurde. Für m > 14 gibt es nur sehr wenige (bis



Abbildung 3.30: *Q*-Faktoren resonanter Moden in vertikal gekoppelten Kegeln (Radius 1,0  $\mu$ m): (a) Abhängigkeit von Kegelwinkel  $\alpha$ , (b) Abhängigkeit von azimutaler Quantenzahl *m* (logarithmische Auftragung).

einzelne) Moden, dafür durchweg mit  $Q \simeq 170.000$ . Für m < 7 fällt der maximale Q-Faktor dagegen unter 10.000.

Abbildung 3.29(b) legt bereits nahe, dass die Moden nur im oberen Kegel eingeschlossen sind. Quantitative Aussagen lassen sich mit detailierten Analysen der Moden aus Abb. 3.30 treffen. Denn mit steigendem m fällt das Intensitätsverhältnis unterer Kegel zu oberer Kegel gravierend ab, im Detail entspricht die Intensität im unteren Kegel bereits für m = 3 (m = 5) nur noch maximal 3% (0,3%) der Intensität im oberen Kegel, d.h. die Moden werden praktisch nur im oberen freistehenden Kegel eingeschlossen. In einer Simulation müsste folglich nur der obere Teil der Struktur berücksichtigt werden, wodurch sich der Simulationsaufwand erheblich reduzieren ließe. Und tatsächlich liefert die Simulation eines freistehenden Kegels vergleichbare Resultate wie in Abb. 3.30. In Abbildung 3.31 ist die Intensitätsverteilung einer dieser typischen Moden mit hoher azimutaler Quantenzahl (m = 15) und gutem Lichteinschluss (Q = 74.000) geplottet. Die Spanne der Q-Faktoren und verschiedenen Moden erwies sich in der Simulation für den freistehenden Kegel größer als für den Deckelkegel. Wie schon diskutiert, kann eine solche Mode wiederum den



**Abbildung 3.31:** Intensitätsverteilung für einen freistehenden Kegel (Radius 1,13  $\mu$ m in der Grundfläche (oben),  $\alpha = 48^{\circ}$ , m = 15, Resonanzwellenlänge  $\lambda = 1058$  nm, Q = 74.000.

Flüstergaleriemoden rotationssymmetrischer Resonatoren zugeordnet werden.

#### Problem der Geometriereduktion auf Rotationssymmetrie

Durch die Rotationssymmetrie werden im Allgemeinen Flüstergaleriemoden begünstigt, welche für hohe m-Werte zu großen Q-Faktoren tendieren.

Für den einfachen Kegel auf einem Braggspiegel bewiesen Moden mit  $m \leq 2$  den besten optischen Einschluss mit regelmäßigen Mustern der Intensitätsmaxima (vgl. Abb. 3.22). Selbst im Hinblick auf die Messungen erscheinen die damit verbundenen Simulationsergebnisse sehr plausibel zu sein.

Problematischer gestaltet sich die Übertragbarkeit von Flüstergaleriemoden hoher Ordnung, z.B. m > 10 wie in Abb. 3.31, auf die Geometrie im Experiment. Die quadratische Grundfläche der Pyramiden wird kaum (Kegel-)Moden wie in Abb. 3.31 zulassen bzw. auf Grund der zusätzlichen Kanten an der Pyramide mit erheblich größeren optischen Verlusten behaftet sein. Da in dieser freistehenden (Kegel-)Form die Mode am Rand der Struktur lokalisiert ist (siehe Abb. 3.31), gewinnt die Form der Grundfläche – kreisförmig oder quadratisch – offenbar an Bedeutung. Eine Q-Faktorenabschätzung der Moden in der freistehenden Form ist damit weit stärker fehlerbehaftet als für die Pyramiden, die direkt auf dem Braggspiegel sitzen. Für die freistehende Struktur wäre somit die Berücksichtigung aller drei Raumdimensionen empfehlenswert.

Von der anderen Seite betrachtet, könnte man im Experiment auch versuchen, einen sehr vielversprechenden Kegel zu realisieren. Die Umsetzung gestaltet sich jedoch schwierig, da GaAs anisotrop geätzt wird. Zumindest eine Annäherung an den Kegel mit einem regelmäßigen Achteck in der Pyramidengrundfläche sollte aber mit dem vorhandenen Ätzverfahren machbar sein.

# 3.5 Fazit

Als grundlegende Voraussetzung potentieller Anwendungen der Pyramiden galt der experimentelle Nachweis optischer Resonatormoden. Im Rahmen dieser Arbeit gelang dies zum ersten Mal an GaAs-Mikropyramiden, die durch ein nasschemisches Ätzverfahren hergestellt wurden. Q-Faktoren bis 700 konnten an Pyramiden auf GaAs/AlAs-Braggspiegeln gemessen werden. In weiteren pyramidalen Strukturen konnten sogar Moden mit Werten bis  $Q \simeq 3000$  bzw.  $Q \simeq 5000$  detektiert werden.

Vor dem Hintergrund der Simulationsergebnisse lassen sich die einfachen Pyramiden

auf DBRs sicherlich noch weiter optimieren, denn der Q-Faktor hängt dort entscheidend vom Kegelwinkel ab. Abweichungen von einem Grad können in der rotationssymmetrischen Simulation den maximalen Q-Faktor der Moden halbieren. Bei der experimentellen Realisierung zahlt sich dafür die nasschemische Herstellungsmethode der Pyramiden aus. Denn im Gegensatz zu selbstorganisiert gewachsenen Pyramiden kann der Facettenwinkel in einem großen Bereich von mindestens 20° bis 60° beliebig durch das Mischungsverhältnis der Ätzlösung eingestellt werden. Für die Kegel in der Simulation konnten Werte bis Q = 3600 berechnet werden. Dieser Wert ist auf Grund der höheren Symmetrie in Kegeln vermutlich auch die Obergrenze für Pyramiden vergleichbarer Größe (ca. 2  $\mu$ m Kantenlänge). Verwunderlich erscheint dagegen ein Bericht, wonach in viel kleineren ZnS-Pyramiden mit nur 800 nm Kantenlänge Q-Faktoren bis 5000 gefunden wurden [25]. Denn ZnS sollte mit seinem kleinereren Brechungsindex Licht tendenziell schlechter einschließen.

Sehr hohe Q-Faktoren konnten an Deckelpyramiden gemessen werden. Dabei handelt es sich um freistehende Pyramiden bzw. den oberen Teil vertikal gekoppelter Pyramidenstrukturen. Moden erreichten darin  $Q \simeq 3000$ . Sowohl die Messungen als auch die Simulation legen nahe, dass die Moden tatsächlich nur im Deckel lokalisiert sind. Jedoch sind die Simulationsergebnisse des frei schwebenden Kegels nicht so einfach übertragbar wie im Falle des Kegels auf dem DBR, da die Grundfläche (kreisförmig oder quadratisch) vermutlich entscheidend für die Art der sich ausbildenden Moden ist. Der freistehende Kegel in der Simulation begünstigt in besonderem Maße Flüstergaleriemoden mit Q-Faktoren bis 200.000 auf der Größenskala von etwa 1  $\mu$ m Höhe und Grundflächenradius. Flüstergaleriemoden wären in einer Pyramide jedoch nur in stark modifizierter Form mit größeren optischen Verlusten zu erwarten. Durch nasschemisches Ätzen lässt sich keine Kegelform erreichen, dafür ist die Anisotropie im GaAs zu groß. Bestenfalls ließen sich Scheibenresonatoren mit kleiner Höhe realisieren, so dass durch einen hinreichend kurzen Atzprozess die Anisotropie kaum zum Tragen kommt. Allerdings könnte eine Pyramide prozessiert werden, deren Grundfläche aus einem (regelmäßigen) Oktagon besteht. Diese Form käme dem Kegel schon sehr nah und könnte die Möglichkeit eröffnen, Mikroresonatoren mit Q-Faktoren bis in der Größenordnung von 100.000 herzustellen. Darüber hinaus konzentriert sich die Intensität dieser Moden in der freistehenden Mikrostruktur, so

Bei Braggresonatoren dringt das Feld der Mode teils recht weit in den Braggspiegel ein und vergrößert damit das Modenvolumen. In puncto Resonatorgüte zeichneten sich jedoch gerade mit Braggspiegeln ummantelte Pyramidenstümpfe als gute optische Resonatoren aus. Vor allem auf bevorzugten Kristallebenen gelang ein defektarmes, epitaktisches Überwachsen der Facetten. Resonatorgüten bis  $Q \simeq 5000$  wurden daran gemessen und so eröffnet sich ein weites Feld neuer, Erfolg versprechender,

dass das Modenvolumen dabei recht klein im Vergleich zu Braggresonatoren ist.

pyramidaler Resonatorstrukturen.

Nicht zuletzt zeichnet die Herstellungsmethode mit den eingebauten Quantenpunkten neue Wege auf. In einer Pyramide kann die Anzahl der Quantenpunkte über die relative Höhe zur Pyramidenspitze (unabhängig von der Pyramidenorientierung) kontrolliert werden. Über eine Ankopplung der Quantenpunktemission an eine Pyramidenmode könnte prinzipiell ein effizienter Einzelphotonenemitter hergestellt werden. Eine elektrische Kontaktierung insbesondere der Deckelpyramiden wäre über frei stehende Brücken, wie sie zwischen zwei Deckelpyramiden schon realisiert wurden, möglich. Aus diesen Bausteinen wäre eine Diode als Einzelphotonenquelle denkbar.

Insgesamt weisen diese neuen Pyramidenstrukturen ein großes Potenzial für Mikroresonatoren mit hohem *Q*-Faktor und – insbesondere bei der freistehenden Form – kleinem Modenvolumen auf. Selbst eine Verbindung von Deckelpyramiden konnte realisiert werden, so dass z.B. eine Kopplung von Quantenpunkten über derart gekoppelte Resonatoren prinzipiell denkbar wäre. Gleichzeitig erscheint die pyramidale Form geeignet für Anwendungen mit einzelnen Quantenpunkten, wie sie für Einzelphotonenemitter erforderlich sind.

# Kapitel 4

# Säulenförmige Resonatoren

Unsere Hauptmotivation zur Untersuchung von Mikroresonatoren liegt in dem Zukunftskonzept, räumlich getrennte Quantenpunkte, in denen Quantenbits in Form von Spinzuständen präpariert werden könnnen, über optische Moden eines Mikroresonators kohärent aneinander zu koppeln. Zum Erreichen dieses Ziels ist eine starke Kopplung zwischen den beteiligten Quantenpunkten und der Resonatormode notwendig. Darüber hinaus muss eine Möglichkeit gegeben sein, diese Kopplung einund auszuschalten.

Sehr viel versprechend ist hier der Ansatz, gekoppelte Mikroresonatoren zu verwenden. Diese gekoppelten Mikroresonatoren besitzen den Vorteil, dass einzelne Quantenpunkte, bzw. Spinzustände darin, einfacher individuell addressierbar wären und so unabhängig voneinander manipuliert werden könnten.

Im vorangegangenen Kapitel wurde deutlich, dass sich die nasschemisch hergestellten Mikropyramiden prinzipiell eignen, verbundene Resonatoren zu realisieren. Jedoch sind die Modenstrukturen sowohl einzelner als auch verbundener Pyramiden noch nicht so intensiv erforscht und die *Q*-Faktoren bislang nicht ausreichend optimiert.

Bei Säulenresonatoren ist man in Bezug auf das Verständnis der Moden und deren genauere Erforschung schon weiter vorangeschritten: Erste alleinstehende Resonatorsäulen wurden bereits 1996 gefertigt und waren damals schon in sehr gutem Einklang mit theoretischen Ergebnissen [119]. Auf Grund ihrer Bauweise als so genannte  $\lambda$ -Kavität (vgl. Abb. 4.1) sind die Moden viel einfacher zu verstehen: In vertikaler Richtung bildet sich auf der Länge einer Wellenlänge  $\lambda$  genau eine stehende Welle aus, eingeschlossen zwischen den Braggspiegeln, die den oberen und unteren Teil der Säule formen; lateral wird das Licht durch den hohen Brechungsindex des GaAs geführt, wodurch sich wie in einem Wellenleiter eine fundamentale Mode und mehrere höhere Moden ausprägen.



Abbildung 4.1: Elektronenmikroskopische Aufnahme eines Säulenresonators mit 10  $\mu$ m Durchmesser. (a) Die Säule ist herstellungsbedingt umringt von einem Graben. (b) Die Nahaufnahme zeigt das Schichtsystem aus GaAs (hell) und AlAs (dunkel). Zwischen dem oberen und dem unteren Braggspiegel befindet sich die GaAs-Kavität mit der Dicke einer Wellenlänge in GaAs ( $\lambda$ -Kavität).

Um das angestrebte Ziel der Quantenpunktkopplung zu erreichen, müssen zumindest folgende Herausforderungen bewältigt werden:

- 1. Verständnis der Modenstruktur in einzelnen und gekoppelten Mikroresonatoren einschließlich der eindeutigen Zuordnung der experimentell gefundenen Moden mit der Theorie,
- 2. Abschätzung technologisch erreichbarer Q-Faktoren und Modenvolumina bzw. Berechnung geometrischer Einflüsse auf diese Kennzahlen,
- 3. experimentelle Realisierung der spektralen Anpassungsmöglichkeit zwischen Quantenpunktemission und Resonatormode(n),
- 4. Nachweis der starken Kopplung zwischen Quantenpunkten und Resonatormoden, u.U. Vergrößerung des Dipolmoments der Quantenpunkte, sowie
- 5. Konzeption und Realisierung der Präparation von Spinzuständen in den Quantenpunkten der (gekoppelten) Mikroresonatoren.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden insbesondere die Punkte eins bis drei intensiv erforscht. Die Modenstruktur der (gekoppelten) Säulen sowie diverse Einflüsse der Geometrie auf den Q-Faktor der Moden liefern dabei grundlegende Erkenntnisse für die weiteren Herausforderungen. Im einzelnen gestaltet sich der Aufbau des Kapitels über die Resonatorsäulen wie folgt:

In Relation zum ersten Aspekt behandelt das Unterkapitel 4.1 die einzelne Resonatorsäule als Grundlage, ihre Herstellung und die experimentelle Analyse der Moden. Das Unterkapitel 4.2 deckt den zweiten Punkt ab und geht den maximal erreichbaren *Q*-Faktoren in einem Säulenresonator auf den Grund. Außerdem werden diverse Einflüsse der Geometrie untersucht.

Als Erweiterung und gleichzeitig aufbauend auf der einzelnen Säule werden ebenfalls gemäß Punkt eins im Unterkapitel 4.3 gekoppelte Säulen entworfen und realisiert. Ein besonderes Augenmerk liegt hier auf der Unterscheidung der Moden nach der Art ihrer räumlichen Verteilung.

Letztendlich kommen im Unterkapitel 4.4 einzelne Quantenpunkte ins Spiel und damit die Forderung aus Punkt drei. Beobachtet wird der Einfluss von Temperatur und elektrischem Feld auf die Emission einzelner Quantenpunkte, die in den Säulen eingebettet sind.

# 4.1 Realisierung und Untersuchung einzelner Säulen

## 4.1.1 Herstellung

Als Ausgangsmaterial für die Resonatorsäulen dient ein Schichtsystem, hergestellt in der Molekularstrahlepitaxieanlage in Kooperation mit der CFN-Nachwuchsgruppe von Daniel Schaadt. Wie in Abb. 4.1(b) zu sehen, bilden die beiden Braggspiegel, bestehend aus GaAs und AlAs, den größten Anteil des Schichtsystems. Sie werden nur durch eine  $\lambda$ -Kavität aus GaAs getrennt.

Ausgehend von der  $\lambda$ -Kavität erfährt das Licht in vertikaler Richtung an der ersten AlAs-Schicht des Braggspiegels eine Reflexion am optisch dünneren Medium, d.h. die stehende Welle im Resonator besitzt an dieser Grenzschicht ein Maximum im elektromagnetischen Feld. Ein weiteres Maximum liegt deshalb genau in der Mitte der  $\lambda$ -Kavität. An dieser Stelle werden bereits beim Wachstumsprozess InAs-Quantenpunkte eingebaut, denn sie können so am besten an die Resonatormoden ankoppeln (vgl. Gl. 2.8). Jedoch lediglich im letzten Teil des Kapitels werden einzelne Quantenpunkte beobachtet, ansonsten werden die Säulenresonatoren als Ganzes charakterisiert. In diesem Fall fungieren die eingebetteten Quantenpunkte als breitbandige, interne Lichtquelle für Photolumineszenzmessungen. Ihre Emission liegt zwischen 900 und 1000 nm, und die Dichte der Quantenpunkte beträgt etwa  $10^{10}$  cm<sup>-2</sup> [103].

Beim Entwurf des Resonators wurde für die fundamentale Resonatormode eine Wel-



Abbildung 4.2: Herstellung einer Resonatorsäule aus dem planaren Schichtsystem: Ein fokussierter Ionenstrahl wird auf Kreisbahnen um die spätere Säule bewegt. Durch das Einschlagen der Ga<sup>+</sup>-Ionen wird Material abgetragen. Von Stufe (1.) bis (3.) wird der Ionenstrom von 5 nA über 500 pA auf 100 pA gedrosselt. Dabei ist die Abtragung im letzten Schritt so fein, dass die Mantelfläche der Säule poliert wird.

lenlänge in der Mitte der Quantenpunktemission ausgewählt, z.B. 950 nm bei tiefen Temperaturen um 10 K. Bereits bei den Pyramiden konnten wir beobachten, wie die Resonanzwellenlänge mit dem temperaturabhängigen Brechungsindex skaliert (vgl. Abb. 3.17). Dieser Effekt muss in die Berechnung der Schichtdicken eingehen, weil für die Temperaturdifferenz zwischen 10 K und Raumtemperatur der Unterschied in der Resonanzwellenlänge bereits 15 nm beträgt. Basierend auf den leicht verfügbaren Literaturwerten zu den Brechungsindizes bei Raumtemperatur von GaAs und AlAs bei 965 nm wurden für das Schichtsystem die nominellen Dicken bestimmt:

Schicht	${ m Dicke(nm)}$
GaAs im DBR	68,4
AlAs im DBR	$81,\!6$
GaAs in $\lambda\text{-Kavität}$	276,4

Für epitaktische Schichten ist mit einer Dickentoleranz von etwa  $\pm 2\%$  zu rechnen. Bevor auf der Probe einzelne Säulen geformt werden, kann in Reflexion oder Photolumineszenz die Lage der Resonanz am planaren Schichtsystem überprüft werden [62].

Um die Säulen zu formen, werden Techniken der Mikrostrukturierung angewandt. Zwei unterschiedliche Trockenätzverfahren eignen sich besonders für diesen Zweck: (i) reaktives Ionenätzen oder (ii) das Ätzen mit fokussiertem Ionenstrahl. In (i) sorgt eine chemische Komponente (bei GaAs/AlAs typischerweise Chlor) für eine erhöhte Abtragungsrate, allerdings ist für diese Methode eine Ätzmaske erforderlich [57]. Ein fokussierter Strahl aus Galliumionen (ii) kommt dagegen ohne Ätzmaske aus, weil sein Weg direkt angesteuert wird. An den Stellen, wo die Ionen auf die Probe treffen, werden Atome herausgelöst – vergleichbar mit einem Fräsvorgang auf kleinster Größenskala [58, 59].

Im CFN steht eine Fokussierte-Ionenstrahl-Anlage zur Verfügung. Durch eine ent-

sprechende Ansteuerung des Ionenstrahls können mit ihr sowohl einzelne als auch gekoppelte Resonatorsäulen realisiert werden. Abbildung 4.2 zeigt den Fortschritt bei der Entstehung einer Säule. Der Strahl wird auf immer kleiner werdenden Kreisbahnen um die Säule herumgeführt. Bei der Abtragung werden zuvor freigelegte Bereiche teilweise wieder verschüttet, wodurch bei der Ansteuerung von außen nach innen das Material am Ende trichterförmig um die Säule liegen bleibt (siehe Abb. 4.2). Der Ionenstrom bestimmt die Abtragungsrate, aber auch das Auflösungsvermögen. Ein großer Strom erledigt den Aushub recht schnell, allerdings induziert er wie jedes Ionenbombardement in der Kristallstruktur des monolithischen Schichtsystems Defekte. Um die Dicke der Defektzone innerhalb der Säule zu minimieren, aber auch, um ein besseres Ergebnis beim Polieren der Mantelfläche der entstehenden Säule zu erhalten, wird der Ionenstrom bei der Säulenherstellung stufenweise reduziert, siehe Abb. 4.2.

Für eine Probe mit 25 DBR-Paaren oben und unten muss für den Ionenstrahl eine Flächendosis in der Größenordnung von  $4 \cdot 10^{11} \,\mathrm{pAs/cm^2}$  gewählt werden, damit der untere Braggspiegel komplett freigelegt wird. Bei gleichbleibendem Ionenstrom wird die Säule mehrmals von außen nach innen mit einem bestimmten Abstand der einzelnen Kreislinien umfahren; der gesamte Fahrweg bildet so einen Kreisring. Für die drei nach innen kleiner werdenden Ionenströme gibt es so drei ineinanderliegende Kreisringe mit gewissem Überlapp. Die folgende Tabelle soll einen Eindruck über die Ätzparameter vermitteln:

Kreisring	radiale Ringbreite	$Ga^+$ -Strom	Linienabstand	Ätzdauer
äußerer	$15\mu{ m m}$	$5\mathrm{nA}$	$75\mathrm{nm}$	ca. $15 \min$
$\operatorname{mittlerer}$	$5\mu{ m m}$	$500\mathrm{pA}$	$55\mathrm{nm}$	ca. $30 \min$
innerer	$1,5\mu{ m m}$	$100\mathrm{pA}$	$30\mathrm{nm}$	ca. $50 \min$

Die Ansteuerung des Ionenstrahls um die spätere Säule nimmt also alleine schon anderthalb Stunden in Anspruch. Aber gerade der letzte zeitraubende Schritt, der innere Kreisring, ist mit seinem Poliereffekt für die Anwendung der Säule als Mikroresonator von besonderer Bedeutung: Die Unebenheiten an der Oberfläche und die Defekte in der kristallinen Säule können auf diese Weise minimiert werden.

#### Reproduzierbarkeit und Steilheit der Seitenwände

Der Fahrweg des Ionenstrahls definiert den späteren Durchmesser der Säule. Auf Grund der rein physikalischen Abtragung ist die Seitenwand der Säule etwas geneigt, so dass die Säule oben schmäler ist als am Sockel, siehe Abb. 4.3. Bei der Vermessung der Säule an Hand elektronenmikroskopischer Aufnahmen muss des-


Abbildung 4.3: Herstellungsbedingte Seitenwandverkippung an einer Säule und Messposition für den Durchmesser der  $\lambda$ -Kavität (A0479a\_P1, Aufnahme der Säule unter 54° Kippung).

halb darauf geachtet werden, den Durchmesser auf der richtigen Höhe zu ermitteln, d.h. genau an der  $\lambda$ -Kavität zwischen dem oberen und unteren Braggspiegel.

Die Verkippung der Seitenwand ist in Abb. 4.3 relativ groß. Normalerweise bewegt sich der Winkel zwischen 0,5 und 2,0°; bei der Berechnung muss der Betrachtungswinkel (hier 54°) entsprechend berücksichtigt werden. Dass der Winkel links größer als rechts ist, konnte oft festgestellt werden<sup>1</sup>. Diese Asymmetrie könnte theoretisch durch ein ungleichförmiges Profil des Ionenstroms verursacht werden, wahrscheinlicher ist aber eine kleine Drift des Probenhalters während des lang andauernden Ätzvorgangs, z.B. durch minimale Temperaturveränderungen.

Der Enddurchmesser der Säule lässt sich durch den Fahrweg des Ionenstrahls gut kontrollieren. Abweichungen unter  $\pm 100$  nm können bewerkstelligt werden.

# 4.1.2 Durchmesserabhängige Resonanzen

In lateraler Richtung funktioniert der optische Einschluss in der Säule durch den hohen Brechungsindex des GaAs relativ zur Umgebung (Luft/Vakuum). Genau wie in einer Faser mit kreisförmigem Querschnitt existieren neben der fundamentalen Mode I auch Moden mit höherer Ordnung [62, 119].

In einem konfokalen Messaufbau wird die Mikrophotolumineszenz ( $\mu$ -PL) bei Temperaturen um 10 K gemessen. Die eingebauten Quantenpunkte werden mit einem

 $<sup>^{1}</sup>Rechts$  und *links* bezieht sich hier auf die feste Konfiguration in der Ionenstrahlanlage, bei der die gefertigte Säule immer aus derselben Richtung unter einem Winkel von 54° (Winkel zwischen Ionenkanone und Elektronenkanone) betrachtet wurde.



Abbildung 4.4:  $\mu$ -PL-Spektrum einer Säule mit 5,5  $\mu$ m Durchmesser und 20 Braggspiegelpaaren (A0310). Die niedrigsten Moden sind mit I bis III gekennzeichnet. Die Pfeile markieren all jene Moden, die auch in Abb. 4.5 mit Kreuzen eingetragen sind.

Titan-Saphir-Laser ( $\lambda \approx 820 \text{ nm}$ ) angeregt. Das  $\mu$ -PL-Spektrum einer einzelnen Säule besteht aus mehreren eindeutigen Maxima, markiert mit Pfeilen in Abb. 4.4. Die Hintergrundemission ist bei diesem Resonatortyp stark unterdrückt und lässt sich kaum beobachten.<sup>2</sup> Zunächst fällt auf, dass die Grundmode I mit der kleinsten Energie bei 933,9 nm liegen und damit um 1,7% von der 950-nm-Designwellenlänge abweicht. Hier spielen zweierlei Effekte eine Rolle: Zum einen verschieben sich die Moden für dünne Säulen zu höherer Energie (vgl. Abb. 4.5; die Grundmode der dicksten Säulen liegt dort bei 934,5 nm), zum anderen befindet sich dieser Wert durchaus in der Herstellungstoleranz für Schichten mit der Molekularstrahlepitaxieanlage.

In Abbildung 4.5 sind für acht Resonatorsäulen mit unterschiedlichen Säulendurchmessern aber auf der gleichen Probe die Resonanzwellenlängen als Kreuze dargestellt. Verfolgt man die Mode mit der größten Wellenlänge, d.h. die Grundmode I, über die verschiedenen Durchmesser, so ist zu erkennen, dass sie bei kleineren Durchmessern deutlich blau verschiebt. Dieser Effekt ist für die nächsthöhere Mode II sogar noch viel ausgeprägter, so dass der spektrale Abstand zwischen den Moden für dünne Säulen merklich zunimmt.

#### Vergleich und Simulation mit Stufenindexfaser

Bei der Resonatorsäule funktioniert der Lichteinschluss lateral wie bei einer Faser mit einem GaAs-Kern innen und einem ausgedehnten Mantel aus Luft oder Vakuum außen. Genau dieses Modell kann man sich zu Nutze machen, um die Resonanzen in solchen Säulen zu berechnen. Dabei wird eine unendlich ausgedehnte Faser

 $<sup>^2\</sup>mathrm{Die}$  meisten so genannten Leckmoden strahlen seitlich ab und werden bei diesem Messaufbau nicht detektiert.

Kapitel 4. Säulenförmige Resonatoren



Abbildung 4.5: Vergleich von  $\mu$ -PL-Messungen einzelner Resonatorsäulen und Simulation mit Stufenindexfaser: Die Kreuze markieren die Resonanzwellenlängen optischer Moden, die in  $\mu$ -PL-Spektren wie in Abb. 4.4 gefunden wurden für acht Säulen mit unterschiedlichen Durchmessern auf einer Probe (A0310). Die gestrichelte Linie hebt den Durchmesser von 5,5  $\mu$ m hervor, dessen Resonanzwellenlängen aus Abb. 4.4 entnommen sind. Als graue durchgezogene Linien sind die durchmesserabhängigen Resonanzwellenlängen einer einfachen Simulation, basierend auf einer Stufenindexfaser, unterlegt. Sie erlaubt eine eindeutige Zuordnung der gemessenen Resonanzen. Die Grundmode (I) und die ersten höheren Moden (II und III) sind gekennzeichnet.

mit einem Stufenprofil im Brechungsindex berechnet. In dieser zweidimensionalen Rechnung, die nur den Querschnitt der Faser berücksichtigt, kann sogar jede beliebige Querschnittsform simuliert werden. Dieser Vorteil wird später bei gekoppelten Säulenresonatoren ausgenutzt.

Für einen in z-Richtung unendlich ausgedehnten Wellenleiter kann für das Magnetfeld **H** folgender Ansatz verwendet werden:

$$\mathbf{H}(x, y, z, t) = \mathbf{H}(x, y) \exp(i\omega t - i\beta z).$$
(4.1)

Die sich ausbreitende Welle besitzt die Energie  $\hbar\omega$  und  $k_z = \beta$  als z-Komponente des Wellenvektors. Mit dem zeitharmonischen Ansatz lässt sich die Helmholtz-Gleichung als modifizierte Wellengleichung gewinnen:

$$\nabla \times (n^{-2}\nabla \times \mathbf{H}) - k_0^2 \mathbf{H} = 0.$$
(4.2)



4.1 Realisierung und Untersuchung einzelner Säulen

**Abbildung 4.6:** Grundmode der Stufenindexfaser. (a) Elektrisches Feld als Pfeile in *xy*-Richtung und farbkodiert in *z*-Richtung; (b) Intensitätsverteilung der fundamentalen Mode.

Diese Differenzialgleichung muss für das Gesamtsystem aus GaAs-Kern  $(n = n_{\text{GaAs}})$ und Umgebung als Fasermantel (n = 1) gelten. Als Lösung lässt sich ein effektiver Brechungsindex  $n_{\text{eff}}$  berechnen, der auf den Bereich  $1 < n_{\text{eff}} < n_{\text{GaAs}}$  eingeschränkt ist.

Abhängig von der eingestrahlten Energie  $\hbar\omega$  und dem Durchmesser des GaAs-Kerns lässt sich für jede Mode ein effektiver Brechungsindex  $n_{\rm eff}$  ermitteln, womit u.a. auch der Winkel der Wellenvektoren einer Mode relativ zur z-Achse bestimmt werden kann. Unter der Annahme, dass in der  $\lambda$ -Kavität die z-Komponente des Wellenvektors  $\beta = 2\pi/\lambda$  bereits festgelegt ist, können ebenfalls die Resonanzwellenlängen gewonnen werden. Weitere Details dazu finden sich in Ref. [62].

Die Berechnung der effektiven Brechungsindizes ist in dem Softwarepacket von COM-SOL Multiphysics<sup>TM</sup> implementiert. Für die Grundmode sind in Abbildung 4.6 das elektrische Feld und die Intensitätsverteilung angegeben. Unter Berücksichtigung der tatsächlichen Länge der  $\lambda$ -Kavität als einzigem Anpassungsparameter sind die Simulationsergebnisse in Abb. 4.5 entstanden. Die Übereinstimmung mit den experimentellen Daten ist ausgezeichnet; jedes gemessene Maximum in den  $\mu$ -PL-Spektren lässt sich so eindeutig einer Mode zuordnen.

## 4.1.3 *Q*-Faktor der fundamentalen Mode

Die Güte des Säulenresonators lässt sich aus der spektralen Breite seiner Moden extrahieren, vgl. Abschnitt 2.1.1. Für die Grundmode der  $\lambda$ -Kavität, als HE<sub>11</sub> bezeichnet [119], ist der Lichteinschluss im Allgemeinen am besten. Begründen lässt sich das mit der starken Lokalisierung der Grundmode, denn sie ist lateral am besten eingesperrt und weist so den geringsten Überlapp mit der Umgebung bzw. der Manteloberfläche auf. Letzteres bildet für die optischen Moden durch den Einbau von Kristalldefekten bei der Herstellung (Ionenbombardement) sowie durch die Restrauigkeit an der Oberfläche den größten Verlustkanal durch Absorption oder Streuung.

In einem gemessenen Spektrum wie in Abb. 4.4 wird der *Q*-Faktor durch das Anpassen einer Lorentzkurve bestimmt (vgl. Gl. 2.3). Im Folgenden werden ausschließlich die Grundmoden der Säulenresonatoren verglichen. Abbildung 4.7 bietet eine Übersicht über die *Q*-Faktoren aller vermessenen Säulenresonatoren. Die Säulen unterscheiden sich hauptsächlich im Durchmesser und der Anzahl der Braggspiegelpaare.



Für große Durchmesser offenbart sich eine klare Tendenz zu höheren Q-Faktoren.

Abbildung 4.7: Gemessene *Q*-Faktoren der Säulenresonatoren in Abhängigkeit ihres Durchmesers bei verschiedenen Proben mit 20 bis 30 DBR-Paaren oben und unten.

Gemäß der Messung und Simulation in Abb. 4.5 liegen die verschiedenen Moden einer Säule dann aber auch enger aneinander, bis sie für sehr große Durchmesser spektral nicht mehr separiert werden können. Das Ziel liegt aber nicht nur in der Maximierung des Q-Faktors, statt dessen sollte zudem das Modenvolumen minimal sein, wie in Unterkapitel 2.2 erörtert. Beim Vergleich innerhalb eines Materialsystems kann für die gleiche Mode annähernd davon ausgegangen werden, dass das Modenvolumen mit dem geometrischen Volumen der  $\lambda$ -Kavität skaliert.

Außer dem Einfluss des Durchmessers auf den Q-Faktor kristallisiert sich anhand der Symbole in Abb. 4.7 ein weiterer Effekt heraus. Die Quadrate und Rauten repräsentieren Grundmoden von Säulen, die auf Proben mit lediglich 20 Braggspiegelpaaren oben und unten stehen. Ihre Q-Faktoren sind unterdurchschnittlich. Dagegen haben die Säulenmoden auf Proben mit 25 DBR-Paaren (Dreiecke und Kreuze) die höchsten Werte. Dieser Trend ist eindeutig mit einem verbesserten vertikalen Lichteinschluss zu erklären und wird sich auch in der Simulation bestätigen (siehe Abschnitt 4.2.4). Die besten erzielten Q-Faktoren belaufen sich so auf 17.800 für einen Durchmesser von  $5\,\mu\text{m}$  und 19.400 für 10 $\mu\text{m}$ . Die Probe mit 30 DBR-Paaren (Sterne) scheint mit den eher durchschnittlichen Q-Werten dem Trend etwas entgegen zu laufen. Hier sollte angemerkt werden, dass die gemessene Resonanzwellenlänge um knapp 4% von der Designwellenlänge zu größerer Energie hin abweicht, d.h. die einzelnen Schichtdicken in der Probe vermutlich nicht stimmen. Wenn allerdings die GaAs- und AlAs-Schichtdicken in den Braggspiegeln zu weit von den konzipierten  $\lambda$ /4-Dicken der Resonanzwellenlänge  $\lambda$  abweichen, fällt die Reflektivität des DBRs und damit auch der Q-Faktor der Moden. Außerdem steigt für größere Energien die Absorption im GaAs an, was den Q-Faktor für Moden bei kurzen Wellenlängen zusätzlich herabsetzen kann (vgl. Abschnitt 4.2.2).

Die beschriebenen Q-Faktoren wurden durch das Anpassen einer Lorentzkurve an das Messsignal gewonnen. Streng genommen ist dieser Wert eine untere Grenze für den Q-Faktor, da die endliche Auflösung des Spektrometers zusammen mit der CCD-Kamera das Maximum im Signal tendenziell verbreitert. Mit Hilfe einer Rückfaltung des Messsignals könnte dieser Effekt, der sich aber bei  $Q \leq 20.000$  kaum bemerkbar machen wird, herausgerechnet werden [29].

In der Literatur wurde erst kürzlich von einem exorbitanten Q-Faktor von 165.000 für eine 4  $\mu$ m-Säule berichtet [29]. Das wurde möglich durch 32 bzw. 36 Braggspiegelpaare und eine verminderte Reabsorption in den Quantenpunkten. Zuvor lagen die maximalen Werte für Säulendurchmesser kleiner 5  $\mu$ m typischerweise um 25.000 [120]. Der bei uns erreichte Wert von Q = 17.800 für eine 5  $\mu$ m-Säule ist also zumindest mit letzterem gut vergleichbar. Diese Information ist umso wichtiger, weil die besten Resonatorsäulen für das Materialsystem GaAs/AlAs anderer Gruppen immer mit reaktivem Ionenätzen hergestellt wurden. Deshalb war a priori nicht klar, ob ähnliche Resonatorgüten durch die Herstellung mit einem fokussierten Ionenstrahl ebenfalls erreicht werden können. Das vorliegende Ergebnis legt aber nahe, dass die Herstellungsqualität mit einem fokussierten Ionenstrahl nicht grundsätzlich derjenigen mit reaktivem Ionenätzen nachsteht.

# 4.2 Simulation einzelner Säulen in der Frequenzdomäne

In Abschnitt 4.1.2 wurde eine Simulation aufbauend auf dem Modell einer Stufenindexfaser angesprochen. Sie eignet sich hervorragend zur näherungsweisen Berechnung der Resonanzwellenlänge und der Entwicklung gekoppelter Braggresonatorstrukturen (vgl. Unterkapitel 4.3); jedoch erlaubt sie keine Auskunft über die Güte des Lichteinschlusses. Um eine Aussage über die *Q*-Faktoren treffen zu können, muss in die Simulation ein sehr realistisches Modell ohne größere Vereinfachung eingehen.

Wie schon zuvor bei den Pyramiden bzw. Kegeln (siehe Abschnitt 3.4.2) verwenden wir dazu in einer Kooperation mit dem Zuse-Institut in Berlin (ZIB) das Softwarepacket JCMsuite. Im Gegensatz zu den Pyramiden besitzt eine einzelne Resonatorsäule ohnehin eine Rotationssymmetrie, so dass das dreidimensionale Problem ohne Vereinfachung auf quasi zwei Dimensionen reduziert werden kann. Mit Hilfe des JCMsuite Softwarepackets werden unterschiedliche geometrische Einflüsse auf den Q-Faktor der fundamentalen Mode berechnet. Darüber hinaus werden erstmals Q-Werte für GaAs/AlAs-Säulenresonatoren ermittelt, die sich maximal im Experiment erreichen lassen.

Die Erkenntnisse aus der Simulation sind essentiell, denn zum einen kann so das Potenzial dieses Resonatortyps abgeschätzt werden, und zum anderen können sie helfen, die Herstellung der Resonatorsäulen zu optimieren. In diesem Unterkapitel werden die Auswirkungen der folgenden Aspekte auf den *Q*-Faktor der Grundmode untersucht:

- Absorption von GaAs (intrinsisch oder durch Defekte bedingt),
- Durchmesser der Resonatorsäule,
- Anzahl und Verhältnis der Braggspiegelpaare oben und unten,
- Âtztiefe des unteren Braggspiegels und
- Seitenwandverkippung der Säulen.

Zur Beobachtung der schwachen oder starken Kopplung einzelner Quantenpunkte an eine Resonatormode muss das Verhältnis  $Q/V_{\text{Mode}}$  oder  $Q^2/V_{\text{Mode}}$  maximal sein (vgl. Unterkapitel 2.2). Im Folgenden konzentrieren sich die Berechungen vorwiegend auf den Q-Faktor der Grundmode, erst am Ende dieses Unterkapitels wird das Modenvolumen  $V_{\text{Mode}}$  der Grundmode auch explizit bestimmt, welches fast ausschließlich vom Durchmesser abhängt. Somit kann außer bei der Durchmesserabhängigkeit im Folgenden davon ausgegangen werden, dass bei den maximalen Q-Faktoren auch gleichzeitig die Quotienten  $Q/V_{\text{Mode}}$  und  $Q^2/V_{\text{Mode}}$  ihr Optimum erreichen.

### 4.2.1 Vergleich simulierter und experimenteller Daten

Bevor die Auswirkungen der einzelnen Aspekte auf den Q-Faktor der Grundmode simuliert werden, soll eine Gegenüberstellung von Simulationsdaten und experimentellen Daten eine Übereinstimmung und Vergleichbarkeit bestätigen. Das Streuproblem von *JCMsuite* kommt dabei einem gemessenen  $\mu$ -PL-Spektrum am nächsten. Dieser Methode liegt ein zeitharmonischer Ansatz für das Feld wie in Gl. 3.3 zu Grunde. Unter einem Winkel  $\varphi$  zur Vertikalen wird in das Rechengebiet mit offenen Randbedingungen eine ebene, monochromatische Welle eingestrahlt, die die Bedingung aus Gl. 3.4 erfüllen muss. Abhängig von der Wellenlänge kann das Feld im eingeschwungenen, stationären Zustand untersucht werden. Als besonders aussagekräftig stellte sich dabei die integrierte Energie in der  $\lambda$ -Kavität heraus, denn im Resonanzfall steigt dieser Wert deutlich an.

Die experimentellen Referenzdaten werden der Messung einer Resonatorsäule mit 4,8  $\mu$ m Durchmesser und 25 DBR-Paaren oben und unten entnommen, siehe Abb. 4.8 (unten). Die Simulation liefert für eine Anregung unter  $\varphi = 0^{\circ}$  ein kleines und ein sehr ausgeprägtes Maximum im Energiespektrum. Da bei der Herstellung durch Molekularstrahlepitaxie Dickenabweichungen von  $\pm 2\%$  zu erwarten sind, wurden in der Simulation die Schichtdicken im Rahmen dieser Toleranz so angepasst, dass das ausgeprägte Maximum mit der Grundmode im Experiment zusammenfällt (siehe Übereinstimmung bei 931,7 nm in Abb. 4.8). Durch die Einstrahlung unter Winkeln  $\varphi > 0$  können in der Simulation mehrere höhere Moden angeregt werden; am besten sind sie bei  $\varphi = 0, 5^{\circ}$  zu erkennen.

Neben der Grundmode bei 931,7 nm lassen sich drei weitere Energiemaxima in der  $\lambda$ -Kavität erkennen (930,3 nm, 928,4 nm und 927,75 nm). Die gemessenen Daten umfassen in diesem Wellenlängenbereich ebenfalls drei höhere Moden (bei 930,45 nm, 928,8 nm und 928,3 nm). Die relativen Positionen und Abstände in Experiment und Simulation stimmen sehr gut überein, doch ihre absoluten Positionen sind nicht



Abbildung 4.8: Gegenüberstellung der FEM-Simulation (Streuproblem) mit einem gemessenen  $\mu$ -PL-Spektrum einer Resonatorsäule mit 4,8  $\mu$ m Durchmesser und 25 DBR-Paaren (A0479a\_II). Im simulierten Spektrum oben ist die Energie für  $\varphi = 0,5^{\circ}$  um einen Faktor 40 vergrößert dargestellt als für  $\varphi = 0^{\circ}$ .

ganz identisch<sup>3</sup>. Relevant sind für die Simulation hier aber nur die Existenz und eindeutige Zuordnung der einzelnen Moden sowie deren Q-Faktoren.

Das Energiemaximum bei 930,3 nm der Simulation besteht genauer betrachtet aus zwei eng benachbarten Maxima. Auch das untermauert die Leistungsfähigkeit der Simulation, denn für die zweite Mode wird diese Aufspaltung erwartet [119]. In den experimentellen Daten von Abb. 4.8 ist die zweite Mode spektral zu breit, um diesen Effekt aufzulösen. Die spektrale Breite bzw. die Anpassung der Maxima an eine Lorentzkurve legt den Q-Faktor fest. In der Simulation liegt der Wert für die Grundmode um den Faktor vier über dem experimentellen. Details dazu werden im Folgenden diskutiert.

Insgesamt decken sich so die Ergebnisse der Simulation sehr gut mit der Messung

<sup>&</sup>lt;sup>3</sup>Dazu muss bemerkt werden, dass die  $\mu$ -PL-Messung bei tiefen Temperaturen um 10K stattfand. Die Simulation basiert hingegen auf den besser verfügbaren Materialparametern bei Raumtemperatur. Dadurch ist der Brechungsindex in der Simulation größer als im Experiment, was in Folge des stärkeren lateralen Einschlusses einer effektiv dünneren Resonatorsäule entspricht. Diese wiederum besitzt einen größeren Modenabstand (vgl. Abb. 4.5), wie ihn auch die Simulation zeigt.

bzw. den Ergebnissen anderer Gruppen (Aufspaltung der zweiten Mode), was im Gegenzug auch die Zuverlässigkeit der Simulation bestätigt.

# 4.2.2 Obergrenze des *Q*-Faktors

JCMsuite stützt sich auf finite Elemente. Außer dem Streuproblem von eben kann wie schon in Abschnitt 3.4.2 mit Gl. 3.4 ein Eigenwertproblem definiert werden, das die Resonanzen als Eigenwerte enthält. Dieses Verfahren erlaubt eine sehr effiziente Berechnung einzelner Q-Faktoren ohne Lorentzfit, wie sie für die Auswertung diverser (geometrischer) Einflüsse auf die fundamentale Mode HE<sub>11</sub> benötigt wird. Allen nachfolgenden Simulationsergebnissen liegen deshalb Eigenwertberechungen zu Grunde.

Die Materialparameter der Simulation beschränken sich auf die Permittivitäten von GaAs und AlAs, die komplexe Werte annehmen können. Die Resonatorsäule wird für eine Wellenlänge von 950 nm in der Bandlücke der beteiligten Materialien entworfen und betrieben. Dennoch können bei diesen Energien z.B. durch Kristalldefekte oder den so genannten Urbach-Ausläufer Zustände existieren, die eine Absorption verursachen [42]. AlAs liegt energetisch mit seiner Bandlücke weit entfernt (< 600 nm), eine Absorption darin ist in dem hier relevanten Wellenlängenbereich experimentell nicht messbar. Kritischer ist die Situation beim GaAs (Bandlücke bei 830 nm), weil zudem in der  $\lambda$ -Kavität aus GaAs die höchste Intensität im ganzen Säulenresonator vorliegt.

Die Absorption  $\alpha$  geht beim komplexen Brechungsindex  $\tilde{n} = n + ik$  in den Imaginärteil  $k = \alpha \lambda/(4\pi)$  ein.  $\lambda$  ist dabei die Vakuumwellenlänge des Lichts. Mit der Beziehung  $\varepsilon = \tilde{n}^2$  zwischen der komplexen Permittivität  $\varepsilon = \varepsilon_1 + i\varepsilon_2$  und dem Brechungsindex  $\tilde{n}$  hängt der Imaginärteil der Permittivität  $\varepsilon_2 = n\alpha\lambda/(2\pi)$  direkt mit der Absorption zusammen.

Für einen Säulenresonator mit 3,3  $\mu$ m Durchmesser und 30 DBR-Paaren oben und unten wurden die Auswirkungen der Absorption in GaAs untersucht, vgl. Abb. 4.9. Unter der Annahme vernachlässigbarer Absorption beträgt der *Q*-Faktor 417.000. Dagegen fällt dieser Wert mit steigender Absorption bis auf 68.000 bei  $\varepsilon_{2,\text{GaAs}} =$ 0,00025 ( $\alpha_{\text{GaAs}} = 4,659 \text{ cm}^{-1}$ ) ab. Somit ist für den Resonator die Qualität des epitaktischen Materials von entscheidender Bedeutung. Im Allgemeinen hängt die Absorption im GaAs auch von der Temperatur ab [121, 122]. Ein realistischer Wert für unseren Fall liegt bei  $\alpha_{\text{GaAs}} = 1 \text{ cm}^{-1}$  [123], was den *Q*-Faktor für diese Geometrie mit 30 DBR-Paaren auf etwa 200.000 begrenzt. Geometrische Defekte, die den *Q*-Faktor weiter einschränken, wurden bisher nicht betrachtet, d.h. der berechnete Wert von 200.000 kann tatsächlich als Obergrenze für maximal erreichbare *Q*-Faktoren in



Abbildung 4.9: Simulierter Einfluss der GaAs-Absorption auf den *Q*-Faktor der Grundmode.

Braggresonatoren mit 30 DBR-Paaren angesehen werden.

Da die Absorption außerordentlich kritisch den maximalen Q-Faktor begrenzt, müssen alle Ursachen zur Optimierung aufgedeckt werden. Denn abgesehen vom kristallinen GaAs entsteht im Experiment auch durch das eingebettete optisch aktive Material (Quantenpunkte oder -tröge) ein Beitrag zur Absorption, denn sie können das Licht im Resonator reabsorbieren [124, 125]. Um diesem Effekt gegenzusteuern, wird bereits die Anzahl der Quantenpunkte in der spektralen Nachbarschaft der Resonanz für Resonatoren mit extrem hohen Q-Faktoren reduziert [29, 126]. Außerdem verursacht der Ionenbeschuss bei der Herstellung der Säulen den Einbau von Defekten in das kristalline Material. Für das Ausfräsen mit dem fokussierten Ionenstrahl wurde deshalb der Ionenstrom in der letzten Stufe stark reduziert, vgl. Abschnitt 4.1.1.

Für die weiteren Simulationen wurde – falls nicht anders erwähnt – eine Absorption von  $\varepsilon_{2,\text{GaAs}} = 7,5 \cdot 10^{-5} \ (\alpha_{\text{GaAs}} \approx 1,4 \text{ cm}^{-1})$  angenommen. Die restlichen Parameter betragen  $\varepsilon_{1,\text{GaAs}} = 12,6, \ \varepsilon_{1,\text{AlAs}} = 8,8 \text{ und } \varepsilon_{2,\text{AlAs}} = 0$  (aus der Datenbank der Ellipsometriesoftware *WVase32* von J.A. Woolam Co. Inc., Lincoln, USA).

### 4.2.3 Einfluss des Durchmessers

Schon in den experimentellen Daten der Abb. 4.7 kann eine Tendenz zu kleineren Q-Faktoren für dünnere Säulen beobachtet werden. Hier stellt sich die Frage, inwiefern dieser Einbruch rein geometrisch zu erklären ist oder welche Rolle der



Abbildung 4.10: Auswirkungen des Säulendurchmessers auf die Grundmode: Der Q-Faktor (oben) zeigt ab einem bestimmten Durchmesser eine Sättigung, deren Wert von der Anzahl der Braggspiegel (und der Absorption) abhängt. In der Darstellung ist der Schnitt zwischen linearer und logarithmischer Skala zu beachten. Simulationsergebnisse mit unterschiedlichen Durchmessern aber sonst gleichen Bedingungen sind zur Übersicht miteinander verbunden. Die Schichtdicken sind teilweise an den effektiven Brechungsindex  $n_{\rm eff}$  angepasst. Die Resonanzwellenlänge (unten) verschiebt sich für dünnere Säulenresonatoren zu kleineren Werten.

Säulenoberfläche im Experiment zuzuschreiben ist, die für Absorption durch Defekte oder Streuung durch Oberflächenrauigkeit sorgen kann.

In einem Säulenresonator mit 20 Braggspiegelpaaren konnten im Experiment Q-Faktoren bis um 12.000 gemessen werden (Abb. 4.7, Probe A0310). Dieser Messwert liegt nur mininmal unter dem Ergebnis der Simulation mit 20 DBR-Paaren, welches maximal 13.200 beträgt, siehe die fünfeckigen Symbole in Abb. 4.10 (oben). In der Simulation bleibt dieser Wert für fast alle berechneten Säulendicken konstant und fällt erst bei Durchmessern kleiner  $1,5 \,\mu$ m wesentlich ab. Die Resonanzwellenlänge (Abb. 4.10 (unten)) schiebt gleichzeitig für dünnere Säulen deutlich zu kleinerer Wellenlänge und zwar von 955 nm auf 935 nm. Dieses Verhalten deckt sich mit experimentellen Daten und der Erwartung, dass der Einschluss auf engerem Raum zu einer Blauverschiebung führen muss.

Für die Berechnung mit 30 DBR-Paaren gibt es weitere Differenzierungen: In ei-

		eff. Brechungsindex		Schichtdicken (nm)		
$d~(\mu m)$	$\lambda \ (\mathrm{nm})$	$n_{ m eff,~GaAs}$	$n_{\rm eff, \ AlAs}$	$\lambda$ -Kavität	GaAs-DBR	AlAs-DBR
1,00	$935,\!00$	3,483	2,883	$268,\!45$	67,11	81,09
$1,\!25$	$942,\!40$	3,506	2,910	$268,\!80$	$67,\!20$	80,97
1,50	$946,\!45$	3,519	2,925	268,96	67,24	80,90
$2,\!00$	$950,\!60$	3,532	2,941	269, 12	$67,\!28$	80,82
2,50	$952,\!57$	$3,\!539$	2,948	269,20	$67,\!30$	80,78
$3,\!00$	$953,\!66$	$3,\!542$	2,952	$269,\!25$	$67,\!31$	80,76
$3,\!30$	$954,\!09$	$3,\!543$	2,954	269,26	$67,\!32$	80,75
$3,\!50$	$954,\!32$	$3,\!544$	2,955	269,27	$67,\!32$	80,75
4,00	954,76	$3,\!545$	2,956	269,29	$67,\!32$	80,74

Kapitel 4. Säulenförmige Resonatoren

**Tabelle 4.1:** Auflistung der effektiven Brechungsindizes  $n_{\text{eff}}$  in GaAs bzw. AlAs in Abhängigkeit vom Säulendurchmesser d und der Wellenlänge  $\lambda$ . Letzteres entspricht der Verschiebung der Resonanzwellenlänge in Abb. 4.10(unten). Die rechten drei Spalten sind die damit berechneten Schichtdicken der  $\lambda$ -Kavität ( $\lambda/n_{\text{eff, GaAs}}$ ) und der Schichten im Braggspiegel ( $\lambda/(4n_{\text{eff, GaAs}})$  bzw.  $\lambda/(4n_{\text{eff, AlAs}})$ ).

nem Fall (Quadrate in Abb. 4.10) wurde die Absorption auf Null gesetzt. Außerdem wurden die Schichtdicken teilweise an den effektiven Brechungsindex  $n_{\text{eff}}$  angepasst. Letzteres hat folgende Bewandtnis: Sowohl die  $\lambda$ -Kavität als auch die Braggspiegel sind so ausgelegt, dass ihre Dicke gerade der Wellenlänge bzw. einem Viertel davon in dem entsprechenden Medium GaAs oder AlAs entspricht, d.h.  $\lambda/n$  bzw.  $\lambda/(4n)$ . Für dünne Säulen hat die Feldverteilungsfunktion der Mode einen zunehmenden Uberlapp mit der Umgebung außerhalb der Säule, so dass der effektive Brechungsindex  $n_{\text{eff}}$ , den die Mode "spürt", zunehmend vom reinen GaAs oder AlAs zu kleineren Werten hin (wie die Umgebung mit n = 1) abweicht. Aus diesem Grund wurde angedacht, die Schichtdicken mit  $\lambda/n_{\text{eff}}$  bzw.  $\lambda/(4n_{\text{eff}})$  zu konzipieren und damit abhängig vom Säulendurchmesser zu wählen [127, 128] – was zumindest in der Simulation leicht realisierbar ist. Anschaulich gesprochen trägt diese Schichtdickenkorrektur der Tatsache Rechnung, dass die Richtung der k-Vektoren einer Resonanzmode im dünneren Säulenresonator stärker von der Richtung der Symmetrieachse (Rotationsachse) abweicht und damit die Braggspiegel unter schrägem Einfall betrieben werden.

Zur Bestimmung der effektiven Brechungsindizes  $n_{\rm eff}$  wurde die Stufenindexfaser-Simulation herangezogen (siehe Abschnitt 4.1.2), da bei ihr dieser Wert gerade als Eigenwert ermittelt wird. Die Tabelle 4.1 gibt einen Überblick, wie sich die Geometrie ändert. Die Designwellenlänge  $\lambda$  wurde dabei aus der Verschiebung der Resonanzwellenlänge in Abb. 4.10 (unten) entnommen, damit die an  $n_{\rm eff}$  angepassten Moden spektral mit den nicht angepassten übereinstimmen und so auch direkt miteinander verglichen werden können.

Unter Berücksichtigung der Schichtdickenanpassung an den effektiven Brechungsindex konnte allerdings in dieser Simulation keine Veränderung festgestellt werden. Die Q-Faktoren der nicht angepassten Schichten (Rautensymbol) decken sich exakt mit den angepassten Schichten (Kreise), vgl. Abb. 4.10 (oben).

Åhnlich dem Fall mit 20 DBR-Paaren gibt es auch bei 30 DBR-Paaren eine obere Grenze für den Q-Faktor. Eine gleichartige Sättigung findet jedoch erst ab einem Durchmesser  $\geq 3 \,\mu$ m mit  $Q \approx 165.000$  statt.

Für sehr kleine Durchmesser verhält sich der Q-Faktor sehr ungewöhnlich: er springt zwischen großen und kleinen Werten. Eine derartige Charakteristik wurde bereits von anderen Gruppen sowohl in der Simulation als auch experimentell, insbesondere im Submikrometerbereich der Säulendurchmesser, entdeckt [128, 129]. Erklärt werden sie durch unterschiedlich starke Ankopplungen der HE<sub>11</sub>- $\lambda$ -Kavitätsmode an höhere (propagierende) Moden im Braggspiegel der Säule.

In einem Durchlauf der Simulation wurde die Absorption im GaAs vernachlässigt (Abb. 4.10). Für kleine Durchmesser ist die Abweichung dabei zum realistischen GaAs nur minimal; vermutlich fallen hier für das eingesperrte Licht andere Verlustkanäle wie die radiale Abstrahlung viel stärker ins Gewicht als die Absorption. Dagegen ist die Absorption für dicke Säulen ausschlaggebend. Eine vergleichbare Sättigung, also Obergrenze, des Q-Faktors ist mit Werten über 400.000 verbunden.

# 4.2.4 Einfluss der Braggspiegel

An vielen Stellen war bereits zu erkennen, dass der Braggspiegel einen signifikanten Einfluss auf den *Q*-Faktor der Grundmode ausübt. In erster Linie bezieht sich das auf die Gesamtanzahl der DBR-Paare; darüber hinaus werden die Auswirkungen einer asymmetrischen Verteilung der Paare oben und unten sowie der Form des unteren Braggspiegels betrachtet.

### Anzahl der Braggspiegelpaare

Es überrascht wenig, dass der Q-Faktor der Grundmode mit der Anzahl der Braggspiegelpaare steigt, zu sehen am Beispiel einer  $3,3 \,\mu$ m Säule in Abb. 4.11(a). Im Bereich von 10 bis 30 DBR-Paaren verbessert sich der Q-Wert um drei Größenordnungen. Für eine realistische Absorption tritt erneut eine Sättigung ein ( $Q \approx 250.000$ für  $\geq 40$  Paare). Dies deutet darauf hin, dass optische Verluste der Mode in vertikaler Richtung durch den Braggspiegel bei mehr als 40 DBR-Paaren vernachlässigbar sind. Das gleiche Diagramm zeigt auch, dass der Absorption bei weniger als 25 Paa-



Abbildung 4.11: Die Anzahl der DBR-Paare beeinflusst den *Q*-Faktor erheblich: (a) Die Anzahl der DBR-Paare ist oben und unten gleich groß. (b) Im unteren DBR ist die Anzahl der DBR-Paare fest bei 29,5 Paaren, während sie oben zwischen 20 und 35 variiert wird.

ren eine marginale Rolle zugewiesen werden kann, sie aber bei einer größeren Anzahl an DBR-Paaren sehr wohl relevant ist. Denn ohne Absorption steigt der Q-Faktor theoretisch bis auf 3.000.000 an.

Wie stellt sich der *Q*-Faktor bei einer asymmetrischen Verteilung der Paare ein? Dazu wurde die Anzahl der DBR-Paare unten bei 29,5 festgehalten<sup>4</sup>, während die Anzahl oben variiert wurde. Beginnend bei 20 oberen DBR-Paaren steigt der *Q*-Faktor kontinuierlich an und erreicht bei 30 Paaren mit 165.000 schon fast sein Maximum (170.000 ab 33 Paaren). Der Vergleich mit den *Q*-Faktoren bei symmetrischer Verteilung der DBR-Paare macht daher deutlich, dass für die Güte des Lichteinschlusses eine Gleichverteilung der DBR-Paare oben und unten am besten ist. Damit würde die Mode nach oben und unten gleich stark abstrahlen. In der Praxis detektiert man das Licht jedoch nur in einer Richtung, und so kann es hilfreich sein, die Anzahl der unteren DBR-Paare etwas größer als oben zu wählen, damit zur Messung oben mehr Licht aufgesammelt werden kann. Hinzu kommt der Brechungsindexsprung vom oberen DBR zur Luft, so dass dort die Reflektivität größer ist als an der Grenzschicht zwischen unterem DBR und dem Substrat. In der Regel werden deshalb unten zwei bis drei Paare mehr eingebaut.

### Ätztiefe des unteren DBRs

Der Durchmesser des Säulenresonators wird auf der Höhe der  $\lambda$ -Kavität bestimmt. Daraus könnte man schließen, dass es bei der teils sehr zeitintensiven Herstellung

 $<sup>^{4}</sup>$ Eigentlich sind es 30 DBR-Paare unten, aber optisch ist die unterste Schicht des Braggspiegels aus GaAs vom GaAs-Substrat nicht zu unterscheiden.



Rotationsachse

(a)

geätzte

Paare

:

unterer

DBR

20 DBR-Paare

25 DBR-Paare

30 DBR-Paare

25

30

Abbildung 4.12: Nur teilweise geätzter unterer Braggspiegel: (a) Der untere Braggspiegel ist nicht wie bisher bis zum Substrat durchgeätzt, sondern Teile davon bleiben als (unendlich ausgedehnte) planare Schichten stehen. (b) Wird nur ein Teil des unteren DBR geätzt, muss mit einem dramatischen Einbruch im Q-Faktor gerechnet werden; Eigenwertrechnung mit einem Säulendurchmesser von 2,0  $\mu$ m.

5

10

15

Anzahl der geätzten Paare im unteren DBR

20

80

0

10<sup>3</sup>

(b)

 $\Delta_{\Delta}$ 

bereits ausreicht, nur bis dorthin zu ätzen, d.h. der untere Braggspiegel würde weitgehend als planares Schichtsystem erhalten bleiben, siehe Skizze in Abb. 4.12(a). Es gibt Berichte über Säulenresonatoren, bei denen der Großteil des unteren DBR erhalten blieb [130]. Allerdings wurden daran auch nur relativ geringe Q-Faktoren gemessen.

In der Simulation lässt sich dieser Sachverhalt einfach realisieren. Dabei stoßen die untersten Schichten des unteren DBR bis an den äußeren Rand des Rechengebiets und werden in den offenen Randbedingungen, den so genannten *perfectly matched layers*, radial unendlich fortgesetzt. Für einen Säulendurchmesser von 2,0  $\mu$ m lässt sich das Ergebnis für jeweils 20, 25 und 30 DBR-Paare oben und unten in Abb. 4.12(b) ablesen. Drastische Einbußen im *Q*-Faktor müssen demnach hingenommen werden, wenn der untere Braggspiegel größtenteils ungeätzt stehen bleibt. Offenbar wirken die unendlich ausgedehnten DBR-Schichten, wenn sie unmittelbar an die  $\lambda$ -Kavität angrenzen, als Wellenleiter, wodurch es bei der Mode zu hohen Verlusten kommt. Die besten Güten werden laut Simulation erreicht, wenn der Braggspiegel ganz durchgeätzt wird oder höchstens zehn Paare ungeätzt verbleiben. Folglich ist es für die Säulenherstellung ratsam, bis auf wenige Paare fast komplett durchzuätzen.



Abbildung 4.13: Übersicht der berechneten *Q*-Faktoren (logarithmisch farbkodiert) in Abhängigkeit vom Säulendurchmesser und der Braggspiegelanzahl, welche oben und unten identisch ist. Außerdem ist der untere DBR in diesen Rechnungen komplett durchgeätzt.

#### Durchmesser und Anzahl der DBR-Paare

Sowohl in den gemessenen Daten als auch in den bisher betrachteten Eigenwertberechnungen mit *JCMsuite* konnten wir sehen, dass in erster Linie die Anzahl der Braggspiegel und der Säulendurchmesser den resultierenden Q-Faktor prägen. Darum liefert Abb. 4.13 abschließend zu diesen beiden Aspekten eine Übersicht, die den Q-Faktor auf einer logarithmischen Farbskala wiedergibt. Zum einen werden darin nochmals die Unregelmäßigkeiten im Bereich kleiner Durchmesser sichtbar. Sie können dafür sorgen, dass unter Umständen eine dickere Säule wie bei 1,75  $\mu$ m einen schlechteren Lichteinschluss als eine dünnere, bei z.B. 1,5  $\mu$ m, haben kann. Ansonsten ist der Trend zu großen Q-Werten in Richtung dicker Säulen und vielen DBR-Paaren schön abzulesen. Das bedeutet gleichzeitig, dass man den Q-Faktor für dünnere Säulen, wenn überhaupt, nur auf gleich hohem Niveau halten kann, wenn die Anzahl der DBR-Paare erhöht wird.

### 4.2.5 Einfluss der Seitenwandverkippung

Bei der Herstellung der Säulen mit einem fokussierten Ionenstrahl manifestiert sich eine Verkippung der Seitenwand mit Winkeln bis zu 3°, vgl. Abb. 4.3. Dieses De-



Abbildung 4.14: Einfluss der Seitenwandverkippung auf die Grundmode eines Säulenresonators mit  $3,3 \,\mu$ m Durchmesser. Je nach Anzahl der Braggspiegelpaare ergeben sich bei bestimmten Winkeln unterschiedlich starke Einbrüche im *Q*-Faktor (oben). An den selben Stellen ist die Energie in den Braggspiegeln im Vergleich zur  $\lambda$ -Kavität stark erhöht (unten). Zu beachten sind die Sprünge in den Ordinaten der sonst linearen Skala.

fizit ist auch von der reaktiven Ionenätzmethode bekannt, kann dort aber besser durch den chemischen Anteil des Verfahrens kontrolliert werden [57]. In der Literatur findet sich bislang nur ein Bericht über die Simulation dieser Verkippung [127]. Bedingt durch die Simulationsmethode wird die schiefe Seitenwand darin mit Stufen approximiert; und im berücksichtigten Winkelintervall zwischen 0° und 1° kann demnach mit teilweise höherem Q-Faktor gerechnet werden als in der Säule ohne Seitenwandverkippung.

Bei unserer FEM-Simulation gestaltet sich die Umsetzung der Seitenwandverkippung problemlos, da das Rechengitter der finiten Elemente wie bereits bei den Kegeln (vgl. Abschnitt 3.4.2) automatisch an die schiefe Geometrie angepasst wird.

Für die Fälle 20, 25 und 30 DBR-Paare wurden die Auswirkungen auf die Grundmode einer Säule mit  $3,3 \,\mu$ m Durchmesser bei einer Verkippung der Seitenwand zwischen 0° und 3° simuliert, siehe Abb. 4.14. Im Gegensatz zu Ref. [127] sind die *Q*-Faktoren für die unverkippte Struktur, d.h. bei 0°, am höchsten. Dieser Unterschied könnte von einer ungünstigen Wahl der einzelnen Schichtdicken in der erwähnten Veröffentlichung herrühren.

Bei 20 DBR-Paaren ist der Lichteinschluss wesentlich durch die geringe Anzahl der

Kapitel 4. Säulenförmige Resonatoren



Abbildung 4.15: Intensitätsverteilung für 3,3- $\mu$ m-Resonatorsäulen mit 25 DBR-Paaren: (a) für einen Seitenwandwinkel von 0°, (b) für einen Seitenwandwinkel von 2,2° (vgl. Abb. 4.14). In (b) liegt eine hohe Intensität im oberen DBR vor, was für eine Kopplung an eine andere Mode im DBR spricht. Den Intensitätsverteilungen sind die Konturen der Struktur sowie in den rechten Hälften das Rechengitter (ohne Verfeinerung) überlagert.

Paare begrenzt (vgl. Abb. 4.11(a) oder Abb. 4.13). Die Seitenwandverkippung trägt hier einen minimalen Beitrag als zusätzlicher Verlustkanal der Mode, so dass sowohl die absolute als auch die relative Änderung im Q-Faktor sehr gering ausfallen. Auffällige Einbrüche um 60% (von 165.000 auf 63.000, 0,8°) oder gar über 90% (von 57.200 auf 4.900, 2,2°) ereignen sich dagegen bei 30 bzw. 25 DBR-Paaren. Diese Einschnitte lassen sich wie die Oszillationen des Q-Faktors für dünne Säulenresonatoren (Abb. 4.10) mit der Ankopplung an Moden in den Braggspiegeln erklären [127].

Wenn es diese DBR-Moden gibt, so müsste die Intensität im Braggspiegel unter diesen Umständen ansteigen. Zur Überprüfung wurden die elektrischen Feldenergien in den DBRs zu denen in der  $\lambda$ -Kavität ins Verhältnis gesetzt, Abb. 4.14 (unten). Und tatsächlich wird diese Erwartung bestätigt: Während die Energie in den Braggspiegeln oben und unten zusammenaddiert etwa das 2,5-fache der Energie in der  $\lambda$ -Kavität für hohe Q-Moden beträgt, steigt das Verhältnis in den oben genannten Fällen auf 3,1 (0,8°, 30 DBR-Paare) bzw. 12,6 (2,2°, 25 DBR-Paare) an. Für letzteres ist das Verhältnis so groß, dass man sogar in der Intensitätsverteilung dieser Moden im Querschnitt durch die Säule den Unterschied direkt beobachten kann, siehe Abb. 4.15. Wenn die Seitenwand einen Winkel von 0° hat, konzentriert sich die Intensität auf die Mitte der Struktur. Auf halber Höhe der  $\lambda$ -Kavität und an den Grenzen zum oberen und unteren DBR befinden sich die höchsten Maxima. Beim



**Abbildung 4.16:** *Q*-Faktor und Resonanzwellenlänge für eine Säule mit 20 DBR-Paaren und 2,0  $\mu$ m Durchmesser. Bei einem Winkel von 1,8° der Seitenwand treten zwei Moden auf, die als Zustand einer Kopplung der ursprünglichen Grundmode mit einer höheren Mode interpretiert werden können.

Eindringen in die Braggspiegel fällt die Intensität der stehenden Welle exponentiell ab, Abb. 4.15(a). Zusätzlich zu diesem Intensitätsmuster ist eine regelmäßige Anordnung an Intensitätsmaxima im oberen DBR zu erkennen. Damit fügen sich alle Beobachtungen konsistent zusammen und bestätigen die Erklärung, dass die ursprünglichen HE<sub>11</sub>-Mode der  $\lambda$ -Kavität bei Verkippung der Seitenwand an Moden im DBR ankoppelt.

Im Detail betrachtet, lässt sich ein weiterer Aspekt der Modenkopplung verstehen. Bei einem so dramatischen Einbruch im Q-Faktor lohnt es sich, die Resonanzwellenlänge aufzuzeichnen. In der Berechnung von Abb. 4.16 gibt es beim entscheidenden Winkel von 1,8° zwei Moden mit ähnlich schlechten Q-Faktoren. Als Folge der Kopplung zwischen HE<sub>11</sub>- $\lambda$ -Kavitätsmode und einer DBR-Mode sind also zwei Moden entstanden. Dieses Prinzip entspricht einer Kopplung der Ausgangszustände und äußert sich gleichzeitig in einer spektralen Aufspaltung, wie sie in Abb. 4.16 (unten) zu sehen ist. Der Verlauf ist typisch: Es gibt zwei unabhängige, abknickende Äste.

Nebenbei bewirkt eine größere Neigung der Seitenwand für die ungestörte Mode abseits des  $1,8^{\circ}$ -Winkels eine Blauverschiebung; d.h. obwohl der Durchmesser in der Mitte der  $\lambda$ -Kavität konstant bleibt, kommt die Verkippung einer effektiv dünneren Säule gleich. Insgesamt ergibt sich für verkippte Seitenwände eine komplexe Situation mit Moden in den Braggspiegeln, deren Resonanz vom Winkel, Durchmesser und der Anzahl der DBR-Paare abhängt. Eine pauschale Empfehlung ist für die Herstellung in diesem Punkt kaum möglich. Idealerweise sind die Seitenwände senkrecht. Falls dies herstellungsbedingt nicht möglich ist, kann lediglich geraten werden, bei einer bestimmten Anzahl an DBR-Paaren und einem festen Durchmesser gewisse Winkelintervalle zu meiden oder zu bevorzugen. So ist beispielsweise für die 3,3- $\mu$ m-Säule mit 30 DBR-Paaren wie in Abb. 4.14 der gesamte Bereich zwischen 1,1° und 3,0° empfehlenswert.

### 4.2.6 Modenvolumen

Abschließend zur Simulation der Säulenresonatoren wollen wir das Modenvolumen  $V_{\text{Mode}}$  untersuchen. Zur Beobachtung quantenelektrodynamischer Effekte in Resonatoren sollten die Verhältnisse  $Q/V_{\text{Mode}}$  oder  $Q^2/V_{\text{Mode}}$  maximal sein, vgl. Unterkapitel 2.2.

Zur Berechnung von  $V_{\text{Mode}}$  wird Gleichung 2.5 herangezogen. Exemplarisch wurde das Modenvolumen für Säulen mit 30 DBR-Paaren bestimmt; die Einheit ist normiert auf die Resonanzwellenlänge  $\lambda$  im effektiven Medium  $n_{\text{eff}}$ :

Durchmesser	Q	$\mathbf{V}_{\mathrm{Mode}}$	$\mathbf{Q}/\mathbf{V}_{ ext{Mode}}$	$\mathbf{Q^2}/\mathbf{V}_{\mathrm{Mode}}$
$1,0\mu{ m m}$	29.600	$6,5  (\lambda/n_{ m eff})^3$	$4554  (n_{\mathrm{eff}}/\lambda)^3$	$1,35 \cdot 10^8 (n_{\rm eff}/\lambda)^3$
$1,\!3\mathrm{\mu m}$	89.800	$8,7(\lambda/n_{ m eff})^3$	$10322  (n_{\mathrm{eff}}/\lambda)^3$	$9,27 \cdot 10^8 (n_{\rm eff}/\lambda)^3$
$2,0\mu{ m m}$	111.000	$20,4(\lambda/n_{\rm eff})^3$	$5441  (n_{\rm eff}/\lambda)^3$	$6,04 \cdot 10^8  (n_{\rm eff}/\lambda)^3$

Die errechneten Modenvolumina sind in sehr guter Übereinstimmung mit Kalkulationen anderer Gruppen [63]. Für beide Verhältnisse  $Q/V_{\text{Mode}}$  und  $Q^2/V_{\text{Mode}}$  wäre aus diesen Ergebnissen die 1,3-µm-Säule die Säule der Wahl. Denn der Q-Faktor nimmt bei dem Durchmesser von 1,3 µm noch einen sehr hohen Wert an, während das Modenvolumen gegenüber der 2-µm-Säule erheblich geschrumpft ist.

# 4.3 Gekoppelte Resonatorsäulen

Mit der Verbindung von Resonatoren soll das Ziel verfolgt werden, zukünftig eine Möglichkeit zur Kopplung von individuell adressierbaren Quantenpunkten – jeder in einem separaten Mikroresonator – über das elektromagnetische Feld einer Resonatormode zu schaffen. Denn gekoppelte Resonatorblöcke, die auch als *photonische Moleküle* bezeichnet werden, führen zu Moden, deren Intensitätsverteilung sich über diese gesamte gekoppelte Struktur ausdehnt [33]; sie werden im Folgenden als



Abbildung 4.17: Zwei über einen Steg gekoppelte Resonatorsäulen. Die Herstellung erfolgt wie bei der einzelnen Säule mit dem fokussierten Ionenstrahl; zugehörige  $\mu$ -PL-Messung siehe Abb. 4.19(a).

delokalisierte Moden bezeichnet. Der Begriff lokalisierte Moden umfasst dem entsprechend Moden, deren Intensitätsverteilung sich auf nur eine Säule innerhalb der gekoppelten Struktur begrenzt. In der Summe bleibt die Gesamtanzahl der Moden beim Zusammenschluss erhalten, d.h. zwei identische, gekoppelte Säulen besitzen zusammen doppelt so viele Moden wie jede einzelne.

Im ersten Abschnitt dieses Unterkapitels werden Säulen mit gleichen Durchmessern, die über einen Steg gekoppelt sind, experimentell und mit Hilfe einer Simulation analysiert. Dabei spiegelt sich die geometrische Symmetrie in den Moden wieder. Daraufhin werden im zweiten Abschnitt gezielt gekoppelte Strukturen hergestellt, in denen lokalisierte und delokalisierte Moden koexistieren. Mit Hilfe der Delokalisierung könnten zwei Quantenpunkte aneinander koppeln, während lokalisierte Moden individuelle, separate Ausleseprozesse erlauben würden.

# 4.3.1 Modenaufspaltung bei gleichen Durchmessern

Die naheliegendste Art, zwei Braggsäulen aneinander zu koppeln, besteht in der Verbindung über einen Steg wie in Abb. 4.17 gezeigt. Der Steg, der die beiden  $\lambda$ -Kavitäten verbindet, liegt zwischen dem oberen und dem unteren Braggspiegel. Von oben betrachtet hat die Anordnung etwa die Form einer Hantel und kann mit vier Parametern definiert werden: den beiden Säulendurchmessern (vorerst gleich groß), der Stegbreite und dem Abstand der Säulenmittelpunkte.

Für die Berechnung resonanter Moden greifen wir auf die Stufenindexfaser-Simulation aus Abschnitt 4.1.2 zurück. Zwar gibt sie keine Auskunft über die Q-Faktoren, dafür können aber beliebige Braggresonatorstrukturen simuliert werden, weil es nur



Abbildung 4.18: Berechnung der Resonanzen mittels Stufenindexfaser-Simulation: Bei einem konstanten Abstand der Säulenmittelpunkte (6  $\mu$ m) entsteht abhängig von der Stegbreite zwischen den gleich dicken Säulen (5  $\mu$ m) eine optische Kopplung. Je nach Stärke wird dadurch die Entartung der ursprünglichen Moden aufgehoben; die Grundmode spaltet in Ia und Ib auf. Die Intensitätsverteilungen rechts (blau minimale, rot maximale Intensität) zeigen ausschließlich delokalisierte Moden, die sich über die gesamte Struktur ausdehnen. Zusätzlich können die Moden nach symmetrisch (Ia, IIa und IIc) und antisymmetrisch (Ib, IIb und IId) geordnet werden.

auf den zweidimensionalen Querschnitt der unendlich ausgedehnten Faser ankommt.

Wie die Resonanzwellenlängen von der Stegbreite abhängen, ist Abb. 4.18 zu entnehmen. Bei einer verschwindenden Stegbreite sind die Resonanzwellenlängen der gekoppelten Struktur mit denen der einzelnen Säule identisch, d.h. auf Grund mangelnder Kopplung existieren in beiden Säulen unabhängig voneinander die ursprünglichen Moden bei gleicher Energie (Entartung). Mit zunehmender Stegbreite werden Entartungen aufgehoben und die drei Moden I bis III fächern in verschiedene Zweige auf. Die Grundmode I mit der größten Wellenlänge, ganz oben in der Abb., spaltet zuletzt auf; höhere Moden besitzen mehr Intensität am Säulenrand und erfahren die Kopplung so bereits bei einem schmaleren Steg als die Grundmode. Ein ähnliches Verhalten zeigt sich, wenn die Stegbreite festgehalten wird und dafür die Steglänge, d.h. der Mittelpunktsabstand der Säulen, modifiziert wird. Dabei stellt sich erwartungsgemäß die größte Aufspaltung der Moden beim kleinsten Abstand der Säulen ein, weil für diesen Fall die Säulen fast verschmelzen und so die Kopplung maximal ist.



Abbildung 4.19: Messung der spektralen  $\mu$ -PL-Intensität von zwei gekoppelten Säulenstrukturen, die sich nur in der Stegbreite unterscheiden. Die markierten Wellenlängenpositionen sind Berechnungen der Stufenindexfaser-Simulation, vgl. Abb. 4.18.

Bei einer Kopplung von gleichen Durchmessern entstehen auf Grund der Symmetrie nur Moden, deren Intensität über die gesamte Struktur verteilt ist, also delokalisierte Moden. Die Intensitätsverteilungen der aufgespaltenen Grundmoden Ia und Ib in Abb. 4.18 erlauben darüber hinaus eine Zuordnung nach symmetrischen und antisymmetrischen Moden, wonach letztere in der Mitte des Stegs eine Intensität gleich Null aufweist [62]. Auch höhere Moden lassen sich nach diesem Prinzip einteilen. Die symmetrischen Moden (Ia, IIa und IIc) besitzen eine niedrigere Energie als die antisymmetrischen (Ib, IIb und IId), vgl. Abb. 4.18. Als Anmerkung sei erwähnt, dass die einzelnen Äste Ia bis IId in der Simulation jeweils als zwei Moden mit gleicher Intensitätsverteilung zum Vorschein treten. Sie sind bei der einzelnen Säule auf eine Richtungsentartung der Felder zurückzuführen, die allerdings beim Zusammenschluss der beiden Säulen teilweise aufgehoben ist. Letzteres ist besonders gut bei den Moden IIc und IId für Stegbreiten größer 3,5  $\mu$ m zu erkennen, die in sich weiter aufspalten.

Zwei Stegbreiten sind in Abb. 4.18 mit vertikalen Streifen unterlegt:  $1,8 \,\mu\text{m}$  und  $3,8 \,\mu\text{m}$ . Die Geometrie an diesen Positionen entspricht den experimentell realisierten Strukturen; die erste von beiden ist in der elektronenmikroskopischen Aufnahme in Abb. 4.17 zu sehen. Lediglich der Durchmesser der Säulen weicht mit knapp  $4,8 \,\mu\text{m}$  vom 5- $\mu$ m-Soll leicht ab. Die daran gemessenen Spektren in Abb. 4.19 unterscheiden sich deutlich voneinander, stimmen aber sehr gut mit der Stufenindexfaser-Simulation überein, deren Resonanzwellenlängen als vertikale Linien markiert sind. Beim  $1,8-\mu\text{m}$ -Steg sind die Grundmoden noch entartet. Dagegen reicht beim  $3,8-\mu\text{m}$ -Steg die Kopplungsstärke aus, die Grundmoden in Ia und Ib aufzuspalten. Zusätzlich rutscht die Mode IIa deutlich zu größerer Wellenlänge.

Die gute Übereinstimmung zwischen Simulation und Messung erlaubt eine ganz

klare Zuordnung der Moden. Geringe spektrale Abweichungen können mit Fehlern in den vier oben erwähnten, geometrischen Parametern zusammenhängen; so ist z.B. die Stegbreite auf der Höhe der  $\lambda$ -Kavität nicht unmittelbar bei Messungen mit dem Rasterelektronenmikroskop zugänglich und muss über die Verkippung der Seitenwand abgeschätzt werden. Grundsätzlich zeigt aber die hohe Vergleichbarkeit, dass sich die verwendete Simulationsmethode hervorragend für das Design und die Entwicklung gekoppelter Säulenresonatoren eignet.

# 4.3.2 Koexistenz lokalisierter und delokalisierter Moden

Die gekoppelten Säulen mit gleichen Durchmessern besitzen viele delokalisierte Moden. Eine Kopplung von zwei Quantenpunkten in je einer Säule wäre somit denkbar. Doch um die Quantenpunkte optisch getrennt voneinander anzusprechen oder deren Information auszulesen, könnten zusätzliche Moden mit einer Lokalisierung in nur einer Säule hilfreich sein. Offensichtlich müssen dafür zwei ungleiche Säulen verbunden werden.

Bei einer Kopplung von Säulen mit beliebigen ungleichen Durchmessern werden sich im Allgemeinen Moden einstellen, deren Intensität sehr inhomogen über die gesamte Struktur verteilt ist. Denn auf Grund der beliebigen Asymmetrie gibt es für niedrige Moden keine entarteten Zustände auf beiden Seiten, so dass sich bezüglich der Intensitätsverteilung ein Schwerpunkt auf einer Seite ausbildet.

#### Auswahl der Durchmesser

Um die richtige Paarung von Durchmessern für lokalisierte und delokalisierte Moden zu finden, gehen wir wie folgt vor: Die Resonanzwellenlängen einer Säule hängen von deren Durchmesser ab (vgl. auch Abschnitt 4.1.2). Basierend auf diesem Zusammenhang wählen wir als Beispiel einen ersten Durchmesser von 5  $\mu$ m, siehe Abb. 4.20. Darin besitzt die höhere Mode III eine Resonanz bei 931,1 nm. Nun suchen wir einen anderen Durchmesser, der bei der gleichen Wellenlänge eine Mode aufweist. Dickere Säulen haben einen kleineren energetischen Abstand zwischen den Moden, so dass die Gefahr besteht, dass die Moden insbesondere im Experiment nicht mehr differenziert und zugeordnet werden können. Eine 3,7- $\mu$ m-Säule zeigt bei der gleichen Wellenlänge von 931,1 nm die Mode II. Diese Durchmesserpaarung sollte als gekoppelte Struktur delokalisierte Moden aufweisen, die sich aus der Mode II der 3,7- $\mu$ m-Säule und der Mode III der 5,0- $\mu$ m-Säule zusammensetzen, im Folgenden als II-III-Moden bezeichnet. Außerdem besitzen die Grundmode I der dünnen Säule und die Moden I und II der dicken Säule keinen Gegenpart in der anderen Säule



Abbildung 4.20: Ausgehend von den durchmesserabhängigen Resonanzwellenlängen einer einzelnen Säule (durchgezogene Kurven im Diagramm) können durch Kopplung unterschiedlich dicker Säulen lokalisierte oder delokalisierte Moden in einer Struktur erreicht werden. Delokalisierte Moden entstehen, wenn in den unverbundenen Säulen bereits Moden bei gleicher Energie vorhanden sind, z.B. Mode II in der 3,7- $\mu$ m-Säule und Mode III in der 5,0- $\mu$ m-Säule. Lokalisierte Moden bilden sich hingegen aus, wenn eine Mode kein energetisch gleiches Pendant in der anderen Säule findet.

so dass keine Kopplung zur anderen Seite stattfindet, siehe Abb. 4.20. Daraus entwickeln sich lokalisierte Moden, Nomenklatur hier: I-0, 0-I, 0-II ("0" für keine Mode auf der anderen Seite).

Berechnungen zur Intensitätsverteilung mit der Stufenindexfaser-Simulation bestätigen die Charakteristik dieser Moden, siehe Abb. 4.20 rechts. Die delokalisierte Mode II-III spaltet in eine annähernd symmetrische II-III*a* Mode und eine vergleichbar antisymmetrische Mode II-III*b* auf. Die lokalisierten Moden 0-I und I-0 beschränken ihre Intensität auf eine Seite, sind aber durch den vorhandenen Steg gegenüber der ursprünglichen Mode (Abb. 4.6) leicht deformiert.

### Experimentelle Realisierung und ortsaufgelöste Lumineszenz

Das gleiche Verhalten wurde in einer experimentell realisierten Säulenstruktur nachgewiesen. Die Durchmesser betrugen  $3,7 \,\mu\text{m}$  und  $5,0 \,\mu\text{m}$ ; der Steg wurde so gewählt, dass eine ausreichende Kopplung zwischen den Säulen vorhanden ist  $(2,9 \,\mu\text{m})$  breit, Mittelpunktsabstand:  $5,67 \,\mu\text{m}$ ), siehe Abb. 4.21(a). Bei der Detektion mit einer CCD-Kamera kann entlang des Spektrometerspalts die räumliche Verteilung der spektral aufgelösten Photolumineszenz gemessen werden. Bei entsprechender Aus-



Abbildung 4.21: In der gekoppelten Säulenstruktur mit den Durchmessern 3,7  $\mu$ m und 5,0  $\mu$ m entstehen aus den ursprünglichen Moden II und III delokalisierte Moden: (a) Elektronenmikroskopische Aufnahme der realisierten Struktur (A0352a-2). (b,c) Räumlich aufgelöste  $\mu$ -PL-Intensität (farbkodiert: schwarz null, weiß maximal) der gekoppelten Säulenstruktur entlang der Verbindungsachse; in Kontur gestrichelt markiert. In (b) erfolgte die Anregung (roter Punkt) auf der dicken Säule, in (c) auf der dünnen Säule. Jeweils darunter finden sich räumlich integrierte Spektren: Die delokalisierten Moden II-IIIa/II-IIIb ändern abhängig von der Anregungsposition darin die Höhe ihrer Maxima kaum; dagegen hängen die Höhen der lokalisierten Moden (0-I, I-0, 0-II) stark von der Anregungsposition ab. Die vertikalen Linien in den integrierten Spektren sind die berechneten Resonanzwellenlängen.

richtung der gekoppelten Probenstruktur wurde so die Lumineszenz entlang der Verbindungsachse aufgenommen, siehe Abb. 4.21(b,c). Damit ist ersichtlich, ob eine lokalisierte oder delokalisierte Mode vorliegt und in welchem Teil der Struktur sie sich befindet.

Abbildung 4.21(b) und (c) gibt zwei Messungen an genau dieser gekoppelten Struktur wieder. Der Unterschied liegt nur in der Anregungsposition des Lasers: in (b) war der Anregungslaser auf die dicke Säule fokussiert, in (c) auf die dünne (symbolisiert durch den roten Punkt in der Kontur daneben). In beiden Fällen wurden spektral die gleichen Moden detektiert, die sich sehr gut mit den berechneten Resonanzwellenlängen<sup>5</sup> decken und so eine eindeutige Zuordnung der Moden ermöglichen. Außerdem lässt sich die räumliche Struktur der einzelnen Moden entlang der Verbindungsachse ablesen, wonach die mit 0-I (I-0) bezeichnete Mode gerade in der dickeren (dünneren) Säule ihr Maximum besitzt – genau so, wie man es nach der Intensitätsverteilung in Abb. 4.20 erwartet. Von den delokalisierten Moden ist die Mode II-III*a* am besten zu erkennen. Sie weist genau drei Maxima entlang der Symmetrieachse auf, wie auch in Abb. 4.20. Simulation und Messung stimmen so in allen Punkten überein.

Die unterschiedlichen Anregungspositionen der  $\mu$ -PL-Messungen offenbaren noch mehr: Es liegt auf der Hand, dass die lokalisierten Moden gerade dann besonders stark angeregt werden, wenn sie mit der räumlichen Position des Lasers übereinstimmen; gut ablesbar ist dieser Sachverhalt in den räumlich integrierten Spektren unter den farbkodierten Darstellungen in Abb. 4.21(b-c), wo sich das Verhältnis der Maxima von 0-I und I-0 zwischen (b) und (c) umkehrt. Andererseits ist aber in den räumlichen Auflösungen zu erkennen, dass diese Moden unabhängig von der Anregungsposition ihre entsprechende einseitige Intensitätsverteilung beibehalten; d.h. bei einer resonanten Anregung könnten so mit Hilfe der lokalisierten Moden gezielt nur Quantenpunkte auf einer Seite der Struktur angesprochen werden, während es auf der anderen Seite für diese Wellenlänge keinen Zustand gibt, so dass das Licht dort nicht eindringen könnte.

Die delokalisierten Moden II-III*a* und II-III*b* werden dagegen immer gleich stark angeregt. Die Höhen ihrer Maxima sind in beiden Fällen räumlich vergleichbar, was im Umkehrschluss bedeutet, dass Quantenpunkte bei dieser Wellenlänge auf beiden Seiten gleich gut an die Mode ankoppeln können. Letzteres ist wichtig, wenn zum Beispiel ein Quantenpunkt in der dickeren Säule mit einem Quantenpunkt in der dünneren Säule über die Mode gekoppelt werden soll.

Neben der hier vorgestellten Struktur mit II-III-Kopplung wurden auch I-II-Kopplungen entworfen und realisiert. Dabei fallen die fundamentale Mode I der dünneren Säule und die zweite Mode II der dickeren Säule energetisch zusammen und bilden wiederum eine delokalisierte Mode. Gleichzeitig konnte darin nur eine lokalisierte Mode 0-I, die zuvor der Grundmode der dickeren Säule entsprach, gemessen werden. Höhere lokalisierte Moden zu finden ist schwieriger, weil sie vom Kopplungssteg stärker beeinflusst werden (vgl. Abb. 4.18) und außerdem mit ihren geringeren Q-Faktoren eher dazu tendieren, mit energetisch benachbarten (delokalisierten) Moden zu verschmelzen, d.h. in der Messung nicht mehr als lokales Intensitätsmaximum in der Struktur auflösbar sind.

<sup>&</sup>lt;sup>5</sup>Die Resonanzwellenlängen in Abb. 4.20 und Abb. 4.5 sind auf die Probe A0310 abgestimmt. Auf der (nominell gleichen) Probe A0352a sind die Resonanzen dazu rotverschoben. Die Höhe der  $\lambda$ -Kavität wurde in der Simulation daran angepasst.

Insgesamt konnte auf diese Weise mit hervorragender Übereinstimmung zu den Simulationsergebnissen auch experimentell die Koexistenz von lokalisierten und delokalisierten Moden bewiesen werden. Damit wäre zumindest aus der Sicht der Modenstruktur nicht nur die Kopplung zweier Quantenpunkte über das elektromagnetische Feld einer delokalisierten Mode denkbar, sondern auch das Ansprechen eines individuellen Quantenpunkts, beispielsweise zur Anregung oder zum Auslesen des entsprechenden elektronischen Zustands.

# 4.4 Beobachtung einzelner Quantenpunkte in Säulenresonatoren

Der Schwerpunkt der vorliegenden Arbeit lag bislang in der Charakterisierung der Mikroresonatoren und deren optischer Moden. Zu diesem Zweck wurden in den experimentellen Untersuchungen die eingebauten Quantenpunktensembles als breitbandige, interne Lichtquelle verwendet.

Das Fernziel besteht in der Kopplung einzelner, räumlich getrennter Quantenpunkte. Dazu muss die Emission aus einzelnen Quantenpunkten beobachtet werden. Außerdem ist, abgesehen von der räumlichen Übereinstimmung der Quantenpunktposition mit der Intensitätsverteilung der optischen Mode, eine energetische Verschiebung der Quantenpunktemission zur spektralen Abstimmung mit der Mode notwendig. Auf zwei Wegen kann die Quantenpunktemission nach der Herstellung noch beeinflusst werden: über die Temperatur und über das elektrische Feld (siehe auch Abschnitt 2.4.3). Im Folgenden werden erste Ergebnisse diskutiert.

### 4.4.1 Temperaturabhängige Quantenpunktemission

Die Beobachtung des Temperature<br/>influsses auf die Quantenpunktemission lässt sich bei den ohne<br/>hin im Kryostat stattfindenden Messungen einfach bewerkstelligen. Um einzelne Quantenpunkte im Spektrum der Säulenmoden zu beobachten, muss die Anregungsleistung des Lasers ausreichend gering sein, weil ansonsten die Moden das Spektrum dominieren und der hohe Untergrund die Emission einzelner Quantenpunkte überdecken. So liegt die Laserleistung bei einem Anregungsspot von etwa<br/>2 $\mu$ m Durchmesser zur Messung von Quantenpunkten in der Größenordnung weniger Mikrowatt – werden dagegen nur Moden charakterisiert, eignet sich eine Leistung von wenigen Milliwatt.

Je nach Anregungsleistung werden für die Quantenpunkte in der Resonatorsäule In-



4.4 Beobachtung einzelner Quantenpunkte in Säulenresonatoren

Abbildung 4.22: (a) Die Emission eines Quantenpunkts (scharfes Maximum in den normierten  $\mu$ -PL-Spektren) durchläuft auf Grund der spektralen Verschiebung mit der Temperatur die Grundmode einer 3- $\mu$ m-Resonatorsäule (grau ausgefüllt; Probe: A0492a; siehe auch Ref. [131]). In den gleichen Spektren finden sich weitere Quantenpunktmaxima, von denen im dargestellten Wellenlängenbereich nur zwei zu erkennen sind (unterlegt mit grauen Kreisen). In (b) sind die gemittelten und untergrund-korrigierten Intensitäten von fünf Quantenpunkten im selben Spektrum zum Quantenpunkt QD<sub>Mode</sub>, der durch die Mode schiebt, ins Verhältnis gesetzt. Daraus liest man eine Erhöhung der Quantenpunktemission von QD<sub>Mode</sub> im Resonanzfall mit der Mode ab.

tensitäten von vergleichbarer Höhe wie der Mode gemessen, siehe Spektren in Abb. 4.22(a). Die überragende Emission eines einzelnen Quantenpunkts  $QD_{Mode}$  (dick hervorgehoben) konnte darin mit Hilfe der Temperatur durch das Maximum der Säulenmode (grau ausgefüllt) geschoben werden. Die Säule mit einem Durchmesser von  $3 \mu$ m hat eine Grundmode mit  $Q \geq 7.000$ . Eine Aufspaltung, wie man sie für starke Kopplung erwartet, wurde nicht beobachtet. Dafür dürfte die Wechselwirkung zwischen Quantenpunkt und Mode hier zu gering sein. Allerdings konnte eine erhöhte Quantenpunktemission in Resonanz festgestellt werden, wie sie beim Purcell-Effekt zu messen ist. Um letzteres zu quantifizieren, wurden außer dem  $QD_{Mode}$  noch fünf weitere Quantenpunktmaxima in den Spektren berücksichtigt – im gezeigten Wellenlängenbereich der Spektren in Abb. 4.22(a) sind nur zwei davon enthalten (mit Kreisen markiert). Denn nur die Relation des durchschiebenden Quantenpunkts  $QD_{Mode}$  zu anderen Quantenpunkten abseits der Resonanzmode ist

ausschlaggebend.

Die Höhe der Quantenpunktmaxima wurde um deren Untergrund korrigiert. In diesem Sinne zählt auch die Höhe der Resonatormode an der spektralen Position des Quantenpunkts  $QD_{Mode}$  zum Untergrund, welcher gerade im Bereich der spektralen Übereinstimmung zwischen 28 K und 30 K beträchtliche Werte annimmt. Die Höhe des durch die Mode schiebenden Quantenpunkts  $QD_{Mode}$  wurde durch die mittlere normierte Höhe der anderen fünf Quantenpunkte geteilt und ist in Abb. 4.22(b) dargestellt. Dieses Intensitätsverhältnis besitzt gerade um 29 K ein Maximum, wo auch das Maximum von  $QD_{Mode}$  mit der Resonatormode in Abb. 4.22(a) spektral übereinstimmt. Demzufolge ist die Quantenpunktemission in Resonanz mit der Mode etwa um den Faktor zwei erhöht. Dieser Wert darf allerdings nicht direkt mit dem Purcellfaktor aus Gl. 2.9 gleichgesetzt werden. Vielmehr beschreibt diese Zahl einen maximalen Purcellfaktor, weil die Resonatormode stark nach oben gerichtet abstrahlt und so die Quantenpunktemission in Resonanz effizient in diese (Mess-)Richtung ausgekoppelt wird.

Säulenresonatoren, bei denen von einer starken Kopplung mit einzelnen Quantenpunkten berichtet wurde, sind fast vergleichbar mit den hier untersuchten Säulen [31, 30]. Entscheidend für den Erfolg waren dort jedoch modifizierte Quantenpunkte mit extrem hoher Oszillatorstärke. Nicht zu letzt ist dabei auch die räumliche Übereinstimmung von Quantenpunkt und Intensitätsmaximum der Mode entscheidend, über die bei der Messung in Abb. 4.22 keine Aussage getroffen werden kann.

## 4.4.2 Anlegen elektrischer Spannungen

Beim Anlegen eines elektrischen Feldes an einen angeregten Quantenpunkt wird die Wellenfunktion des Exzitons deformiert, was durch den Stark-Effekt in Quantensystemen zu einer Energieverschiebung führt (siehe Abschnitt 2.4.3). Diese Art der Quantenpunktenergieverschiebung hat den Vorteil, dass sie nicht so träge wie die Temperaturanpassung der ganzen Probe ist.

Mit einer geeigneten Vorstrukturierung und Kontaktierung der Probe können Elektroden auf der Probe so integriert werden, dass die Quantenpunkte in den Resonatorsäulen entweder lateralen oder vertikalen elektrischen Feldern ausgesetzt sein sollten. In Abbildung 4.23 ist der Aufbau für beide Konfigurationen zu erkennen. Als Ausgangspunkt wird jeweils die planare Probe zuerst vorstrukturiert, danach werden an dieser Struktur ausgerichtet die Säulen hineingefräst und zuletzt die Kontaktflächen durch 25  $\mu$ m dicke Golddrähte mit einer äußeren Platine verbunden.

Für das laterale Feld werden zwei dicht aneinander liegende, komplementäre Fingerstrukturen aus aufgedampften Gold auf die undotierte Probe gebracht, womit

#### 4.4 Beobachtung einzelner Quantenpunkte in Säulenresonatoren



Abbildung 4.23: Experimentelle Realisierungen zur Anlegung elektrischer Felder an Säulenresonatoren: (a) Um ein laterales Feld zu erzeugen, werden lithographisch Goldfinger mit großen Kontakten auf die Probe aufgebracht. Über dünne, angeklebte Golddrähte kann eine Spannung angelegt werden, so dass ein elektrisches Feld an der Säule zwischen den Goldfingern abfällt. (b) Ein vertikales Feld kann angelegt werden, indem die Resonatorsäule als p-i-n-Diode aufgebaut wird, d.h. die DBRs sind teilweise dotiert, die  $\lambda$ -Kavität mit den Quantenpunkten bleibt intrinsisch.

gleichzeitig auch die Kontaktflächen definiert werden [131]. Danach wird die Säule an einer beliebigen Stelle zwischen den Fingern hineingeschnitten; in Abb. 4.23(a) beträgt der Fingerabstand 30  $\mu$ m. Erst dann werden zur elektrischen Kontaktierung die Golddrähte mit Epoxidharz auf die Goldflächen geklebt.

Für elektrische Felder in Wachstumsrichtung wurde ein Konzept entwickelt, wie auch gekoppelte Säulen unabhängig voneinander angesteuert werden könnten: Damit die später angelegte Spannung über einen möglichst kurzen Abstand abfällt, wird die Probe beim Wachstum dotiert. Nur die  $\lambda$ -Kavität und die untere Hälfte des oberen Braggspiegels bleiben intrinsisch. Auf die planare Probe werden Kontaktflächen aufgedampft, die für einen n-dotierten oberen Braggspiegel aus Indium bestehen. Danach wird ein großer Mesa aus der Probe herausgeätzt, der zwei Indiumkontaktflächen über einen dünnen Steg (ca.  $40\,\mu\text{m}$  breit) verbindet, siehe Abb. 4.23(b). In diesen dünnen Steg wird mit dem fokussierten Ionenstrahl die gekoppelte Säulenstruktur mitsamt noch dünneren Kontaktstegen zur Seite (ca.  $1.5 \,\mu \text{m}$  breit) hineingefräst, siehe Vergrößerung in Abb. 4.23(b). Um die beiden Indiumkontakte danach noch elektrisch zu separieren und so die Möglichkeit einer unabhängigen Kontrolle der zwei Säulen zu öffnen, reicht es aus, mit dem fokussierten Ionenstrahl einen Spalt zwischen die beiden Säulen zu schneiden, der tiefer als die n-Dotierung des oberen Braggspiegels ist, aber die  $\lambda$ -Kavität verbunden lässt. Wie zuvor bilden Golddrähte dann den elektrischen Kontakt zu einer umgebenden Platine.

Bei der lateralen Konfiguration konnten Verschiebungen von bis zu 0,3 nm für einen Quantenpunkt beobachtet werden. Allerdings ist noch nicht auszuschließen, dass da-

bei weniger das elektrische Feld als vielleicht vielmehr eine lokale Erwärmung durch einen endlichen Stromfluss die Rotverschiebung bewirkte [131]. Auch ist zu bemerken, dass der Stromfluss zwischen den Fingerstrukturen bei hineingefrästen Säulen gegenüber planaren Proben deutlich anstieg. Vermutlich erzeugt ein mit Defekten angereicherter Ring um die Säule herum – entstanden durch das Ionenbombardement bei der Herstellung – eine höhere Leitfähigkeit der an sich intrinsischen Probe. Ab gewissen Schwellströmen, die abhängig von der Fingerstruktur und der Anregungslaserleistung waren, brach die Emission der Quantenpunkte bis hin zum vollständigen Verschwinden stark ein. Möglicherweise sind die Exzitonen dabei auf Grund des elektrischen Feldes oder der Wärmeentwicklung kaum mehr in den Quantenpunkten eingeschlossen.

An der vertikalen Konfiguration konnte bislang kein Einfluss auf die Quantenpunktemission gemessen werden. Allerdings offenbarte sich in der Wellenlänge der Resonanzmode eine Verschiebung von bis zu 0,04 nm beim Umschalten zwischen Durchlass- und Sperrrichtung dieser p-i-n-Diode (Probe A0519a). Erklärt werden könnte dieser Effekt über zusätzliche Ladungsträger, die durch die anliegende Spannung aus der dotierten Schicht in die intrinsische  $\lambda$ -Kavität gedrückt werden, welche gleichzeitig den Brechungsindex verändern und so die Resonanz der Säule beeinflussen können [132].

Die Verschiebung der Quantenpunktemission durch den Stark-Effekt hängt von mehreren Parametern ab. Zum einen sollte für einen maximalen Effekt der Spannungsabfall über dem Quantenpunkt möglichst groß sein; zum anderen bestimmen aber auch die Größe und der Indiumgehalt des Quantenpunkts, inwieweit das Exziton unter dem Einfluss des elektrischen Feldes noch im Quantenpunkt eingesperrt ist bzw. strahlend rekombinieren kann. Insofern lassen sich die Quantenpunkte für den Einsatz im elektrischen Feld auch optimieren.

Doch wenngleich der eindeutige Zusammenhang zwischen Quantenpunktverschiebung und angelegtem elektrischen Feld an den gemessenen Proben noch fehlt, so versprechen die gefundenen Effekte dennoch ein hohes Potenzial zur spektralen Abstimmung von Quantenpunkt und Resonatormode. Nicht zuletzt könnte auch eine lokale Erwärmung durch den fließenden Strom von Nutzen sein, da sie im Gegensatz zur Temperaturregulierung der gesamten Probe nicht so träge wäre. Lediglich dotiertes Material sollte mit Bedacht eingesetzt werden, da es in der Resonatorsäule über zusätzliche Absorption die Güte des Resonators begrenzen könnte (vgl. Abschnitt 4.2.2).

# 4.5 Fazit

Säulenförmige Braggresonatoren sind aussichtsreiche Kandidaten, die die Aufgabe einer Kopplung von räumlich getrennten Quantenpunkten über das Lichtfeld einer resonanten Mode erfüllen könnten. Im Hinblick auf dieses Ziel wurden in dieser Arbeit sowohl einzelne als auch gekoppelte Resonatorsäulen untersucht.

Die Grundmode einer einzelnen Säule mit 25 Braggspiegelpaaren oben und unten erreicht dabei im Experiment einen Q-Faktor bis knapp 20.000 für einen Durchmesser von  $10 \,\mu\text{m}$ , bzw. 18.000 (9.000) bei  $5 \,\mu\text{m}$  ( $3 \,\mu\text{m}$ ). In der Simulation liegt der maximale Wert für die ideale Struktur mit dieser Anzahl an DBR-Paaren bei 50.000.

Darüber hinaus kann man aus der rotationssymmetrischen Simulation der finiten Elemente lernen, wodurch der Lichteinschluss limitiert ist. In den realisierten Geometrien dürfte demzufolge vornehmlich die Anzahl der DBR-Paare der begrenzende Faktor sein. Außerdem muss bei der Herstellung auf die Absorption in der Säule geachtet werden. Neben der Materialqualität, d.h. der Defektdichte im epitaktisch gewachsenen GaAs und AlAs, verstärken auch der Ionenbeschuss beim Ausfräsen der Säule und die eingebauten Quantenpunkte die Absorption. Während der Ionenstrom zur Herstellung schon gut eingestellt erscheint, gäbe es bei den Quantenpunkten durch Reduktion der Zustände in der spektralen Nachbarschaft der Mode noch Optimierungsmöglichkeiten. Allem voran aber dürfte die Erhöhung der Braggspiegelpaare auf 30 und mehr zu entscheidenden Q-Steigerungen verhelfen.

Die ideale Säulengeometrie besitzt keine Verkippung in der Seitenwand und einen vollständig freigelegten unteren Braggspiegel. Abgesehen von dünnen Säulen mit Durchmessern unterhalb 1,5  $\mu$ m, bei denen die Grundmode mit teilweise hohen Verlusten an Moden im DBR ankoppelt, wird der theoretisch erreichbare Q-Faktor durch die Materialabsorption begrenzt. Unter Berücksichtigung einer realistischen Absorption im GaAs konnte mit Hilfe der Simulation erstmals eine Obergrenze der Resonatorgüte berechnet werden. Für säulenförmige Braggresonatoren aus GaAs und AlAs beträgt sie maximal Q = 250.000 (mindestens 40 DBR-Paare und einem 3- $\mu$ m-Durchmesser) und zeigt, wie weit der maximale Lichteinschluss experimentell noch optimiert werden kann.

Um eine starke Kopplung zu erreichen, sind aber nicht nur *Q*-Faktor und Modenvolumen der Mode ausschlaggebend. Der Emitter muss eine maximale Oszillatorstärke besitzen. Wie andere Gruppen berichten, kann die Ankopplung im Falle deformierter, länglicher Quantenpunkte als Emitter zu diesem Zweck extrem erhöht werden.

Mit der Motivation individuell adressierbarer Quantenpunkte bildeten gekoppelte Resonatorsäulen einen weiteren Schwerpunkt der Arbeit. Ein Simulationsmodell, basierend auf einer unendlich ausgedehnten Stufenindexfaser, diente als Grundlage, gekoppelte Säulen mit ungleichen Durchmessern so zu entwickeln, dass lokalisierte und delokalisierte Moden koexistieren. Die Übereinstimmung der Simulation mit den gemessenen Strukturen ist dabei nahezu perfekt. Eignen würde sich das Konzept der lokalisierten und delokalisierten Moden nicht nur zur optischen Kopplung zwischen den Quantenpunkten, sondern auch im Hinblick auf einen separaten Ausleseprozess.

Zu guter Letzt wurden einzelne Quantenpunkte in den Resonatorsäulen detektiert. Über das unterschiedliche Temperaturverhalten von Quantenpunktemission und optischer Mode können beide spektral sehr präzise aufeinander abgestimmt werden. Die Palette der Einflüsse und Abstimmungsmöglichkeiten kann für eine elektrische Kontaktierung der Mikrostruktur noch ergänzt werden. Auftretende Verschiebungen bei angelegter Spannung sind entweder dem Stark-Effekt oder lokalen Erwärmungen durch einen endlichen Stromfluss zuzurechnen. In jedem Fall bieten sie eine weitere Option zur energetischen Feinabstimmung.

# Kapitel 5

# Zusammenfassung und Ausblick

Im Fokus dieser Arbeit standen die Untersuchung mit Simulationen sowie die experimentelle Erforschung zur Güte und Modenverteilung optischer Resonanzen zweier verschiedener Mikroresonatortypen: *Säulenresonatoren* und neuartige *pyramidale Mikroresonatoren*.

Die Pyramidenform als Mikroresonator war bislang noch recht unerforscht. Dabei bietet sie mehrere Vorteile: Durch die pyramidale Form dürfte es bereits für konventionelle, selbstorganisiert gewachsene Quantenpunkte möglich sein, die absolute Quantenpunktanzahl über die Lage der Quantenpunktebene relativ zur Pyramidenhöhe zu kontrollieren. Die nasschemische Herstellung erwies sich darüber hinaus in Bezug auf die Geometrie als sehr flexibel und dürfte im Gegensatz zum Ionenbeschuss bei der Säulenherstellung kaum zusätzliche Defekte an der Oberfläche erzeugen. Und im Hinblick auf kleine Modenvolumina bieten besonders freistehende Pyramiden ein hohes Potenzial, weil das elektromagnetische Feld der Mode kaum in die Umgebung eindringt. Allerdings ist es bei den Pyramiden noch nicht gelungen, die spektralen Positionen von Moden und deren Güte zu kontrollieren.

Die Säulen besitzen hingegen die Vorzüge einer gerichteten Abstrahlung senkrecht zur Probenoberfläche und hohe optische Resonatorgüten. Zudem können hier die spektralen Positionen der Resonanzen über die Schichtdicke zwischen den Braggspiegeln und durch den Säulendurchmesser sehr genau realisiert werden. Gerade dieser letzte Aspekt erlaubte auch die Herstellung gekoppelter Resonatorsäulen mit einer gezielten räumlichen Intensitätsverteilung der Moden.

Für beide Resonatortypen konnten verbundene Formen hergestellt werden. Aber dennoch muss mit Blick auf das Fernziel, der Kopplung räumlich getrennter Quantenpunkte über das Lichtfeld einer Mode, festgestellt werden, dass der Ansatz mit Resonatorsäulen wesentlich aussichtsreicher erscheint. Denn bislang besteht nur für
diesen Resonatortyp die notwendige Kontrolle über die optischen Moden insbesondere auch in den gekoppelten Säulen.

Gleichwohl zeichneten sich in dieser Arbeit für beide Mikroresonatortypen interessante Aspekte ab. Sie sollen im Folgenden noch einmal für jeden Typ getrennt rekapituliert werden.

#### Pyramidale Mikroresonatoren

Bei der pyramidalen Form stand der Nachweis optischer Moden und die Bestimmung ihrer Güten an erster Stelle. Das Materialsystem GaAs ist in Verbindung mit der in dieser Arbeit verwendeten nasschemischen Herstellung der Pyramiden bisher einzigartig. Um so erfreulicher ist das Ergebnis, dass in den pyramidalen GaAs-Formen Resonatormoden zweifelsfrei nachgewiesen werden konnten. Im Detail wurden drei verschiedene Pyramidenstrukturen untersucht, allesamt mit optischen Moden: Pyramiden auf Braggspiegeln, freistehende Pyramiden und mit Braggspiegeln umschlossene Pyramidenstümpfe.

In diesen drei Ausprägungen lässt sich der Lichteinschluss auf verschiedene Ursachen zurückführen. Während freistehende GaAs-Pyramiden auf dem Prinzip des hohen Brechungsindexkontrasts zur Umgebung beruhen und in den überwachsenen Pyramidenstümpfen das Licht in allen Richtungen durch Reflexion an den umliegenden Braggspiegeln eingeschlossen ist, bildet die ursprüngliche Grundform (GaAs-Pyramide auf einem GaAs/AlAs-Braggspiegel) diesbezüglich eine Mischform: Braggspiegel unten und Totalreflexion an den Facetten.

Mit Hilfe von Mikrophotolumineszenzmessungen wurden an einzelnen auf Braggspiegeln stehenden GaAs-Pyramiden mit einer Kantenlänge von 2,4  $\mu$ m an der Grundfläche Resonatorgüten bis Q = 700 detektiert. Simulationen an vergleichbar großen Kegeln auf Braggspiegeln ergaben mit einer starken Abhängigkeit vom Kegelwinkel Q-Faktoren bis maximal 3600. Geht man bei den Pyramiden von einer ähnlichen Abhängigkeit vom Facettenwinkel aus, bietet das flexible nasschemische Herstellungsverfahren große Chancen auf eine weitere Optimierung des Lichteinschlusses. Denn im Gegensatz zum selbstorganisierten Wachstum, bei dem der Facettenwinkel der Pyramiden durch Kristallebenen festgelegt ist, bestimmt beim Ätzen das Verhältnis der Komponenten (Phosphorsäure, Wasserstoffperoxid und Wasser) den resultierenden Winkel; ein Bereich von 20° bis 60° wurde dabei realisiert.

Das berechnete Modenvolumen von Pyramiden auf DBRs liegt in der Größenordnung der Volumina dünner Säulenresonatoren. Dabei ist wie bei allen Braggresonatoren zu erkennen, wie das elektromagnetische Feld der Mode in den Braggspiegel eindringt und so das Modenvolumen vergrößert. Bei freistehenden Pyramiden dringt das Feld hingegen nur geringfügig in die Umgebung ein. Die freistehende Form lässt deshalb ein kleineres Modenvolumen erwarten, was zur Beobachtung quantenmechanischer Effekte im Mikroresonator sehr wünschenswert ist.

Die so genannte "freistehende Pyramide" oder "Deckelpyramide" bildet dabei den oberen Teil einer vertikal gekoppelten Pyramidenstruktur, bei der sich sanduhrförmig nur die Pyramidenspitzen berühren. Optische Messungen und Simulationen deuten darauf hin, dass die obere Pyramide in Bezug auf den Lichteinschluss isoliert betrachtet werden kann. *Q*-Faktoren bis 3000 wurden daran gemessen und damit ein Vielfaches des *Q*-Faktors von Pyramidenmoden auf einem Braggspiegel. Der Vergleich mit Simulationen an Kegeln ist dabei etwas schwierig, da die Form der Grundfläche für den freistehenden Fall sehr ausschlaggebend erscheint. Flüstergaleriemoden mit *Q*-Faktoren bis 200.000 im simulierten Kegel legen aber nahe, dass der Lichteinschluss in den Pyramiden noch erheblich verbessert werden kann, wenn statt der quadratischen Grundfläche beispielsweise ein regelmäßiges Achteck die Grundfläche bildet. Letzteres könnte mit einer geeigneten Ätzmaske hergestellt werden; die Kegelform, die in der Simulation sehr hohe *Q*-Faktoren erreicht, kann dagegen auf Grund der Anisotropie im GaAs nicht geätzt werden.

Insgesamt sind die freistehenden Pyramiden deshalb mit ihrem tendenziell kleinen Modenvolumen und weiter optimierbaren *Q*-Faktoren sehr viel versprechend. Durch die pyramidale Form kann mit der relativen Position der Quantenpunktlage zudem die absolute Anzahl der Quantenpunkte gut kontrolliert werden, was diese Struktur auch für Anwendungen im Bereich von Einzelphotonenemittern interessant macht.

Die mit GaAs/AlAs-Braggspiegeln eingeschlossenen GaAs-Pyramidenstümpfe wiesen bisher mit  $Q \simeq 5000$  die besten Resonatorgüten auf. Durch den DBR-Einschluss dürften sie jeoch auch die größten Modenvolumina besitzen und deshalb in den Verhältnissen  $Q/V_{\rm Mode}$  (für schwache Kopplung) bzw.  $Q^2/V_{\rm Mode}$  (für starke Kopplung) schlechter abschneiden als die freistehenden Pyramiden. Es ist jedoch bemerkenswert, wie gut das epitaktische Überwachsen auf den Facetten der geätzten Pyramidenstümpfe funktionierte.

Nicht zuletzt gilt es für die Pyramidenform hervorzuheben, dass eine Verbindung zwischen verschiedenen Pyramiden im gleichen Ätzverfahren möglich ist, sei es vertikal oder lateral. Die laterale Verbindung von Deckelpyramiden könnte überdies für eine elektrische Kontaktierung einer Pyramidendiode ihren Einsatz finden.

Bezüglich der Herstellungsmethode ist die nasschemisch geätzte Pyramide manch anderen Mikroresonatoren sogar überlegen. Denn im Vergleich zu Trockenätzverfahren mit Ionenbeschuss bilden sich bei der Herstellung im Ätzbad keine Oberflächenschichten mit defektreicher Kristallstruktur, welche sonst zusätzliche Absorption und damit optische Verluste bewirken.

#### Säulenförmige Mikroresonatoren

Die Braggresonatorsäulen wurden in dieser Arbeit mit der Methode des fokussierten Ionenstrahls aus planaren Schichtsystemen herausgeschnitten. Im Vergleich zu anderen Gruppen belegen die gemessenen Resonatormoden und deren Q-Faktoren von knapp 20.000, dass dieses Herstellungsverfahren dem sonst üblichen reaktiven Ionenätzen qualitativ nicht nachsteht.

Simulationen einzelner Resonatorsäulen mit finiten Elementen konnten die oberen Grenzen für die Resonatorgüte der Grundmode im GaAs/AlAs-Materialsystem in Abhängigkeit diverser geometrischer und materialspezifischer Parameter aufzeigen. Als ein kritischer Punkt offenbarte sich dabei die Absorption, welche im Experiment durch die Materialqualität, aber auch durch zusätzliche Zustände in den eingebauten Quantenpunktlagen und Defekten an der Oberfläche hervorgerufen wird. Unter Berücksichtigung einer realistischen Absorption im GaAs ist die Resonatorgüte einer idealen Säule auf 250.000 limitiert; für diesen Wert wären 40 DBR-Paare und ein Durchmesser von  $3\,\mu$ m notwendig. Mehr DBR-Paare oder eine dickere Säule können diese Grenze nicht erweitern. Mit diesen Berechnungen stehen erstmals realisitische Abschätzungen über das Optimierungspotenzial von Resonatorsäulen zur Verfügung.

Aus diesen numerischen Ergebnissen lassen sich unter anderem für die Säulenherstellung einige praktische Regeln ableiten: So sollten beim unteren Braggspiegel nicht mehr als zehn Paare ungeätzt stehen bleiben, und der maximale Lichteinschluss wird bei senkrechten Seitenwänden erzielt. Für Q-Faktoren jenseits 100.000 sollten mindestens 30 DBR-Paare verwendet werden, dagegen bewirken mehr als 40 keine weitere Verbesserung. Sehr schlanke Säulen (dünner als 1,5  $\mu$ m) oder Seitenwandverkippungen können hingegen verlustreiche Ankopplungen an Moden im Braggspiegel bewirken und so den Q-Faktor der (Grund-)Mode unvorhersehbar reduzieren.

Geleitet von der Idee, einzelne über das Lichtfeld gekoppelte Quantenpunkte später einmal auch getrennt voneinander bequem zu adressieren, waren auch gekoppelte Säulenresonatoren Gegenstand dieser Arbeit. Dabei konnten anhand einer auf Stufenindexfasern basierenden Simulation die Auswirkungen auf die Moden auf Grund einer Verbindung zwischen zwei gleich dicken Säulen in Abhängigkeit von der Kopplungssteglänge und -breite studiert werden. Überdies wurde die Aufspaltung der Moden auch experimentell in hervorragender Übereinstimmung mit diesem Modell gemessen.

Darüber hinaus wurden gekoppelte ungleiche Säulen genau so entworfen, dass die resultierende Mikrostruktur sowohl gleichmäßig delokalisierte als auch lokalisierte Moden beinhaltet. Mit der experimentellen Umsetzung konnte die Koexistenz der lokalisierten und delokalisierten Moden durch ortsaufgelöste Photolumineszenzmessungen bestätigt werden. Somit könnte (unter der Voraussetzung einer entsprechenden spektralen Verschiebungsmöglichkeit der Quantenpunktemission) beliebig zwischen einer Kopplung von zwei Quantenpunkten – jeder in einer Säule – über die delokalisierte Mode und beispielsweise einem separaten Auslesen über die lokalisierten Moden geschaltet werden. Dies wäre ein großer Meilenstein auf dem Weg zu einem Quantengatter, das auf räumlich getrennten Elektronenspins beruht.

Der letzte Teil der Arbeit beschäftigte sich mit der Beobachtung einzelner Quantenpunkte in den Säulenresonatoren. Hier konnte demonstriert werden, wie es mit Hilfe der Temperatur möglich ist, die Emission des Quantenpunktes spektral durch die Emission der Resonatormode zu verschieben. Dieser Möglichkeit liegt zu Grunde, dass die Quantenpunktemission von der effektiven Bandlücke und die Resonatormode nur vom Brechungsindex abhängt, die beiden Phänomene aber ein unterschiedliches Temperaturverhalten haben. Außerdem wurde diskutiert, wie durch eine elektrische Kontaktierung der Struktur der Stark-Effekt oder eine lokale Aufheizung zur Verschiebung der Quantenpunktemission beitragen können. Diese Optionen sind besonders für die spektrale Feinabstimmung sehr vielversprechend.

#### Ausblick

Zur Realisierung einer kohärenten Kopplung zwischen Qubits in Quantenpunkten ist eine starke Kopplung erforderlich. Der Nachweis einer starken Kopplung zwischen einer Resonatormode und einem einzelnen Quantenpunkt ist deshalb der nächste Schritt auf dem Weg zu einem Quantengatter. Nach Erfahrungen einer Gruppe, die dies bereits für Säulenresonatoren erreicht hat, wird die starke Kopplung durch die Verwendung länglicher Quantenpunkte mit größerer Oszillatorstärke begünstigt [30, 31]. Die längliche Form eines Quantenpunkts könnte bei entsprechender Ausrichtung im elektrischen Feld zudem den Stark-Effekt zur spektralen Abstimmung vergrößern.

Im Rahmen des CFN-Projekts A2 "Spinoptoelektronik" wird parallel auch das Wachstum von InAs-Quantenpunkten auf vorstrukturiertem GaAs untersucht (D. Schaadt). Mit diesem Verfahren könnten einerseits die längliche Form, andererseits aber auch die gezielte Positionierung der Quantenpunkte im Maximum einer Resonatormode umgesetzt werden.

Solange keine Aufspaltung durch starke Kopplung messbar ist, sollte der Purcell-Effekt bei spektraler Übereinstimmung von Quantenpunktemission und Resonatormode beobachtbar sein. Um ihn zu quantifizieren und so das Verhältnis von  $Q/V_{\text{Mode}}$ experimentell abzuschätzen, sind zeitaufgelöste Mikrophotolumineszenzmessungen zur Bestimmung der Lebensdauer erforderlich. Die Messwerte könnten anschließend mit theoretischen Berechungen verglichen werden, um so auf einem weiteren Weg die Qualität des pyramidalen oder säulenförmigen Mikroresonators zu überprüfen. Ein zeitaufgelöster Aufbau ist ohnehin erforderlich, wenn man das Potenzial der (freistehenden) Pyramide als Einzelphotonenquelle weiter verfolgen möchte.

Bezüglich dem Verhältnis von *Q*-Faktor zu Modenvolumen verspricht bei den Pyramiden momentan die freistehende Form (Deckelpyramide) die besten Aussichten. Eine oktagonale Grundfläche könnte hier weitere Verbesserungen mit sich bringen und eine Verkleinerung der Pyramiden könnte mehr Kontrolle über die Modenstruktur (spekrale Position der Moden) erlauben.

Zur Steigerung des *Q*-Faktors in Säulenresonatoren ist es empfehlenswert, künftig mehr als 30 DBR-Paare einzubauen. In Kombination mit den Quantenpunkten auf vorstrukturiertem GaAs und einer (selektiven, elektrischen) spektralen Abstimmungsmöglichkeit könnte so bereits das Ziel einer starken Kopplung zwischen zwei Quantenpunkten in den Säulen realisiert werden. Unter Verwendung von spinpolarisierten Elektronen, die Qubits definieren, sollte sich so ein Quantengatter konstruieren lassen. Letztendlich könnte dann auch überlegt werden, wie sich diese Mikroresonatorstruktur mit der Funktionalität der elektrischen Spininjektion kombinieren ließe.

## Publikationen

#### Reguläre Artikel

- Dependencies of Micropillar Cavity Quality Factors Calculated with Finite Element Methods <u>M. Karl</u>, B. Kettner, S. Burger, F. Schmidt, H. Kalt und M. Hetterich *Optics Express* 17, 1144 (2009).
- Q-factor and density of optical modes in pyramidal and cone-shaped GaAs microcavities
   <u>M. Karl</u>, T. Beck, S. Li, H. Kalt und M. Hetterich Appl. Phys. Lett. 92, 231105 (2008).

   Auserwählt für Virtual Journal of Nanoscale Science & Technology in der Ausgabe vom 23. Juni 2008.
- 3. Localized and delocalized modes in coupled optical micropillar cavities

<u>M. Karl</u>, S. Li, T. Passow, W. Löffler, H. Kalt und M. Hetterich *Optics Express* **15**, 8191 (2007).

4. Optical Modes in Pyramidal GaAs Microcavities

F.M. Weber, <u>M. Karl</u>, J. Lupaca-Schomber, W. Löffler, S. Li, T. Passow, J. Hawecker, D. Gerthsen, H. Kalt und M. Hetterich *Appl. Phys. Lett.* **90**, 161104 (2007).
Sonderartikel darüber in *Nature Photonics* **1**, 317 (2007), News & Views.
Auserwählt für *Virtual Journal of Nanoscale Science & Technology* in der Ausgabe vom 30. April 2007.

#### Beiträge zu internationalen Tagungen mit Konferenzband

#### 1. Optical Microcavities with Pyramidal Shape

D. Rülke, <u>M. Karl</u>, T. Beck, D.Z. Hu, D.M. Schaadt, H. Kalt und M. Hetterich angenommen zur Conference on Lasers and Electro-Optics – European Quantum Electronics Conference CLEO Europe – EQEC 2009, München (Deutschland) Juni 2009.

#### 2. Reversed Micro-Pyramids as Novel Optical Cavities

<u>M. Karl</u>, D. Rülke, T. Beck, D. Hu, D. M. Schaadt, H. Kalt und M. Hetterich 9th International Conference on Physics of Light-Matter Coupling in Nanostructures - PLMCN9, Lecce (Italien) April 2009 eingereicht für Superlattices and Microstructures.

#### 3. GaAs micro-pyramids serving as optical micro-cavities

<u>M. Karl</u>, T. Beck, S. Li, D.Z. Hu, D.M. Schaadt, H. Kalt und M. Hetterich International Conference on Semiconductor Physics - ICPS, Rio de Janeiro (Brasilien), Juli 2008 angenommen bei AIP Conf. Proc.

#### 4. Optical Cavity Modes in Micro-Pyramids

<u>M. Karl</u>, T. Beck, F.M. Weber, J. Lupaca-Schomber, S. Li, D. Hu, D.M. Schaadt, H. Kalt und M. Hetterich Conference on Lasers and Electro-Optics/ Quantum Electronics and Laser Science Conference CLEO-QELS 2008, San Jose (USA), Mai 2008 Technical Digest (Optical Society of America, Washington, DC, 2008), QFO6.

#### 5. Optical modes in coupled pillar microcavities

<u>M. Karl</u>, S. Li, T. Passow, W. Löffler, E. Müller, D. Gerthsen, H. Kalt und M. Hetterich

Conference on Lasers and Electro-Optics and the International Quantum Electronics Conference CLEOE-IQEC 2007, München (Deutschland), Juni 2007 Conference Proceedings CLEOE-IQEC.2007.4386598.

#### 6. GaAs Pyramids on GaAs/AlAs Bragg Mirrors as Alternative Microcavities

<u>M. Karl</u>, F. M. Weber, J. Lupaca-Schomber, S. Li, T. Passow, W. Löffler, H. Kalt und M. Hetterich

7th International Conference on Physics of Light-Matter Coupling in Nanostructures - PLMCN7, Havanna (Kuba), April 2007 Superlattices and Microstructures 43, 635 (2008). 7. Single and coupled photonic cavities - AlAs/GaAs DBR pillars and GaAs pyramids

<u>M. Karl</u>, W. Löffler, J. Lupaca-Schomber, T. Passow, S. Li, J. Hawecker, F. Pérez-Willard, D. Gerthsen, H. Kalt, C. Klingshirn und M. Hetterich International Conference on Semiconductor Physics - ICPS, Wien (Österreich), Juli 2006

AIP Conf. Proc. 893, 1133 (2007).

## Beiträge zu Frühjahrstagungen der DPG, Seminaren und Kolloquien

1. Influence of (Geometrical) Micropillar Properties on the Cavity Quality Factor

<u>M. Karl</u>, B. Kettner, S. Burger, F. Schmidt, H. Kalt und M. Hetterich *Dresden (Deutschland)*, März 2009, *Verhandlungen der DPG* HL **43.7**.

2. Reversed GaAs pyramids as new optical micro-cavities based on total internal reflection

D. Rülke, <u>M. Karl</u>, D. Hu, D.M. Schaadt, B. Kettner, S. Burger, F. Schmidt,
H. Kalt und M. Hetterich
Dresden (Deutschland), März 2009, Verhandlungen der DPG HL 51.7.

3. Observation of single quantum dots in GaAs/AlAs micropillar cavities

P. Burger, <u>M. Karl</u>, D. Hu, D.M. Schaadt, H. Kalt und M. Hetterich Dresden (Deutschland), März 2009, Verhandlungen der DPG HL **9.96**.

- Pyramidal and pillar-like micro-cavities
   <u>M. Karl</u>, D. Rülke, P. Burger, T. Beck, F.M. Weber, J. Lupaca-Schomber, S.
   Li, D.Z. Hu, D.M. Schaadt, H. Kalt und M. Hetterich
   *CFN PhD Seminar, Karlsruhe*, Januar 2009.
- Säulenförmige und pyramidale Mikroresonatoren
   <u>M. Karl</u>, D. Rülke, P. Burger, T. Beck, F.M. Weber, J. Lupaca-Schomber, S.
   Li, D.Z. Hu, D.M. Schaadt, H. Kalt und M. Hetterich
   *Institutsseminar Institut für Angewandte Physik, Karlsruhe*, Dezember 2008.
- Micro-pillars as Optical Cavities <u>M. Karl</u>, KSOP Autumn Colloquium, Feuerbach (Deutschland), November 2008.
- 7. Coupled Bragg Pillar Cavities with Localized and Delocalized Mode Structure

<u>M. Karl</u>, S. Li, E. Müller, D. Gerthsen, H. Kalt und M. Hetterich Berlin (Deutschland), Februar 2008, Verhandlungen der DPG HL **24.02**.

# GaAs Micropyramids as Optical Resonators Beck, <u>M. Karl</u>, F.M. Weber, J. Lupaca-Schomber, S. Li, D. Hu, D.M. Schaadt, H. Kalt und M. Hetterich *Berlin (Deutschland)*, Februar 2008, Verhandlungen der DPG HL 24.10.

# GaAs Pyramids as Alternative Microcavities <u>M. Karl</u>, KSOP Autumn Colloquium, Oberkochen (Deutschland), September 2007.

#### 10. GaAs Microcavities based on GaAs/AlAs Bragg Reflectors <u>M. Karl</u>, F.M. Weber, J. Lupaca-Schomber, S. Li, D.Z. Hu, D.M. Schaadt, H.

Kalt und M. Hetterich Institutsworkshop – Institut für Angewandte Physik der Universität Karlsruhe, Freudenstadt (Deutschland), Juli 2007.

#### 11. Coupled micro-cavities based on GaAs pillars

<u>M. Karl</u>, W. Löffler, S. Li, T. Passow, E. Müller, F. Pérez-Willard, D. Gerthsen, H. Kalt und M. Hetterich *Regensburg (Deutschland)*, März 2007, *Verhandlungen der DPG* HL **46.71**.

# GaAs pyramids as alternative micro-cavities <u>M. Karl</u>, F.M. Weber, J. Lupaca-Schomber, W. Löffler, S. Li, T. Passow, J. Hawecker, D. Gerthsen, H. Kalt und M. Hetterich *Regensburg (Deutschland)*, März 2007, Verhandlungen der DPG HL 18.8.

#### 13. Optical Modes in Pyramidal Microcavities

F.M. Weber, <u>M. Karl</u>, J. Lupaca-Schomber, W. Löffler, S. Li, T. Passow, J. Hawecker, D. Gerthsen, H. Kalt und M. Hetterich *Regensburg (Deutschland)*, März 2007, *Verhandlungen der DPG* HL **46.70**.

14. Conventional pillar-type and novel pyramidal III-V microcavities: Fabrication and characterization <u>M. Karl</u>, J. Lupaca-Schomber, W. Löffler, T. Passow, S. Li, F. Pérez-Willard, <u>I. H. D. C. the M. Karl</u>, J. Lupaca-Schomber, W. Löffler, T. Passow, S. Li, F. Pérez-Willard,

J. Hawecker, D. Gerthsen, H. Kalt, C. Klingshirn und M. Hetterich Dresden (Deutschland), März 2006, Verhandlungen der DPG HL 50.55.

### Literaturverzeichnis

- P. A. Hiskett, D. Rosenberg, C. G. Peterson, R. J. Hughes, S. Nam, A. E. Lita, A. J. Miller, and J. E. Nordholt, "Long-distance quantum key distribution in optical fibre," *New Journal of Physics* 8, 193 (2006).
- [2] G. Blatter, "The qubit duet," *Nature* **421**, 796 (2003).
- [3] R. P. Feynman, "Simulating physics with computers," Int. Journal of Theoretical Physics 21, 467 (1982).
- [4] L. M. K. Vandersypen, M. Steffen, G. Breyta, C. S. Yannoni, M. H. Sherwood, and I. L. Chuang, "Experimental realization of Shor's quantum factoring algorithm using nuclear magnetic resonance," *Nature* **414**, 883 (2001).
- [5] A. Steane, C. F. Roos, D. Stevens, A. Mundt, D. Leibfried, F. Schmidt-Kaler, and R. Blatt, "Speed of ion-trap quantum-information processors," *Phys. Rev.* A 62, 042305 (2000).
- [6] J. Clarke and F. K. Wilhelm, "Superconducting quantum bits," Nature 453, 1031 (2008).
- [7] D. Vion, A. Aassime, A. Cottet, P. Joyez, H. Pothier, C. Urbina, D. Esteve, and M. H. Devoret, "Manipulating the Quantum State of an Electrical Circuit," *Science* 296(5569), 886 (2002).
- [8] D. Loss and D. P. DiVincenzo, "Quantum computation with quantum dots," *Phys. Rev. A* 57, 120 (1998).
- [9] A. Greilich, D. R. Yakovlev, A. Shabaev, A. L. Efros, I. A. Yugova, R. Oulton, V. Stavarache, D. Reuter, A. Wieck, and M. Bayer, "Mode Locking of Electron Spin Coherences in Singly Charged Quantum Dots," *Science* **313**, 341 (2006).
- [10] J. Seufert, G. Bacher, H. Schömig, A. Forchel, L. Hansen, G. Schmidt, and L. W. Molenkamp, "Spin injection into a single self-assembled quantum dot," *Phys. Rev. B* 69, 035,311 (2004).

- [11] W. Löffler, M. Hetterich, C. Mauser, S. Li, T. Passow, and H. Kalt, "Parallel preparation of highly spin-polarized electrons in single InAs/GaAs quantum dots," *Appl. Phys. Lett.* **90**, 232105 (2007).
- [12] M. Bayer, P. Hawrylak, K. Hinzer, S. Fafard, M. Korkusinski, Z. R. Wasilewski, O. Stern, and A. Forchel, "Coupling and Entangling of Quantum States in Quantum Dot Molecules," *Science* **291**, 451 (2001).
- [13] H. J. Krenner, M. Sabathil, E. C. Clark, A. Kress, D. Schuh, M. Bichler, G. Abstreiter, and J. J. Finley, "Direct Observation of Controlled Coupling in an Individual Quantum Dot Molecule," *Phys. Rev. Lett.* **94**, 057,402 (2005).
- [14] A. Grodecka, P. Machnikowski, and J. Förstner, "Phonon-assisted tunneling between singlet states in two-electron quantum dot molecules," *Phys. Rev. B* 78, 085302 (2008).
- [15] G. Ortner, M. Bayer, Y. Lyanda-Geller, T. L. Reinecke, A. Kress, J. P. Reithmaier, and A. Forchel, "Control of Vertically Coupled InGaAs/GaAs Quantum Dots with Electric Fields," *Phys. Rev. Lett.* 94, 157,401 (2005).
- [16] A. Imamoğlu, D. D. Awschalom, G. Burkard, D. P. DiVincenzo, D. Loss, M. Sherwin, and A. Small, "Quantum Information Processing Using Quantum Dot Spins and Cavity QED," *Phys. Rev. Lett.* 83, 4204 (1999).
- [17] G. F. Quinteiro, J. Fernández-Rossier, and C. Piermarocchi, "Long-Range Spin-Qubit Interaction Mediated by Microcavity Polaritons," *Phys. Rev. Lett.* 97(9), 097401 (2006).
- [18] D. Press, T. D. Ladd, B. Zhang, and Y. Yamamoto, "Complete quantum control of a single quantum dot spin using ultrafast optical pulses," *Nature* 456, 218 (2008).
- [19] H. Stolz, M. Kira, and S. W. Koch, "Quantenoptik in Halbleitern," *Physik Journal* 7(6), 37 (2008).
- [20] E. M. Purcell, "Resonance Absorption by Nuclear Magnetic Moments in a Solid," Phys. Rev. 69, 681 (1946).
- [21] D. Englund, D. Fattal, E. Waks, G. Solomon, B. Zhang, T. Nakaoka, Y. Arakawa, Y. Yamamoto, and J. Vučković, "Controlling the Spontaneous Emission Rate of Single Quantum Dots in a Two-Dimensional Photonic Crystal," *Phy*sical Review Letters **95**, 013904 (2005).
- [22] S. Noda, "Seeking the Ultimate Nanolaser," Science **314**, 260 (2006).

- [23] W. Löffler, Electrical preparation of spin-polarized electrons in semiconductor quantum dots (Dissertation Universität Karlsruhe (TH), Institut für Angewandte Physik, 2008).
- [24] I. Suemune, A. Ueta, A. Avramescu, S. Tanaka, H. Kumano, and K. Uesugi, "Semiconductor photonic dots: Visible wavelength-sized optical resonators," *Appl. Phys. Lett.* **74**, 1963 (1999).
- [25] A. Ueta, H. Kumano, T. Shimozawa, and I. Suemune, "Study of resonance wavelengths in II–VI semiconductor photonic dots: pyramidal size dependences and luminescence properties," *phys. stat. sol.* (b) **229**, 971–976 (2002).
- [26] H. X. Jiang, J. Y. Lin, K. C. Zeng, and W. Yang, "Optical resonance modes in GaN pyramid microcavities," *Appl. Phys. Lett.* **75**, 763 (1999).
- [27] R. E. Pritchard, R. F. Oulton, P. N. Stavrinou, G. Parry, R. S. Williams, M. J. Ashwin, J. H. Neave, and T. S. Jones, "Optical characterization of GaAs pyramid microstructures formed by molecular beam epitaxial regrowth on pre-patterned substrates," J. Appl. Phys. 90, 475–480 (2001).
- [28] V. Cambel, D. Gregušová, and R. Kúdela, "Formation of GaAs threedimensional objects using AlAs "facet–forming" sacrifical layer and H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>, H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>O based solution," J. Appl. Phys. 94, 4643 (2003).
- [29] S. Reitzenstein, C. Hofmann, A. Gorbunov, M. Strauß, S. H. Kwon, C. Schneider, A. Löffler, S. Höfling, M. Kamp, and A. Forchel, "AlAs/GaAs micropillar cavities with quality factors exceeding 150.000," *Appl. Phys. Lett.* **90**, 251109 (2007).
- [30] J. P. Reithmaier, G. Sek, A. Löffler, C. Hofmann, S. Kuhn, S. Reitzenstein, L. V. Keldysh, V. D. Kulakovskii, T. L. Reinecke, and A. Forchel, "Strong coupling in a single quantum dot-semiconductor microcavity system," *Nature* 432, 197–200 (2004).
- [31] C. Kistner, T. Heindel, C. Schneider, A. Rahimi-Iman, S. Reitzenstein, S. Höfling, and A. Forchel, "Demonstration of strong coupling viaelectrooptical tuning in high-qualityQD-micropillar systems," *Opt. Express* 16, 15,006 (2008).
- [32] G. Tarel, G. Parascandolo, and V. Savona, "Ultralong-range radiative excitation transfer between quantum dots in a planar microcavity," *Phys. Stat. Sol.* b 245, 1085 (2008).

- [33] M. Bayer, T. Gutbrod, J. P. Reithmaier, A. Forchel, T. L. Reinecke, P. A. Knipp, A. A. Dremin, and V. D. Kulakovskii, "Optical Modes in Photonic Molecules," *Phys. Rev. Lett.* 81, 2582 (1998).
- [34] M. Benyoucef, S. Kiravittaya, Y. F. Mei, A. Rastelli, and O. G. Schmidt, "Strongly coupled semiconductor microcavities: A route to couple artificial atoms over micrometric distances," *Phys. Rev. B* 77, 035108 (2008).
- [35] H. Li and K. Iga, Vertical-Cavity Surface-Emitting Laser Devices (Springer, 2002).
- [36] B. Gayral and J. M. Gérard, "Photoluminescence experiment on quantum dots embedded in a large Purcell-factor microcavity," *Phys. Rev. B* 78, 235306 (2008).
- [37] J. M. Gérard, B. Sermage, B. Gayral, B. Legrand, E. Costard, and V. Thierry-Mieg, "Enhanced Spontaneous Emission by Quantum Boxes in a Monolithic Optical Microcavity," *Phys. Rev. Lett.* 81, 1110–1113 (1998).
- [38] J. D. Jackson, *Classical electrodynamics* (Wiley, 1999).
- [39] P. Meystre and M. Sargent, *Elements of Quantum Optics* (Springer, 2007).
- [40] J.-M. Gérard, "Solid-State Cavity-Quantum Electrodynamics," in Single Quantum Dots, P. Michler, ed., pp. 269–314 (Springer, 2003).
- [41] E. Yablonovitch, "Inhibited spontaneous emission in solid-state physics and electronics." *Phys. Rev. Lett.* 58, 2059–2062 (1987).
- [42] C. Klingshirn, *Semiconductor Optics*, 2nd ed. (Springer, 2004).
- [43] J. M. Fink, M. Göppl, M. Baur, R. Bianchetti, P. J. Leek, A. Blais, and A. Wallraff, "Climbing the Jaynes-Cummings ladder and observing its nonlinearity in a cavity QED system," *Nature* 454, 315–318 (2008).
- [44] L. Schneebeli, M. Kira, and S. W. Koch, "Characterization of Strong Light-Matter Coupling in Semiconductor Quantum-Dot Microcavities via Photon-Statistics Spectroscopy," *Phys. Rev. Lett.* **101**, 097401 (2008).
- [45] L. C. Andreani, G. Panzarini, and J.-M. Gérard, "Strong-coupling regime for quantum boxes in pillar microcavities: Theory," *Phys. Rev. B* 60, 13276 (1999).
- [46] C. Weisbuch, M. Nishioka, A. Ishikawa, and Y. Arakawa, "Observation of the coupled exciton-photon mode splitting in a semiconductor quantum microcavity," *Phys. Rev. Lett.* **69**, 3314 (1992).

- [47] T. Yoshie, A. Scherer, J. Hendrickson, G. Khitrova, H. M. Gibbs, G. Rupper, C. Ell, O. B. Shchekin, and D. G. Deppe, "Vacuum Rabi splitting with a single quantum dot in a photonic crystal nanocavity," *Nature* 432, 200–203 (2004).
- [48] K. J. Vahala, "Optical microcavities," Nature 424, 839–846 (2003).
- [49] S. M. Spillane, T. J. Kippenberg, K. J. Vahala, K. W. Goh, E. Wilcut, and H. J. Kimble, "Ultrahigh-Q toroidal microresonators for cavity quantum electrodynamics," *Phys. Rev. A* 71, 013817 (2005).
- [50] A. Rakic and M. Majewski, "Cavity and Mirror Design for Vertical-Cavity Surface-Emitting Lasers," in *Vertical-Cavity Surface-Emitting Laser Devices*, H. Li and K. Iga, eds., pp. 259–301 (Springer, 2003).
- [51] K. Iga, F. Koyama, and S. Kinoshita, "Surface emitting semiconductor lasers," *IEEE J. Quant. Electron.* 24, 1845–1855 (1988).
- [52] Y. Yamamoto, S. Machida, and G. Björk, "Microcavity semiconductor laser with enhanced spontaneous emission," *Phys. Rev. A* 44, 657–668 (1991).
- [53] D. C. Unitt, A. J. Bennett, P. Atkinson, D. A. Ritchie, and A. J. Shields, "Polarization control of quantum dot single-photon sources via a dipole-dependent Purcell effect," *Phys. Rev. B* 72, 033318 (2005).
- [54] H. Lohmeyer, K. Sebald, C. Kruse, R. Kröger, J. Gutowski, D. Hommel, J. Wiersig, N. Baer, and F. Jahnke, "Confined optical modes in monolithic II-VI pillar microcavities," *Appl. Phys. Lett.* 88, 051101 (2006).
- [55] C. Kruse, S. M. Ulrich, G. Alexe, E. Roventa, R. Kröger, B. Brendemühl, P. Michler, J. Gutowski, and D. Hommel, "Green monolithic II-VI verticalcavity surface-emitting laser operating at room temperature," *phys. stat. sol.* (b) 241, 731–738 (2004).
- [56] M. Krieger, H. Sigg, N. Herres, K. Bachem, and K. Köhler, "Elastic constants and Poisson ratio in the system AlAs–GaAs," *Appl. Phys. Lett.* 66, 682–684 (1995).
- [57] S. Varoutsis, S. Laurent, I. Sagnes, A. Lemaître, L. Ferlazzo, C. Mériadec, G. Patriarche, I. Robert-Philip, and I. Abram, "Reactive-ion etching of high-Q and submicron-diameter GaAs/AlAs micropillar cavities," *Journal of Vacuum Science & Technology B* 23, 2499–2503 (2005).
- [58] L. A. Giannuzzi and F. A. Stevie, Introduction to Focused Ion Beams (Springer, 2005).

- [59] R. Menzel, T. Bachmann, and W. Wesch, "Physical Sputtering of III-V-Semiconductors with a focused Ga<sup>+</sup>-beam," Nucl. Instrum. Methods B148(450) (1999).
- [60] H. Lohmeyer, J. Kalden, K. Sebald, C. Kruse, D. Hommel, and J. Gutowski, "Fine tuning of quantum-dot pillar microcavities by focused ion beam milling," *Appl. Phys. Lett.* **92**, 011116 (2008).
- [61] Y.-L. D. Ho, R. Gibson, C. Y. Hu, M. J. Cryan, J. G. Rarity, P. J. Heard, J. A. Timpson, A. M. Fox, M. S. Skolnick, M. Hopkinson, and A. Tahraoui, "Focused ion beam etching for the fabrication of micropillar microcavities made of III-V semiconductor materials," *Journal of Vacuum Science & Technology B* 25(4), 1197–1202 (2007).
- [62] M. Karl (Diplomarbeit Universität Karlsruhe (TH), Institut für Angewandte Physik, 2006).
- [63] A. J. Bennett, D. J. P. Ellis, A. J. Shields, P. Atkinson, I. Farrer, and D. A. Ritchie, "Observation of the Purcell effect in high-index-contrast micropillars," *Appl. Phys. Lett.* **90**, 191911 (2007).
- [64] V. N. Astratov, S. Yang, S. Lam, B. D. Jones, D. Sanvitto, D. M. Whittaker, A. M. Fox, M. S. Skolnick, A. Tahraoui, P. W. Fry, and M. Hopkinson, "Whispering gallery resonances in semiconductor micropillars," *Appl. Phys. Lett.* **91**, 071115 (2007).
- [65] T. J. Kippenberg, S. M. Spillane, and K. J. Vahala, "Demonstration of ultrahigh-Q small mode volume toroid microcavities on a chip," *Appl. Phys. Lett.* 85, 6113–6115 (2004).
- [66] O. Painter, R. K. Lee, A. Scherer, A. Yariv, J. D. O'Brien, P. D. Dapkus, and I. Kim, "Two-Dimensional Photonic Band-Gap Defect Mode Laser," *Science* 284, 1819–1821 (1999).
- [67] A. M. Armani, R. P. Kulkarni, S. E. Fraser, R. C. Flagan, and K. J. Vahala, "Label-Free, Single-Molecule Detection with Optical Microcavities," *Science* **317**(5839), 783–787 (2007).
- [68] S. Arnold, M. Khoshsima, I. Teraoka, S. Holler, and F. Vollmer, "Shift of whispering-gallery modes in microspheres by protein adsorption," *Opt. Lett.* 28, 272–274 (2003).
- [69] E. Peter, P. Senellart, D. Martrou, A. Lemaître, J. Hours, J. M. Gérard, and J. Bloch, "Exciton-Photon Strong-Coupling Regime for a Single Quantum Dot Embedded in a Microcavity," *Phys. Rev. Lett.* **95**, 067401 (2005).

- [70] T. Yoshie, J. Vučković, A. Scherer, H. Chen, and D. Deppe, "High quality twodimensional photonic crystal slab cavities," *Appl. Phys. Lett.* **79**, 4289–4291 (2001).
- [71] J. Vučković, M. Lončar, H. Mabuchi, and A. Scherer, "Design of photonic crystal microcavities for cavity QED," *Phys. Rev. E* 65, 016608 (2001).
- [72] L. Sanchis, M. J. Cryan, J. Pozo, I. J. Craddock, and J. G. Rarity, "Ultrahigh Purcell factor in photonic crystal slab microcavities," *Phys. Rev. B* 76, 045118 (2007).
- [73] T. Sünner, T. Stichel, S.-H. Kwon, T. W. Schlereth, S. Höfling, M. Kamp, and A. Forchel, "Photonic crystal cavity based gas sensor," *Appl. Phys. Lett.* 92, 261112 (2008).
- [74] R. Braive, A. Beveratos, I. Sagnes, G. Lecamp, S. Guilet, L. L. Gratiet, A. Lemaître, A. Miard, G. Patriarche, C. Sauvan, P. Lalanne, and I. Robert-Philip, "Photonic crystal nanolasers with controlled spontaneous emission," vol. 6988, p. 698813 (SPIE, 2008).
- [75] I. N. Stranski and L. Krastanow, "Zur Theorie der orientierten Ausscheidung von lonenkristallen aufeinander," Sitzungsberichte d. Akad. d. Wissenschaften in Wien. Abt. IIb 146, 797 (1937).
- [76] T. Sünner, C. Schneider, M. Strauß, A. Huggenberger, D. Wiener, S. Höfling, M. Kamp, and A. Forchel, "Scalable fabrication of optical resonators with embedded site-controlled quantum dots," *Opt. Lett.* **33**, 1759–1761 (2008).
- [77] P. Gallo, M. Felici, B. Dwir, K. A. Atlasov, K. F. Karlsson, A. Rudra, A. Mohan, G. Biasiol, L. Sorba, and E. Kapon, "Integration of site-controlled pyramidal quantum dots and photonic crystal membrane cavities," *Appl. Phys. Lett.* **92**, 263101 (2008).
- [78] K. Hennessy, A. Badolato, M. Winger, D. Gerace, M. Atatüre, S. Gulde, S. Fält, E. L. Hu, and A. Imamoğlu, "Quantum nature of a strongly coupled single quantum dot-cavity system," *Nature* 445, 896–899 (2007).
- [79] A. Dousse, L. Lanco, J. Suffczyński, E. Semenova, A. Miard, A. Lemaître, I. Sagnes, C. Roblin, J. Bloch, and P. Senellart, "Controlled Light-Matter Coupling for a Single Quantum Dot Embedded in a Pillar Microcavity Using Far-Field Optical Lithography," *Phys. Rev. Lett.* **101**, 267404 (2008).
- [80] V. B. Verma and J. J. Coleman, "High density patterned quantum dot arrays fabricated by electron beam lithography and wet chemical etching," *Appl. Phys. Lett.* **93**(11), 111117 (2008).

- [81] S. R. Kisting, P. W. Bohn, E. Andideh, I. Adesida, B. T. Cunningham, G. E. Stillman, and T. D. Harris, "High precision temperature- and energydependent refractive index of GaAs determined from excitation of optical waveguide eigenmodes," *Appl. Phys. Lett.* 57, 1328 (1990).
- [82] A. Rastelli, A. Ulhaq, S. Kiravittaya, L. Wang, A. Zrenner, and O. G. Schmidt, "In situ laser microprocessing of single self-assembled quantum dots and optical microcavities," *Appl. Phys. Lett.* **90**, 073120 (2007).
- [83] S. Mosor, J. Hendrickson, B. C. Richards, J. Sweet, G. Khitrova, H. M. Gibbs, T. Yoshie, A. Scherer, O. B. Shchekin, and D. G. Deppe, "Scanning a photonic crystal slab nanocavity by condensation of xenon," *Appl. Phys. Lett.* 87, 141105 (2005).
- [84] X. Yang, C. J. Chen, C. A. Husko, and C. W. Wong, "Digital resonance tuning of high-Q/V<sub>m</sub> silicon photonic crystal nanocavities by atomic layer deposition," *Appl. Phys. Lett.* **91**, 161114 (2007).
- [85] G. C. DeSalvo, C. A. Bozada, J. L. Ebel, D. C. Look, J. P. Barrette, C. L. A. Cerny, R. W. Dettmer, J. K. Gillespie, C. K. Havasy, T. J. Jenkins, K. Nakano, C. I. Pettiford, T. K. Quach, J. S. Sewell, and G. D. Via, "Wet Chemical Digital Etching of GaAs at Room Temperature," *J. Electrochem. Soc.* 143, 3652 (1996).
- [86] K. Hennessy, A. Badolato, A. Tamboli, P. M. Petroff, E. Hu, M. Atatüre, J. Dreiser, and A. Imamoğlu, "Tuning photonic crystal nanocavity modes by wet chemical digital etching," *Appl. Phys. Lett.* 87, 021108 (2005).
- [87] K. Hennessy, C. Högerle, E. Hu, A. Badolato, and A. Imamoğlu, "Tuning photonic nanocavities by atomic force microscope nano-oxidation," *Appl. Phys. Lett.* 89, 041118 (2006).
- [88] G. Ortner, M. Schwab, M. Bayer, R. Pässler, S. Fafard, Z. Wasilewski, P. Hawrylak, and A. Forchel, "Temperature dependence of the excitonic band gap in In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As/GaAs self-assembled quantum dots," *Phys. Rev. B* 72, 085328 (2005).
- [89] P. W. Fry, I. E. Itskevich, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, J. J. Finley, J. A. Barker, E. P. O'Reilly, L. R. Wilson, I. A. Larkin, P. A. Maksym, M. Hop-kinson, M. Al-Khafaji, J. P. R. David, A. G. Cullis, G. Hill, and J. C. Clark, "Inverted Electron-Hole Alignment in InAs-GaAs Self-Assembled Quantum Dots," *Phys. Rev. Lett.* 84, 733–736 (2000).

- [90] J. J. Finley, M. Sabathil, P. Vogl, G. Abstreiter, R. Oulton, A. I. Tartakovskii, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, S. L. Liew, A. G. Cullis, and M. Hopkinson, "Quantum-confined Stark shifts of charged exciton complexes in quantum dots," *Phys. Rev. B* **70**, 201308 (2004).
- [91] M. M. Vogel, S. M. Ulrich, R. Hafenbrak, P. Michler, L. Wang, A. Rastelli, and O. G. Schmidt, "Influence of lateral electric fields on multiexcitonic transitions and fine structure of single quantum dots," *Appl. Phys. Lett.* **91**, 051904 (2007).
- [92] R. Oulton, J. J. Finley, A. D. Ashmore, I. S. Gregory, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, M. J. Steer, S.-L. Liew, M. A. Migliorato, and A. J. Cullis, "Manipulation of the homogeneous linewidth of an individual In(Ga)As quantum dot," *Phys. Rev. B* 66, 045313 (2002).
- [93] M. E. Reimer, M. Korkusiński, D. Dalacu, J. Lefebvre, J. Lapointe, P. J. Poole, G. C. Aers, W. R. McKinnon, P. Hawrylak, and R. L. Williams, "Prepositioned single quantum dot in a lateral electric field," *Phys. Rev. B* 78, 195301 (2008).
- [94] M. T. Rakher, N. G. Stoltz, L. A. Coldren, P. M. Petroff, and D. Bouwmeester, "Polarization-switchable single photon source using the Stark effect," *Appl. Phys. Lett.* **93**, 091118 (2008).
- [95] X. Xu, A. Andreev, and D. A. Williams, "Manipulating quantum-confined Stark shift in electroluminescence from quantum dots with side gates," *New Journal of Physics* 10, 053036 (2008).
- [96] D. Nakayaa, Y. Hitaka, S. Kimura, H. Kumano, and I. Suemune, "Study of optimal coupling of ZnS pyramidal microcavities with distributed Bragg reflectors," *phys. stat. sol* (c) 1, 1034 (2004).
- [97] J. Lupaca-Schomber, Anwendung und Optimierung verschiedener Verfahren zur Herstellung von 3D-Resonatoren aus III-V- und II-VI-Halbleitern (Dissertation Universität Karlsruhe (TH), Institut für Angewandte Physik, 2007).
- [98] T. Beck, Herstellung und Charakterisierung optischer Galliumarsenid-Mikroresonatoren mit pyramidalen Geometrien (Diplomarbeit Universität Karlsruhe (TH), Institut für Angewandte Physik, 2008).
- [99] Y. Mori and N. Watanabe, "A New Etching Solution System, H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>-H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O, for GaAs and Its Kinetics," J. Electrochem. Soc. **125**, 1510–1514 (1978).
- [100] G. Franz, C. Hoyler, and D. Sacher, "Wet Chemical Etching Behavior of Ga(Al)As and In(Ga)P(As) Layers," Japanese Journal of Applied Physics 30, 2693–2699 (1991).

- [101] D. Rülke, Methoden zur Verbesserung des Lichteinschlusses in pyramidalen optischen Mikroresonatoren aus GaAs (Diplomarbeit Universität Karlsruhe (TH), Institut für Angewandte Physik, 2009).
- [102] E. D. Palik, Handbook of Optical Constants of Solids (Academic Press, 1985).
- [103] T. Passow, S. Li, D. Litvinov, W. Löffler, J. Fallert, B. Daniel, J. Lupaca-Schomber, J. Kvietková, D. Gerthsen, H. Kalt, and M. Hetterich, "Investigation of InAs quantum dot growth for electrical spin injection devices," *phys. stat. sol* (c) **3**, 3943 (2006).
- [104] F. M. Weber, M. Karl, J. Lupaca-Schomber, W. Löffler, S. Li, T. Passow, J. Hawecker, D. Gerthsen, H. Kalt, and M. Hetterich, "Optical modes in pyramidal GaAs microcavities," *Appl. Phys. Lett.* **90**, 161104 (2007).
- [105] F. M. Weber, *Optische Resonatormoden in GaAs-Mikropyramiden* (Diplomarbeit Universität Karlsruhe (TH), Institut für Angewandte Physik, 2007).
- [106] Y. P. Varshni, "Temperature dependence of the energy gap in semiconductors," *Physica* 34, 149 (1967).
- [107] C. Mauser, Einzelquantenpunktspektroskopie an Spininjektions-Leuchtdioden mittels Metall-Halbleiter-Nanostrukturen (Diplomarbeit Universität Karlsruhe (TH), Institut für Angewandte Physik, 2006).
- [108] J. P. V. Hof and D. D. Stancil, "Eigenfrequencies of a Truncated Conical Resonator via the Classical and Wentzel-Kramers-Brillouin Methods," *IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques* 56, 1909 (2008).
- [109] M. Karl, F. M. Weber, J. Lupaca-Schomber, S. Li, T. Passow, W. Löffler, H. Kalt, and M. Hetterich, "GaAs Pyramids on GaAs/AlAs Bragg Mirrors as Alternative Microcavities," *Superlattices and Microstructures* 43, 635 (2008).
- [110] K. Yee, "Numerical solution of initial boundary value problems involving maxwell's equations in isotropic media," *IEEE Transactions on Antennas and Propagation* 14, 302 (1966).
- [111] A. Farjadpour, D. Roundy, A. Rodriguez, M. Ibanescu, P. Bermel, J. D. Joannopoulos, S. G. Johnson, and G. Burr, "Improving accuracy by subpixel smoothing in FDTD," *Optics Letters* **31**, 2972 (2006).
- [112] V. A. Mandelshtam and H. S. Taylor, "Harmonic inversion of time signals," J. Chem. Phys. 107, 6756 (1997).

- [113] J. Pomplun, S. Burger, L. Zschiedrich, and F. Schmidt, "Adaptive finite element method for simulation of optical nano structures," *phys. stat. sol.* (b) 244, 3419 (2007).
- [114] M. Karl, B. Kettner, S. Burger, F. Schmidt, H. Kalt, and M. Hetterich, "Dependencies of micro-pillar cavity quality factors calculated with finite element methods," *Opt. Express* 17, 1144 (2009).
- [115] L. Zschiedrich, R. Klose, A. Schädle, and F. Schmidt, "A new finite element realization of the Perfectly Matched Layer Method for Helmholtz scattering problems on polygonal domains in 2D," J. Comput. Appl. Math. 188, 12 (2006).
- [116] L. Zschiedrich, S. Burger, B. Kettner, and F. Schmidt, "Advanced Finite Element Method for Nano Resonators," vol. 6115, p. 164 (SPIE, 2006).
- [117] S. Burger, R. Köhle, L. Zschiedrich, W. Gao, F. Schmidt, R. März, and C. Nölscher, "Benchmark of FEM, waveguide and FDTD algorithms for rigorous mask simulation," vol. 5992, p. 599216 (SPIE, 2005).
- [118] C. Gohn-Kreuz, Numerische Analyse der optischen Eigenschaften von Mikroresonatoren und experimenteller Aufbau zur Anregung von Resonanzmoden (Diplomarbeit Universität Karlsruhe (TH), Institut für Angewandte Physik, 2008).
- [119] J. M. Gérard, D. Barrier, J. Y. Marzin, R. Kuszelewicz, L. Manin, E. Costard, V. Thierry-Mieg, and T. Rivera, "Quantum boxes as active probes for photonic microstructures: The pillar microcavity case," *Appl. Phys. Lett.* 69, 449 (1996).
- [120] A. Löffler, J. P. Reithmaier, G. Sek, C. Hofmann, S. Reitzenstein, M. Kamp, and A. Forchel, "Semiconductor quantum dot microcavity pillars with highquality factors and enlarged dot dimensions," *Appl. Phys. Lett.* 86(11), 111105 (2005).
- [121] D. D. Sell and J. H. C. Casey, "Optical absorption and photoluminescence studies of thin GaAs layers in GaAs-Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As double heterostructures," J. Appl. Phys. 45, 800 (1974).
- [122] B. Monemar, K. K. Shih, and G. D. Pettit, "Some optical properties of the Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As alloys system," J. Appl. Phys. 47, 2604 (1976).
- [123] M. D. Sturge, "Optical Absorption of Gallium Arsenide between 0.6 and 2.75 eV," Phys. Rev. 127, 768 (1962).

- [124] G. Khitrova, H. Gibbs, M. Kira, S. Koch, and A. Scherer, "Vacuum Rabi splitting in semiconductors," *Nature Physics* 2, 81 (2006).
- [125] J. Hendrickson, B. C. Richards, J. Sweet, S. Mosor, C. Christenson, D. Lam, G. Khitrova, H. M. Gibbs, T. Yoshie, A. Scherer, O. B. Shchekin, and D. G. Deppe, "Quantum dot photonic-crystal-slab nanocavities: Quality factors and lasing," *Phys. Rev. B* 72, 193,303 (2005).
- [126] T. Tawara, H. Kamada, Y.-H. Zhang, T. Tanabe, N. Cade, H. Gotoh, D. Ding, S. Johnson, E. Kuramochi, M. Notomi, and H. Nakano, "Role of Re-absorption Effect to Quality Factor in Quantum-Dot Photonic-Crystal Nanocavities," *In*dium Phosphide & Related Materials, 2007. IPRM '07. IEEE 19th International Conference on p. 490 (2007).
- [127] N. Gregersen, T. R. Nielsen, B. Tromborg, and J. Mørk, "Quality factors of nonideal micro pillars," Appl. Phys. Lett. 91, 011116 (2007).
- [128] P. Lalanne, J. P. Hugonin, and J. M. Gérard, "Electromagnetic study of the quality factor of pillar microcavities in the small diameter limit," *Appl. Phys. Lett.* 84, 4726 (2004).
- [129] G. Lecamp, J. P. Hugonin, P. Lalanne, R. Braive, S. Varoutsis, S. Laurent, A. Lemaître, I. Sagnes, G. Patriarche, I. Robert-Philip, and I. Abram, "Submicron-diameter semiconductor pillar microcavities with very high quality factors," *Appl. Phys. Lett.* **90**, 091120 (2007).
- [130] M. Benyoucef, S. M. Ulrich, P. Michler, J. Wiersig, F. Jahnke, and A. Forchel, "Enhanced correlated photon pair emission from a pillar microcavity," *New Journal of Physics* 6, 91 (2004).
- [131] P. Burger (Diplomarbeit Universität Karlsruhe (TH), Institut f
  ür Angewandte Physik, 2009).
- [132] H. Haug and S. Schmitt-Rink, "Basic mechanisms of the optical nonlinearities of semiconductors near the band edge," J. Opt. Soc. Am. B 2, 1135 (1985).

## Danksagung

Das letzte Kapitel widme ich all jenen, die mich bei dieser Arbeit auf vielfältige Art und Weise unterstützt haben. Mein besonderer Dank gilt hierbei folgenden Personen und Einrichtungen:

- Prof. Dr. Heinz Kalt für die Integration in seine Arbeitsgruppe, die Zuversicht und das Interesse an meiner Arbeit sowie den geschaffenen Freiraum, an diesem spannenden Projekt zu forschen.
- Prof. Dr. Uli Lemmer für die Bereitschaft, das Korreferat zu übernehmen, die Aufgeschlossenheit gegenüber meinem Thema und die Möglichkeit der Reinraumnutzung.
- Priv.-Doz. Dr. Michael Hetterich für die Aufgabenstellungen zu diesem vielseitigen Projekt, den unerschöpflichen Ideenreichtum und die unmittelbare Betreuung "über den Tisch hinweg" mit intensiven Diskussionen zur Physik oder auch Alltäglichem; Danke außerdem für intensives Korrekturlesen.
- den ehemaligen Diplomanden Frank Weber, Torsten Beck, Daniel Rülke und Philipp Burger für die gute Zusammenarbeit im Labor und die gemeinsamen Erkenntnisse auf dem Gebiet der Mikroresonatoren sowie Dr. Jaime Lupaca-Schomber für die Vorarbeiten zur Pyramidenherstellung.
- Dr. Shunfeng Li, Dr. Daniel Schaadt und Dr. Dongzhi Hu für zahlreiche Proben aus der Molekularstrahlepitaxieanlage und weiterführenden Informationen darüber.
- Dr. Erich Müller und Fabrice Brenner für die umfangreichen Nanofräsarbeiten an den Säulen mit dem fokussierten Ionenstrahl.
- Priv.-Doz. Dr. Frank Schmidt, Dr. Sven Burger und Benjamin Kettner vom Zuse Institut in Berlin (ZIB) für die Kooperation mit ergiebigen Diskussionen über die Simulation der Mikroresonatoren und die Nutzung des Software-

packets *JCMsuite* – insbesondere Benjamin für die intensive Einweisung in das Programm und die ständige Verfügbarkeit.

- allen Mitgliedern der Gruppe Kalt/Klingshirn für die äußerst angenehme Atmosphäre während, zwischen oder auch nach der Arbeit; außerdem Dr. Johannes Fallert für das Korrekturlesen sowie Mario Hauser als persönlichen Mensa-Reminder.
- Alexander Hepting für seinen unermüdlichen Einsatz bei Problemen im Labor und zusammen mit den Mitarbeitern der Feinmechanikwerkstatt für hilfreiche Konstruktionen.
- den Mitarbeitern der Elektronikwerkstatt für Wartung und Service rund um Computer und die Herstellung von Platinen.
- den Sekretärinnen der Angewandten Physik für unkomplizierte Verwaltungsangelegenheiten.
- dem Center for Functional Nanostructures (CFN) bzw. der Deutschen Forschungsgemeinschaft (DFG) für die Finanzierung des Projekts und der bereitgestellten Geräteinfrastruktur.
- der Karlsruhe School of Optics and Photonics (KSOP) für die Vernetzung der Projekte im optischen Bereich, das breitgefächerte Weiterbildungsangebot und finanzielle Unterstützungen.
- meiner Frau Martina für ihre Ermunterungen, ihre Liebe und Geduld sowie das gemeinsame Leben.