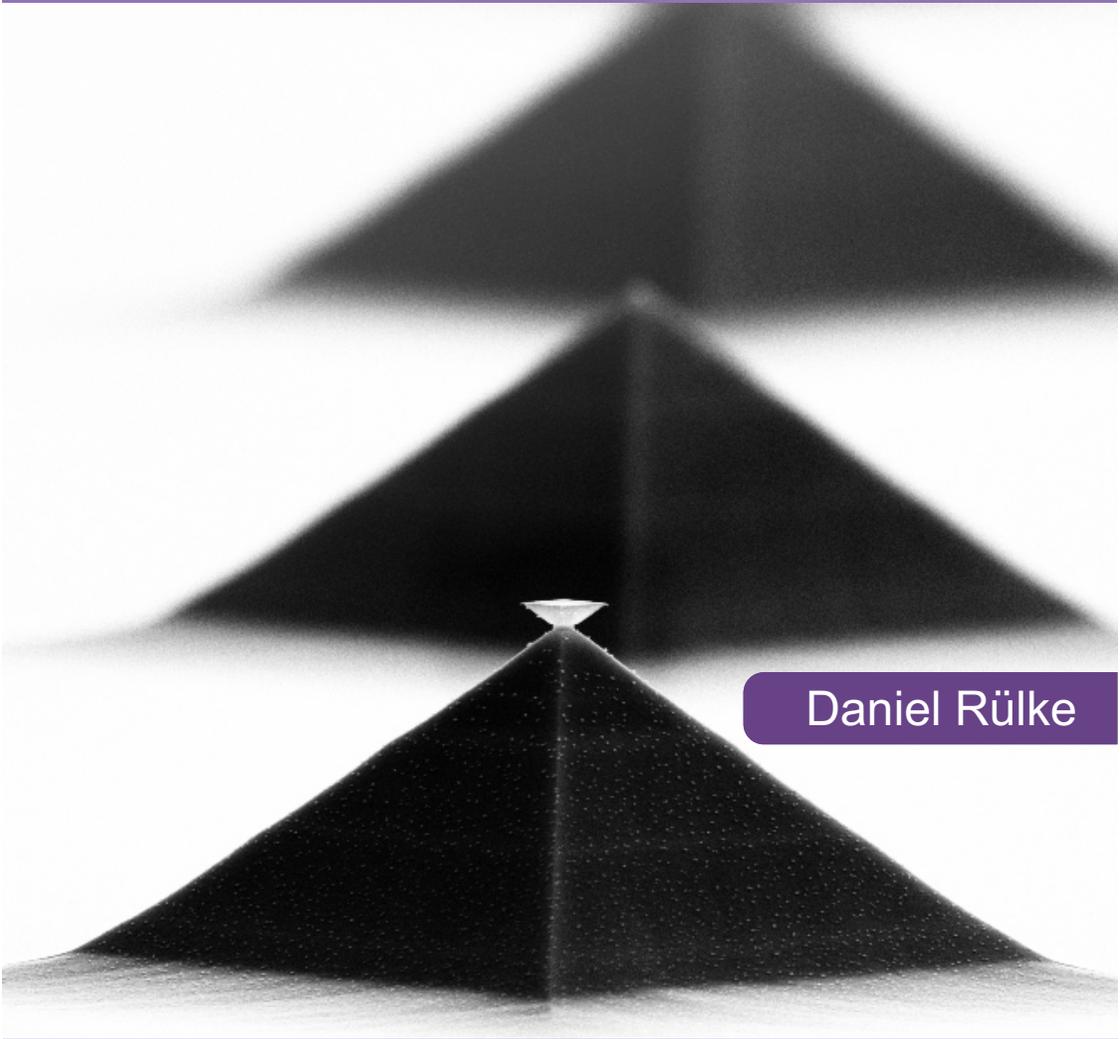


Quantenpunkt- Mikroresonatoren und Einzelphotonenquellen



Daniel Rülke

2012

Quantenpunkt-Mikroresonatoren und Einzelphotonenquellen

Zur Erlangung des akademischen Grades eines
DOKTORS DER NATURWISSENSCHAFTEN
von der Fakultät für Physik
des Karlsruher Instituts für Technologie (KIT)

genehmigte

DISSERTATION

von

Dipl.-Phys. Wolfgang Daniel Rülke
aus Pforzheim

Tag der mündlichen Prüfung : 16.11.2012

Referent : Prof. Dr. H. Kalt

Korreferent : Priv.-Doz. Dr. M. Hetterich

Inhaltsverzeichnis

1	Einführung	1
1.1	Quantenpunkt-basierte Mikroresonatoren im Kontext der Quanteninformationsverarbeitung	1
1.2	Abhörsichere „Quantum Key Distribution“ mittels quantenpunkt-basierter Einzelphotonenquellen	2
1.3	Zielsetzung und Struktur der Arbeit	4
2	Licht–Materie-Wechselwirkung und nicht-klassisches Lichts	7
2.1	Resonator–Emitter-Kopplung	7
2.1.1	Optische Moden	7
2.1.2	Q -Faktor, Modenvolumen und photonische Zustandsdichte	8
2.1.3	Schwache Kopplung an das Zwei-Niveau-System eines Emitters	11
2.1.4	Starke Kopplung zwischen optischer Mode und Emitter	11
2.2	Quantenpunkte	12
2.2.1	Bandschema von InAs-Quantenpunkten	13
2.2.2	Exzitonen, Biexzitonen und Trionen	14
2.3	Nicht-klassisches Licht	15
2.3.1	Photonenstatistik und Fock-Zustände	16
2.3.2	Einzelphotonenemission von Quantenpunkten	16
2.3.3	Korrelationsfunktion 2. Ordnung $g^{(2)}(\tau)$	17
3	Simulationen nasschemischer Ätzprozesse und optischer Eigenschaften	19
3.1	Ätzsimulation in Kristallen mit Zinkblendestruktur	19
3.1.1	Quasi-atomistische Implementierung der Zinkblendesymmetrie	20
3.1.2	Ansatz zur Fortpflanzung der Ätzfront	21
3.1.3	Diskretisierung des Problems	22
3.1.4	Vergleich der Anisotropie in Simulation und Experiment	23
3.2	Elektromagnetische FDTD-Simulationen	26
3.2.1	Implementierung des FDTD-Algorithmus	27
3.2.2	Kopplung der Quelle an das Strahlungsfeld	28

3.2.3	Starke und nicht-resonante Kopplung zwischen Emitter und optischer Mode	30
3.3	Zusammenfassung der Ergebnisse	33
4	InAs-Quantenpunkte	35
4.1	Herstellung mittels Molekularstrahlepitaxie	35
4.1.1	Selbstorganisiertes Wachstum	35
4.1.2	Einfluss der Wachstumsparameter auf die Dichte und Emissionswellenlänge der Quantenpunkte	36
4.1.3	Kontrolle der Emissionswellenlänge durch „Flushing“	37
4.2	Quantum-Confined Stark Effect	37
4.3	Ortsaufgelöste Messungen	42
4.3.1	Messprinzip und Funktionsweise des Dove-Prismas	42
4.3.2	Vorteile der Rotation des Bildes gegenüber anderen Mess- methoden	43
4.3.3	Einfluss leichter Verkippungen des Prismas auf die Ab- bildung	45
4.3.4	Rekonstruktion der Positionen einzelner Quantenpunkte	46
4.4	Zusammenfassung der Ergebnisse	51
5	Aktive Mikroresonatoren	53
5.1	Einführung: Resonatortypen und ihre Eigenschaften	53
5.2	Säulenförmige Resonatoren	55
5.2.1	Optimierung des MBE-Wachstums	56
5.2.2	Optimierung der FIB-Strukturierung	58
5.2.3	Experimentelle Bestimmung der Resonatorgüte	58
5.2.4	Abhängigkeit der Resonanzwellenlänge vom Säulendurch- messer	61
5.2.5	Theoretische Modellierung der Resonatorgüte in Ab- hängigkeit des Säulendurchmessers	61
5.2.6	Verbesserung der Resonatorgüten durch optimierte Her- stellung	65
5.2.7	Vergleich der Resonatorgüten mit Literaturwerten	66
5.3	Überwachsene Pyramidenstümpfe	69
5.3.1	Herstellung der Pyramidenstümpfe	69
5.3.2	Qualität der überwachsenen Braggspiegel	71
5.3.3	Optische Charakterisierung	73
5.4	Scheibenresonatoren	74
5.4.1	Herstellungsmethode	75
5.4.2	CdSe/ZnS-Quantenpunkte	77
5.4.3	Einbettung von CdSe/ZnS-Quantenpunkten	78
5.4.4	Lasing in quantenpunktbenetzten Resonatoren	81

5.5	Zusammenfassung der Ergebnisse	83
6	Einzelphotonenquellen	85
6.1	Realisierungsmöglichkeiten von Einzelphotonenquellen	85
6.2	Vorteile pyramidaler Einzelphotonenquellen	88
6.3	Berechnung der Auskopplungseffizienz	90
6.4	Herstellung von GaAs-Mikropyramiden	92
6.4.1	MBE-Wachstum	92
6.4.2	Elektronenstrahlolithographie	92
6.4.3	Ätzverfahren	93
6.5	Zeitliche Korrelationsmessungen an Einzelphotonenquellen	94
6.5.1	Hanbury-Brown & Twiss Setup	95
6.5.2	Nachweis und Charakterisierung der Einzelphotonemission	96
6.6	Elektrische Kontaktierung über nasschemisch geätzte Brücken	98
6.6.1	Kontaktierung der Pyramiden	98
6.6.2	Elektrolumineszenz einzelner Pyramiden	101
6.7	Elektrische Kontaktierung von verspiegelten Pyramidenstümpfen	102
6.7.1	Funktionsprinzip	102
6.7.2	Herstellung und Kontaktierung der Pyramidenstümpfe	103
6.7.3	Entfernen des Substrats	106
6.7.4	Optische Charakterisierung	107
6.8	Zusammenfassung der Ergebnisse	109
7	Zusammenfassung und Ausblick	113
7.1	Herstellung quantenpunktbasierter Mikroresonatoren hoher Güte	113
7.2	Herstellung effizienter und breitbandiger Einzelphotonenquellen	115
7.3	Ausblick	116
A	Anhang	119
A.1	Verwendete Säuren	119
A.1.1	Zitronensäureätzte 5:1	119
A.1.2	Phosphorsäureätzte 1:x:8	119
A.1.3	Iod-Kaliumiodid-Ätzlösung	119
A.2	Probenverzeichnis	120
A.2.1	Probennomenklatur	120
A.2.2	Proben zur Herstellung von Säulenresonatoren	120
A.2.3	Proben zur Herstellung überwachsender Pyramidenstümpfe	123
A.2.4	Proben zur Messung des „Quantum-Confined Stark Effect“	124

A.2.5	Proben zur Herstellung optisch angeregter Einzelphotonenquellen	124
A.2.6	Proben zur Herstellung elektrisch angeregter Einzelphotonenquellen	125
A.2.7	Proben zur Herstellung von PMMA-Scheibenresonatoren mit eingebetteten CdSe/ZnS-Quantenpunkten	127
Publikationen		129
Literaturverzeichnis		146
Danksagung		147

1 Einführung

1.1 Quantenpunkt-basierte Mikroresonatoren im Kontext der Quanteninformationsverarbeitung

Im ersten Satz einer Veröffentlichung zum Thema quantenpunkt-basierte Mikroresonatoren taucht fast immer der Begriff der Quanteninformationsverarbeitung (engl. *Quantum Information Processing*) oder des *Quantum Computings* auf¹. Daher kommt man in einer Einführung auch nicht daran vorbei, diesem Thema einige Zeilen zu widmen, wie es im folgenden Abschnitt geschehen soll.

Seit den theoretischen Vorschlägen von R. P. Feynman [1] und D. Deutsch [2] in den 1980er Jahren, wie gekoppelte Quantenzustände zur effektiven Berechnung exponentiell skalierender numerischer Probleme genutzt werden könnten, dauerte es noch bis Anfang der 1990er Jahre bis die ersten Quantenalgorithmen entwickelt wurden. Nach einfachen Orakelalgorithmen [3, 4] war es wohl vor allem der von P. W. Shor entwickelte Algorithmus zur Primzahlfaktorisierung [5], der den Quantencomputer in den Fokus der Forscher rückte. Mit diesem Algorithmus konnte er erstmals darlegen, wie ein Problem, dessen Zeit zur Lösung auf einem klassischen Computer exponentiell mit seiner Größe skaliert, mit einem Quantencomputer nur polynomiell skaliert. Zusammen mit D. P. DiVincenzo lieferte er ein Jahr zuvor zudem eine Möglichkeit zur Fehlerkorrektur in Quantencomputern [6], was zumindest in der Theorie den Weg zur Realisierung eines Quantencomputers ebnete.

Für die reale Umsetzung eines solchen Quantencomputers benötigt man jedoch zuerst ein sog. Qubit, das Analogon zum Bit eines klassischen Computers. Ein solches Qubit besteht aus einem quantenmechanischen Zwei-Niveau-System mit den Eigenzuständen $|0\rangle$ und $|1\rangle$. Im Gegensatz zu einem klassischen Bit kann ein Qubit nicht nur den Zustand ‘0’ oder ‘1’ annehmen, sondern jeden Zustand $|\Psi\rangle = \cos(\theta)|0\rangle + \sin(\theta)e^{i\phi}|1\rangle$ auf der Bloch-Sphäre des Zwei-Niveau-Systems. An die Stelle des *NAND*-Gatters eines klassischen Computers, durch das jede logische Operation substituiert werden kann, tritt beim Quantencomputer das *CNOT*-Gatter. Bevor man jedoch ein *CNOT*-Gatter realisieren kann, benötigt man zuerst ein Qubit, das gewisse Anforderungen erfüllt. Damit es für logische Operation einsetzbar ist, muss es definiert

¹Hiermit ist dies nun auch in dieser Arbeit geschehen.

initialisiert, manipuliert und ausgelesen werden können. Hinzu kommt, anders als beim klassischen Computer, dass man die Qubits untereinander quantenmechanisch koppeln muss. Für die tatsächliche Anwendung als Quantencomputer gibt es allerdings noch ein viel entscheidenderes Kriterium, das in der Forschung nur allzu gern unter den Teppich gekehrt oder an die Ingenieurwissenschaften weitergeleitet wird: Die Skalierbarkeit des Systems.

Im Jahre 1999 stellten Imamoglu *et al.* die Möglichkeit zur experimentellen Realisierung eines *CNOT*-Gatters anhand der Kopplung von Elektronenspins, die in Quantenpunkten lokalisiert sind, an die optische Mode eines Scheibenresonators vor [7]. Die Idee zur Verwendung von Halbleiterquantenpunkten basierte auf ihrer besonderen Eigenschaft, dass Elektronen und Löcher in Quantenpunkten diskrete Energieniveaus besetzen und so als eine Art künstliches Atom angesehen werden können. Kann man nun spinpolarisierte Ladungsträger in diese Quantenpunkte injizieren und ihre Spins untereinander koppeln, hat man effektiv ein Ensemble gekoppelter Qubits, wobei die Zustände der Qubits durch die Bloch-Sphären der Elektronenspins repräsentiert werden. Die Kopplung und Manipulation sollte dann durch das Feld einer optischen Mode und lokalen Laserfeldern geschehen, die eine leichte spektrale Verschiebung zur Kavitätsmode aufweisen. Bedingung ist allerdings, dass die Zustände in den Quantenpunkten stark an das Lichtfeld der optischen Mode gekoppelt sind. Ausgehend von dieser Idee wurden intensive Nachforschungen hinsichtlich der Initialisierung spinpolarisierter Elektronen oder Löcher in Halbleiterquantenpunkte [8–10], deren Manipulation [11–13] sowie dem Erreichen starker Kopplung zwischen den elektronischen Zuständen im Quantenpunkt und optischen Kavitätsmoden [14–19] betrieben. Trotz vieler Erfolge auf diesem Gebiet ist die Realisierung eines kompletten Bauelements mit mehr als zwei gekoppelten Qubits bisher ausgeblieben. Letztendlich muss man jedoch auch ein paar Worte über die Skalierbarkeit dieses Systems verlieren. Schon Imamoglu *et al.* sprachen in ihrer Veröffentlichung die Warnung aus: „... the requirement for addressing each QD individually strongly limits the scalability“ [7]. Es war also ohnehin davon auszugehen, dass dieser Ansatz nie über den Status eines Laborexperiments hinauskommen würde.

1.2 Abhörsichere „Quantum Key Distribution“ mittels quantenpunktbasierter Einzelphotonenquellen

Nachdem im letzten Abschnitt die Motivation, quantenpunktbasierte Mikroresonatoren zur Realisierung von Quantencomputern zu erforschen, etwas herabgewürdigt wurde, sollen im Folgenden in einem positiveren Licht die Errungenschaften, die für Wissenschaft und Technologie aus der Erforschung dieses physikalischen Systems hervorgekommen sind, vorgestellt werden. Ne-

ben einer großen Menge an Erkenntnissen in Bezug auf das Verhalten von Elektronen und Löchern in Quantenpunkten, die eher im Bereich der Grundlagenforschung angesiedelt sind, rückte die Photonenstatistik der emittierten Strahlung einzelner Quantenpunkte immer mehr in den Fokus der Wissenschaft. Die Besonderheit liegt dabei in der sequentiellen Abstrahlung einzelner ununterscheidbarer Photonen oder auch quantenmechanisch verschränkter Photonenpaare. Darin unterscheidet sich die Emission von Quantenpunkten stark von der klassischer Lichtquellen.

Für dieses sog. nicht-klassische Licht gibt es ein großes Interesse im Rahmen der abhörsicheren Verschlüsselung gesendeter Datenpakete. Dabei werden einzelne ununterscheidbare Photonen oder besser verschränkte Photonenpaare dafür verwendet, einen Schlüssel (*engl. Key*) vom Sender (meist als Alice bezeichnet) zum Empfänger (Bob) zu transportieren. Ein Außenstehender (Eve) versucht diese Kommunikation abzuhören. Theoretisch kann nachgewiesen werden, dass Kommunikationsprotokolle zwischen Alice und Bob so gestaltet werden können, dass Eve nur eine exponentiell geringe Wahrscheinlichkeit hat, von Alice und Bob bei seinem Abhörversuch nicht erwischt zu werden [20–22]. Letzteres soll auch dann noch gelten, wenn Eve einen Quantencomputer mit unendlicher Rechenkapazität besitzt. In der Literatur taucht hierzu häufig der Terminus der Quantenkryptografie (*engl. Quantum Cryptography*) auf. Diese Bezeichnung sollte allerdings vermieden werden, da es sich nicht um eine Verschlüsselung auf der Basis eines Quantenalgorithmus handelt, sondern um den Transfer des Schlüssels mittels einzelner Lichtquanten. Besser ist daher die Bezeichnung *Quantum Key Distribution*, also die Verteilung von Quantenschlüsseln. Tatsächlich wird diese Verschlüsselungstechnik schon von einigen Firmen angeboten (z.B. *IDQuantique*, *MagiQ Technologies*, *QuintessenceLabs*).

Für die Technologie von Bedeutung ist es nun, möglichst hochfrequente und zuverlässige Quantenemitter zu verwenden. Da Quantenpunktemitter *per se* Einzelphotonenquellen sind und es einen großen Erfahrungsschatz in der Prozessierung von Halbleiterbauelementen gibt, liegt es daher nahe, diese als Quellen zu verwenden. Insbesondere durch die intensive Forschung hinsichtlich der Manipulation elektronischer Zustände im Quantenpunkt und der Kopplung an optische Moden, die im Rahmen der Quanteninformationsverarbeitung getätigt wurden, gibt es kein anderes System, das eine größere Vielfalt in der Erzeugung nicht-klassischen Lichts verschiedener Eigenschaften bietet. Z.B. können durch die starke Kopplung zwischen Quantenpunkt und optischer Mode exotische Photonenstatistiken [23] und Einzelquantenpunktlaser [24] realisiert werden oder durch gezielte Präparation elektrisch angeregt zirkular polarisierte einzelne Photonen erzeugt werden [25]. Die Hürde, die sich jedoch jedem Ansatz in den Weg stellt, ist die Effizienz, mit der die Emission der Quantenpunkte aufgesammelt werden kann. Hierfür wird häufig auf die

Kopplung des Emitters an eine definiert abstrahlende optische Mode eines Mikroresonators zurückgegriffen [26–28]. Die Herstellung dieser Resonatoren ist allerdings meist sehr aufwändig und erlaubt die effiziente Auskopplung der Emission nur im spektral sehr schmalen Bereich einer optischen Mode. Da es möglich ist, mithilfe eines Quantenpunktes verschränkte Photonenpaare zu erzeugen [29–31], diese aber spektral getrennt sind, wäre es von Vorteil, eine Lösung zu finden, bei der die Emission eines Quantenpunktes in einem breiteren Frequenzband effizient ausgekoppelt wird. Bisherige Lösungen basieren dabei auf wenig reproduzierbaren Ansätzen [32].

1.3 Zielsetzung und Struktur der Arbeit

Ziel dieser Arbeit war es nun, zum einen ein stark gekoppeltes System aus Quantenpunktemitter und optischer Kavitätsmode herzustellen und zum anderen breitbandige, effiziente Einzelphotonenquellen.

Einleitend werden in Kap. 2 einige theoretischen Grundlagen zu optischen Mikroresonatoren, Quantenpunkten und nicht-klassischem Licht gegeben.

In Kap. 3 werden zwei unterschiedliche numerische Simulationstechniken vorgestellt, die in dieser Arbeit entwickelt wurden. Die Ziele der Simulationen sind recht unterschiedlich, da es sich hier aber im Wesentlichen um eine experimentelle Arbeit handelt, werden sie in einem Kapitel abgehandelt. Im ersten Teil wird ein Algorithmus vorgestellt, der die grundlegenden Charakteristika des anisotropen Ätzverhaltens von Kristallen mit Zinkblendestruktur vorhersagen kann. Dies war für die Herstellung der Einzelphotonenquellen von Bedeutung. Im zweiten Teil wird dann ein Algorithmus vorgestellt, der es erlaubt, schwache und starke Kopplung zwischen einem Dipolemitter und einer optischen Mode zu simulieren. Letzteres wird anhand der Rückkopplung des elektromagnetischen Strahlungsfeldes auf den Emitter durch die klassische Lorentzkraft erreicht.

Den Quantenpunktemittern ist dann Kap. 4 gewidmet. Neben verschiedenen Herstellungsmethoden und der Kontrolle über ihre Emissionswellenlänge durch den *Quantum-Confined Stark Effect* wird auch eine neue Methode zur ortsauflösenden hochauflösenden Spektroskopie vorgestellt, die auf der Rotation des Bildes durch ein Dove-Prisma beruht.

Zur Herstellung von Mikroresonatoren mit ausreichend hoher Güte, um starke Kopplung zwischen Emitter und optischer Mode zu erreichen, wurde drei Ansätzen nachgegangen, die in Kap. 5 erörtert werden. Hierbei handelt es sich um zwei Arten von Bragg-Kavitäten auf der Basis von Galliumarsenid mit eingebetteten InAs-Quantenpunkten, sowie polymerischen Scheibenresonatoren mit eingebetteten kolloidalen CdSe/ZnS-Quantenpunkten. Letztere wurden insbesondere auch im Kontext der Herstellung quantenpunktbasierter

Mikrolaser erforscht, die bei Raumtemperatur operieren.

Abschließend werden die Ergebnisse zur Herstellung optisch und elektrisch angeregter Einzelphotonenquellen auf der Basis umgedrehter Mikropyramiden in Kap. 6 präsentiert. Die Bauelemente bieten neben ihrer Breitbandigkeit und wesentlich einfacheren Herstellungsmethode weitere Vorteile gegenüber herkömmlichen Einzelphotonenquellen, die im Detail in diesem Kapitel diskutiert werden.

2 Theorie der Licht–Materie–Wechselwirkung und des nicht-klassischen Lichts

Vor dem eigentlichen Kern dieser Arbeit werden im folgenden Kapitel kurz einige physikalische Grundlagen diskutiert, die in Bezug auf aktive optische Mikroresonatoren und damit verbunden auch den Einzelphotonenquellen von Bedeutung sind. Nach einer Einführung in die Eigenschaften einer resonanten Kopplung zwischen einem optischen Resonator und Emittieren werden die charakteristischen Merkmale der Quantenpunktemitter vorgestellt, zu denen abschließend auch die besondere Statistik ihrer emittierten Photonen zählt.

2.1 Resonator–Emitter-Kopplung

2.1.1 Optische Moden

Bei der Diskussion über die Kopplung zwischen dem elektromagnetischen Strahlungsfeld in einem optischen Resonator und dem elektronischen Zustand eines Emitters spielt der Begriff der optischen Mode eine wesentlichen Rolle. Er beschreibt eine spektral definierte Erhöhung der photonischen Zustandsdichte durch konstruktive Interferenz der photonischen Wellenfunktion. Als einfachstes Beispiel sind hier die wohlbekanntes Fabry–Pérot-Moden zwischen zwei planparallelen Grenzflächen zu nennen. Im Folgenden wird nun eine kurze Einführung in die Eigenschaften optischer Moden und den, in diesem Zusammenhang üblichen, Termini gegeben. Ein Überblick über die Eigenschaften von optischen Resonatoren kann der Fachliteratur, wie beispielsweise Ref. [33], entnommen werden.

Greift man das Beispiel der Fabry–Pérot-Moden anhand eines Laserstrahls auf, der senkrecht durch eine sehr dünne Glasscheibe gelenkt wird, ist bei konstruktiver Interferenz der Mehrfachreflexionen des Laserstrahls zwischen den Grenzflächen seine Intensität innerhalb der Glasscheibe leicht erhöht. Bei optischen Mikroresonatoren werden jedoch gewöhnlich hochreflektierende dielektrische Spiegel, Totalreflexion oder eine Kombination aus beidem verwendet, um einen dreidimensionalen Raum, die sog. Kavität, zu verspiegeln. Würde man nun die Glasscheibe an beiden Seiten mit identischen hochreflektierenden dielektrischen Spiegeln versehen und einen Laserstrahl durch die so gewonnene Kavität schicken, würde anfangs zwar ein großer Teil des Laserlichts reflektiert werden, innerhalb kürzester Zeit würde sich jedoch in der

Kavität eine optische Mode mit immens hoher Intensität aufbauen. Dies geschieht so lange, bis die Intensität des Lichts, das durch den hinteren Spiegel aus der Glasscheibe austritt, im Wesentlichen der Intensität des einfallenden Laserlichts entspricht. In diesem Zustand interferieren das reflektierte Licht des Lasers und das Licht, das aus der Kavität durch den vorderen Spiegel entweicht, destruktiv, und die Transmission der Kavität erreicht nahezu 100%, sofern die Dicke der Glasscheibe ein Vielfaches der halben Wellenlänge des Lasers ist.

Da sich die Intensität in der Kavität erst aufbauen muss, wird in anderem Zusammenhang auch gerne etwas nebulös von *Slow Light*, also langsamen Licht, gesprochen. Ein Signal, das durch die Kavität gesendet wird, wird also um eine bestimmte Zeit in der Kavität verzögert. Schaltet man den Laser z.B. aus, klingt die Intensität in der Kavität nur exponentiell mit der Zeit ab. Die Abklingzeit τ einer optischen Mode gibt Auskunft über die optischen Verluste der Kavität. Diese können durch verschiedene Mechanismen zustande kommen, die man gewöhnlich in Absorptions-, Streu- und Reflexionsverluste unterteilt, denen man die linearen Verlustraten Γ_{Abs} , Γ_{Str} und Γ_{Ref} zuordnen kann. Wird nun beispielsweise, wie oben beschrieben, durch einen Laser Licht mit der Leistung P_{Pump} in die Kavität eingekoppelt, lässt sich für die zeitliche Entwicklung der in der Kavität gespeicherten Gesamtenergie $E_{\text{ges}}(t)$ schreiben:

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} E_{\text{ges}}(t) &= -(\Gamma_{\text{Abs}} + \Gamma_{\text{Str}} + \Gamma_{\text{Ref}}) E_{\text{ges}}(t) + P_{\text{Pump}} \\ \frac{\partial}{\partial t} E_{\text{ges}}(t) &= -\frac{1}{\tau} E_{\text{ges}}(t) + P_{\text{Pump}} \end{aligned} \quad (2.1)$$

Die Abklingzeit $\tau = (\Gamma_{\text{Abs}} + \Gamma_{\text{Str}} + \Gamma_{\text{Ref}})^{-1}$ beschreibt die Verluste einer Kavität. Im Kontext optischer Mikroresonatoren ist man jedoch meist an der Erhöhung der photonischen Zustandsdichte interessiert. Zu diesem Zweck wird eine optische Mode meist durch ihre Güte Q und ihr Modenvolumen V_{Mode} quantifiziert. Im folgenden Abschnitt werden Definition und Bedeutung dieser Parameter diskutiert.

2.1.2 Q -Faktor, Modenvolumen und photonische Zustandsdichte

Zur Berechnung der photonischen Zustandsdichte $D(\omega) = \partial n(\omega)/\partial \omega$ benötigt man zunächst das Spektrum der Photonendichte $n(\omega)$. Dabei ist von besonderer Bedeutung, um wie viel die Photonendichte im Vergleich zum Vakuum erhöht wurde. Eine Möglichkeit, die Photonendichte zu berechnen ist ihre Abhängigkeit $n(\omega) = I(\omega)/\hbar\omega$ von der Intensität $I(\omega)$ und der Frequenz ω des Lichts. Betrachtet man nun für Gl. 2.1 den stationären Fall $\partial/\partial t E_{\text{ges}}(t) = 0$,

ergibt sich für die in der Kavität gespeicherte Energie

$$E_{\text{ges}}(t) = \tau P_{\text{Pump}}. \quad (2.2)$$

Daraus kann man zunächst auf die Zahl $N = \tau P_{\text{Pump}}/\hbar\omega$ der in der Kavität gespeicherten Photonen schließen. Man kann natürlich nicht davon ausgehen, dass die Intensität der Mode über die Kavität gleichverteilt ist. Deswegen kann man die Zahl N der Photonen nicht einfach durch das Volumen der Kavität teilen, sondern definiert das sogenannte Modenvolumen

$$V_{\text{Mode}} := \frac{1}{I_{\text{max}}} \int_V I(\vec{x}) dV. \quad (2.3)$$

N/V_{Mode} beschreibt dann die Photonendichte n_{max} am Ort des Intensitätsmaximums.

Um ein von der Anregungsleistung P_{Pump} unabhängiges Maß für den Energieverlust eines Resonators zu bekommen, wird außerdem der als Resonatorgüte bezeichnete Q -Faktor definiert:

$$Q := \frac{2\pi \times \text{gespeicherte Energie } E_{\text{ges}}}{\text{Energieverlust pro Periodendauer } T} \quad (2.4)$$

Da Gl. 2.2 auf einem Gleichgewicht zwischen optischen Verlusten und der eingekoppelten optischen Leistung beruht, lässt sich der Q -Faktor schreiben als:

$$\begin{aligned} Q &= \frac{\omega E_{\text{ges}}(t)}{P_{\text{Pump}}} \\ Q &= \omega\tau \end{aligned} \quad (2.5)$$

Das Verhältnis $2Q/\pi\omega$ wird häufig als Abschätzung für die photonische Zustandsdichte in einer Mode verwendet [34], sollte daher aber auch nur als Anhaltspunkt dienen. Zur Berechnung der tatsächlichen Zustandsdichte ist immer die Kenntnis über die Dispersion im Phasenraum vonnöten.

Die Definition des Q -Faktors ist aber insofern praktisch, da er direkt aus dem Spektrum einer optischen Mode abgelesen werden kann. Betrachtet man in der Differentialgleichung 2.1 nur den homogenen Teil

$$\frac{\partial}{\partial t} E_{\text{ges}}(t) = -\frac{1}{\tau} E_{\text{ges}}(t)$$

erhält man ein zeitlich exponentielles Abklingen der im Resonator gespeicherten Energie

$$E_{\text{ges}}(t) = E_0 e^{-t/\tau}.$$

Die zeitabhängige Amplitude $E(t)$ des elektrischen Feldes bei der Resonanzfrequenz ω_0 der optischen Mode klingt dann ebenfalls exponentiell ab mit:

$$E(t) = E_0 e^{-t/2\tau} e^{-i\omega_0 t}$$

Entwickelt man $E(t)$ nun nach zeitharmonischen ebenen Wellen durch

$$E(t) = \int_{-\infty}^{\infty} E(\omega) e^{-i\omega t} d\omega$$

erhält man für die frequenzabhängige Intensität $I(\omega)$ aus der Fouriertransformation der zeitabhängigen Amplitude $E(t)$:

$$\begin{aligned} E(\omega) &= E_0 \int_0^{\infty} e^{-t/2\tau} e^{-i\omega_0 t} e^{i\omega t} dt \\ E(\omega) &= E_0 \frac{2i\tau}{i + 2\tau(\omega - \omega_0)} \\ I(\omega) &= |E(\omega)|^2 = |E_0|^2 \frac{4\tau^2}{4\tau^2(\omega - \omega_0)^2 + 1} \end{aligned} \quad (2.6)$$

Gl. 2.6 beschreibt das Spektrum einer optischen Mode und entspricht einer Lorentz-Verteilung mit der Halbwertsbreite

$$\Delta\omega = \tau^{-1}.$$

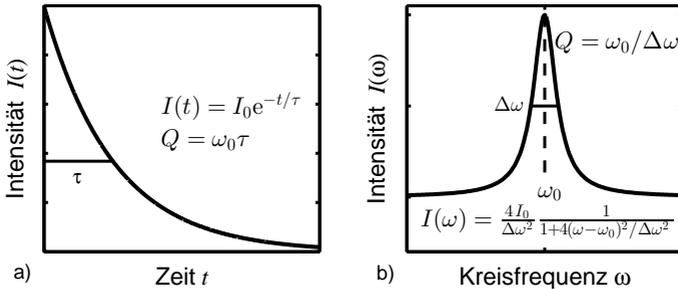


Abbildung 2.1: Zeitliches Abklingen (a) und Spektrum (b) einer optischen Mode. Der Q -Faktor einer Mode kann aus deren Spektrum abgelesen werden.

Mit dieser Relation kann man nun den Q -Faktor aus Gl. 2.5 durch die Resonanzfrequenz ω_0 und Halbwertsbreite $\Delta\omega$ berechnen (Abb. 2.1). Es gilt:

$$Q = \omega\tau = \omega_0/\Delta\omega \approx \lambda_0/\Delta\lambda \quad (2.7)$$

2.1.3 Schwache Kopplung an das Zwei-Niveau-System eines Emitters

Befindet sich nun ein Dipolemitter in einer optischen Kavität, folgt seine Emissionsrate $\Gamma_{i \rightarrow f}$ im Falle einer schwachen Kopplung Fermis Goldener Regel [35]:

$$\Gamma_{i \rightarrow f} = \frac{2\pi}{\hbar} D(\omega) |\langle f | \hat{\mathbf{d}} \cdot \hat{\mathbf{E}} | i \rangle|^2 \quad (2.8)$$

In dieser Gleichung beschreibt $D(\omega)$ die photonische Zustandsdichte bei der Frequenz ω des Dipolemitters, $|i\rangle$ und $|f\rangle$ Anfangs- und Endzustand des Systems, sowie $\hat{\mathbf{d}} \cdot \hat{\mathbf{E}}$ die Projektion des Dipoloperators $\hat{\mathbf{d}}$ auf das elektrische Feld $\hat{\mathbf{E}}$. Man sieht also unmittelbar, dass die Übergangsraten proportional zur photonischen Zustandsdichte bei der Emissionsenergie des Emitters sind.

Im Falle der spontanen Emission eines Photons durch einen angeregten Dipol kann entsprechend die Lebensdauer des angeregten Zustands durch Veränderung der photonischen Zustandsdichte beeinflusst werden. Dieses Verhalten wird Purcell-Effekt genannt und durch den Purcell-Faktor F_P quantifiziert, der die Lebensdauer eines Emitters in einer Kavität in Relation zu seiner Zerfallszeit im Vakuum setzt. Er berechnet sich durch das Verhältnis der Zustandsdichte in Resonator und im Vakuum. Unter den Bedingungen, dass der Dipolemitter in Resonanz mit der Kavitätsmode ist, der Dipol des Emitters parallel zum elektrischen Feld der optischen Mode polarisiert ist ($\hat{\mathbf{d}} \cdot \hat{\mathbf{E}} = |\hat{\mathbf{d}}| |\hat{\mathbf{E}}|$) und der Emitter im Intensitätsmaximum einer optischen Mode platziert ist, lässt sich der Purcell-Faktor folgendermaßen abschätzen [34, 36]:

$$F_P := \frac{\tau_{\text{Kavität}}}{\tau_{\text{Vakuum}}} \\ F_P = \frac{3}{4\pi^2} \left(\frac{\lambda}{n_c} \right)^3 \frac{Q}{V_{\text{Mode}}} \quad (2.9)$$

Dabei beschreiben $\tau_{\text{Kavität}}$ und τ_{Vakuum} die Lebensdauer des angeregten Zustandes in der Kavität bzw. im Vakuum, λ ist die Emissionswellenlänge des Emitters im Vakuum und n_c der Brechungsindex der Kavität.

Will man also einen möglichst großen Purcell-Effekt erzeugen, ist es vonnöten, das Verhältnis Q/V_{Mode} zu optimieren.

2.1.4 Starke Kopplung zwischen optischer Mode und Emitter

Während die Erhöhung der Emissionsrate eines Dipolemitters aufgrund des Purcell-Effekts durch die schwache Kopplung des Dipols an das elektromagnetische Strahlungsfeld entsteht, bei der klar zwischen den photonischen und

elektronischen Zuständen unterschieden werden kann, muss bei der sog. starken Kopplung immer ein Mischzustand aus beiden betrachtet werden. Solche elektronisch-photonischen Mischzuständen werden als Polaritonen bezeichnet, wie z.B. das Phononpolariton in Kristallen (s. z.B. [37]). Im Falle einer Kavität spricht man entsprechend von einem Kavitätspolariton. Das quantenmechanische System aus Kavitätsmode und Emittter wird dabei durch den Jaynes-Cummings-Hamiltonoperator repräsentiert [38]. Er beschreibt ein gekoppeltes System aus n Photonen und einem elektronischen Zwei-Niveau-System, wie in erster Näherung einem Atom, Molekül oder Quantenpunkt.

Die Kopplung führt zu einer aus der Quantenmechanik wohlbekannteren Rabi-Aufspaltung der Zustände. Dabei geschieht es, wenn sich mehr als ein Photon in Resonanz mit Kavität und Emittter befindet, dass die einzelnen Photonen durch die Kopplung an den Emittter effektiv auch untereinander wechselwirken. Bei n Photonen in einer Kavität bedeutet dies eine Gesamtheit von $n + 1$ gekoppelten Zuständen. Die daraus resultierenden Mischzustände werden als Stufen der sog. Jaynes-Cummings-Leiter bezeichnet.

Zum Erreichen höherer Stufen der Jaynes-Cummings-Leiter ist es allerdings vonnöten, dass während der Lebensdauer eines Photons in der Kavität ein oder mehrere weitere Photonen erzeugt werden. Daher ist bei optischen Kavitäten in der Regel nur die unterste Stufe, also der Mischzustand des elektronischen Zwei-Niveau-Systems mit einem Photon, von Bedeutung. Für die Stärke der Rabi-Aufspaltung ΔE_{Rabi} sind im Wesentlichen die Oszillatorstärke f des Emittters, das Modenvolumen V_{Mode} und die Resonatorgüte Q von Bedeutung, sowie der Überlapp der Wellenfunktionen im Frequenzraum. Die Rabi-Aufspaltung der Mischzustände lässt sich dann über

$$\Delta E_{\text{Rabi}} = 2\hbar \sqrt{g^2 - \left(\frac{\Delta\omega_{\text{Mode}} - \Delta\omega_{\text{Emittter}}}{4} \right)^2} \quad (2.10)$$

abschätzen [39], wobei $\Delta\omega_{\text{Mode}}$ und $\Delta\omega_{\text{Emittter}}$ die Halbwertsbreiten von optischer Mode und Emittter beschreiben sowie

$$g = \left(\frac{1}{4\pi\epsilon_r\epsilon_0} \frac{\pi e^2 f}{mV_{\text{Mode}}} \right)^{1/2} \quad (2.11)$$

die sog. Kopplungskonstante. Fasst man Gl. 2.10 und 2.11 zusammen, ist es für eine möglichst große Rabi-Aufspaltung im Gegensatz zum Purcell-Effekt nun notwendig, das Verhältnis $Q^2 f/V_{\text{Mode}}$ zu optimieren.

2.2 Quantenpunkte

Wie in einem Großteil der aktuellen Forschung wurden auch in dieser Arbeit Quantenpunkte als Emittter in den optischen Kavitäten platziert. Letztere

werden häufig als künstliche Atome bezeichnet, und für ein oberflächliches Verständnis der Physik in Quantenpunkten ist diese Betrachtungsweise meist ausreichend. Entsprechend werden im folgenden Abschnitt einige grundlegende physikalische Eigenschaften vorgestellt, die sich sehr nah an den elektronischen Zuständen eines Atoms bewegen. Da es für den Verlauf dieser Arbeit nicht von Relevanz ist, wird auf eine genauere Betrachtung der quantenmechanischen Zustände in einem Quantenpunkt verzichtet.

2.2.1 Bandschema von InAs-Quantenpunkten

Halbleiterquantenpunkte bestehen aus kleinen Inseln eines Halbleiters, der von einem anderen Halbleiter größerer Bandlücke eingeschlossen wird. Die Dimensionen der Insel sind dabei so klein, dass Quantisierungseffekte durch die Barrieren in den Valenz- und Leitungsbändern auftreten. Da die Ladungsträger in den Quantenpunkten in allen Raumrichtungen durch die Potenzialbarrieren eingeschlossen werden, kann man für sie keine kontinuierliche Dispersion $E(\mathbf{k})$ mehr angeben, sondern nur noch diskrete Energieniveaus. Im Falle unendlicher Potenzialbarrieren und ohne Zerfallskanäle für die elektronischen Zustände im Quantenpunkt würde man eine Serie δ -förmiger Resonanzen in der Zustandsdichte erhalten. Da die Barrieren jedoch eine endliche Höhe besitzen und es für alle angeregten Zustände strahlende oder nicht-strahlende Zerfallskanäle gibt, beobachtet man unter Vernachlässigung nicht-kohärenter Effekte, wie bei optischen Moden, Lorentz-förmige Peaks in der Zustandsdichte der Ladungsträger im Quantenpunkt. Die Halbwertsbreite $\Delta\omega$ ist entsprechend mit der Lebensdauer τ des jeweiligen Zustandes verknüpft.

Da in den Quantenpunkten sowohl Elektronen als auch Löcher diskrete Zustände besetzen, entstehen bei Rekombination eines Elektron-Loch-Paares, das meist als Exziton bezeichnet wird, ebenso Photonen mit festgelegter diskreter Energie. Damit Exzitonen effizient strahlend rekombinieren können, müssen allerdings die Auswahlregeln für Dipolübergänge erfüllt sein. Die Quanteneffizienz von Quantenpunkten ist hoch im Vergleich zu Volumenhalbleitern, da Elektron und Loch darin gefangen sind und so die Wahrscheinlichkeit einer strahlenden Rekombination erhöht wird.

In Abb. 2.2 ist das Bandschema eines InAs-Quantenpunktes zu sehen. Wachstumsbedingt befindet sich unterhalb der Quantenpunktschicht noch eine In(Ga)As-Benetzungsschicht (vgl. Abs. 4.1.1), die ebenfalls eine geringere Bandlücke als GaAs aufweist. Um nun Ladungsträger in einem Quantenpunkt optisch zu erzeugen, hat man drei Möglichkeiten: (i) Man regt oberhalb der GaAs-Bandkante an, so dass Ladungsträger im GaAs entstehen und in den Quantenpunkt relaxieren. (ii) Man erzeugt resonant Exzitonen in der Benetzungsschicht, die dann in den Quantenpunkt relaxieren. (iii) Man regt direkt resonant Exzitonen in dem Quantenpunkt an. Je näher die Anregungswellen-

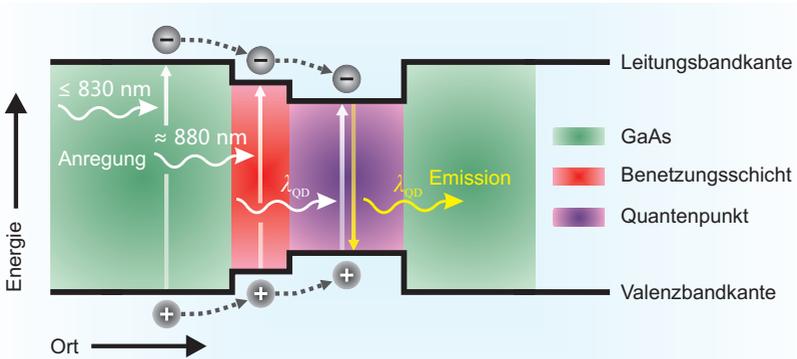


Abbildung 2.2: Bandschema eines InAs-Quantenpunktes mit Benetzungsschicht. Ladungsträger können entweder nicht-resonant im GaAs ($\lambda \leq 830 \text{ nm}$) oder der Benetzungsschicht ($\lambda \approx 880 \text{ nm}$) erzeugt werden und dann in den Quantenpunkt relaxieren oder direkt im Quantenpunkt bei der Resonanzwellenlänge λ_{QD} des strahlenden Übergangs.

länge an der Emissionswellenlänge des Quantenpunktes liegt, desto geringer wird die Linienbreite des Übergangs und desto weniger Hintergrundemission entsteht durch Exzitonenrekombination im GaAs und der Benetzungsschicht. Auf der anderen Seite hat man im Experiment große Probleme, den Anregungslaser aus dem Signal zu filtern, wenn er zu nahe an der Emissionsenergie des Quantenpunktes liegt.

2.2.2 Exzitonen, Biexzitonen und Trionen

In fast allen Fällen, in denen die Kopplung zwischen Quantenpunktemittern und optischen Kavitäten eine Rolle spielt, ist es vollkommen ausreichend, den Quantenpunkt als einfaches, dipolartiges Zwei-Niveau-System zu betrachten. Das heißt allerdings nicht, dass man bei einem Quantenpunkt nur eine einzelne Emissionslinie beobachtet. Neben den Exzitonen (X) kann es bei höheren Anregungsleistungen auch vorkommen, dass sich zwei Exzitonen im gleichen Quantenpunkt befinden. Diesen Zustand nennt man dann Biexziton (XX). Unter bestimmten Voraussetzungen können die Photonen aus Exziton- und Biexzitonzerfall miteinander quantenmechanisch verschränkt sein [30, 31]. Es kann aber auch ein Elektronen- oder Lochüberschuss im Quantenpunkt vorherrschen. Diese geladenen Exzitonen nennt man Trionen (X^- , X^+). Zusätzlich gibt es auch für Exzitonen höhere angeregte Zustände. Diesen schreibt man s-, p- und d-Schalen zu [40, 41].

Von Bedeutung sind meist jedoch nur Exzitonen, Biexzitonen und Trionen. Während Exziton und Biexziton eigentlich im Spektrum jedes Quantenpunktes sichtbar sind, hängt das Auftreten von geladenen Exzitonen sehr von seinem elektrischen Umfeld ab. So kann beispielsweise unter lateral angelegtem elektrischen Feld das Auftreten von Emissionslinien beobachtet werden, die höchstwahrscheinlich Trionen zuzuschreiben sind (vgl. Abs. 4.2). Exziton und Biexziton können im Spektrum recht einfach voneinander unterschieden werden. Misst man die Intensität I_X bzw. I_{XX} der Emissionslinien von Exziton und Biexziton in Abhängigkeit der Anregungsleistung I_{Laser} , folgen beide unterschiedlichen Abhängigkeiten [42]. In einem vereinfachten Modell kann man sich überlegen, dass die Erzeugung von Exzitonen im GaAs oder der Benetzungsschicht proportional zur Anregungsleistung sein sollte. Entsprechend ist auch die Wahrscheinlichkeit ρ_X , dass sich ein Exziton in einem Quantenpunkt befindet, proportional zur Anregungsleistung. Zur Erzeugung eines Biexzitons müssen sich jedoch zwei Exzitonen gleichzeitig in einem Quantenpunkt befinden. Unter Vernachlässigung aller Wechselwirkungen der Exzitonen untereinander ist die Wahrscheinlichkeit $\rho_{XX} = \rho_X^2$ für dieses Aufeinandertreffen gerade das Quadrat der Wahrscheinlichkeit ρ_X , dass nur ein Exziton den Quantenpunkt besetzt. In Abhängigkeit der Anregungsleistung I_{Laser} lässt sich also schreiben:

$$I_X \propto I_{\text{Laser}} \quad (2.12)$$

$$I_{XX} \propto I_{\text{Laser}}^2 \quad (2.13)$$

Durch doppellogarithmische Auftragung der Photolumineszenzintensität über die Anregungsleistung lässt sich also aus der Steigung direkt die Exzitonen-spezies ablesen. Bei höheren Anregungsleistungen geht allerdings zuerst die Exziton- und dann die Biexzitonlinie in Sättigung.

2.3 Nicht-klassisches Licht

Bei der Beschreibung der Kopplung zwischen Emittlern und optischen Moden in den Abschnitten 2.1.3 und 2.1.4 wurde implizit vorausgesetzt, dass das elektromagnetische Strahlungsfeld quantisiert ist. In der klassischen Optik ist dies jedoch nicht der Fall. Hier wird Licht durch seine Wellenlänge, Polarisation, Amplitude und Phase vollständig beschrieben. Im Folgenden wird als Vorbereitung auf Kap. 6, in dem die Herstellung von Einzelphotonenquellen diskutiert wird, der Unterschied zwischen sog. klassischen und nicht-klassischen Lichtquellen gemäß Ref. [43] dargelegt.

2.3.1 Photonenstatistik und Fock-Zustände

In der Quantentheorie wird Licht durch die sog. Fock-Zustände $|n\rangle$, den Eigenzuständen des Photonenzahloperators \hat{n} , beschrieben [43]. Die Fock-Zustände entsprechen optischen Moden, die genau n Photonen beinhalten. Für klassische Lichtquellen kann man jedoch für die Anzahl emittierter Photonen innerhalb eines Zeitintervalls, wie in der Statistik üblich, einen Erwartungswert $\langle n \rangle$ und eine Varianz $(\Delta n)^2$ angeben. Die Varianz wird aus der Verteilungsfunktion $P(n)$ der Photonen bestimmt. Bei klassischen Lichtquellen unterscheidet man zwei Arten:

- **Thermische Lichtquellen** bewegen sich, wie der Name vermuten lässt, im thermischen Gleichgewicht zwischen Absorption und Emission von Lichtquanten. Für ihre Verteilungsfunktion $P(n)$ und Varianz $(\Delta n)^2$ gilt [44]:

$$P(n) = \frac{\langle n \rangle^n}{(1 + \langle n \rangle)^{1+n}}$$

$$(\Delta n)^2 = \langle n \rangle^2 + \langle n \rangle$$

Die größte Wahrscheinlichkeit hat unabhängig vom Erwartungswert $\langle n \rangle$ immer $P(n = 0) = 1/(1 + \langle n \rangle)$.

- **Kohärente Lichtquellen**, deren Paradebeispiel ein Laser ist, der deutlich über seiner Schwelle betrieben wird. Die Emission eines solchen Lasers ist Poisson-verteilt und wird durch die sog. Glauber-Zustände beschrieben [45]:

$$P(n) = e^{-\langle n \rangle} \frac{\langle n \rangle^n}{n!}$$

$$(\Delta n)^2 = \langle n \rangle$$

Mit Ausnahme des trivialen Falles $\langle n \rangle = 0$ haben beide Verteilungsfunktionen nicht verschwindende Varianzen. Dies bedeutet, dass sie nicht durch einen einzelnen Fock-Zustand beschrieben werden können.

2.3.2 Einzelphotonenemission von Quantenpunkten

Betrachtet man nun die Emission einzelner Quantenpunkte, Atome, Moleküle oder anderer Quantenemitter, erhält man Ergebnisse für ihre Photonenstatistik, die von denen klassischer Quellen abweichen. Da ein einzelner strahlender Dipolübergang in der Regel nur ein einzelnes Photon emittieren kann, wird seine Emission durch den Fock-Zustand $|1\rangle$ beschrieben. Im Falle eines Quantenpunktes wäre natürlich die Frage berechtigt, wie man davon sprechen

kann, dass nur einzelne Photonen emittiert werden, wo doch in Abs. 2.2.2 die verschiedenen angeregten Zustände eines Quantenpunktes diskutiert wurden, die alle strahlende Übergänge besitzen. Letztendlich verhält es sich so, dass jeder mögliche strahlende Übergang von den anderen spektral getrennt ist. Das bedeutet, dass jede Emissionslinie für sich durch einen Fock-Zustand beschrieben werden kann. Trennt man nun eine dieser Emissionslinien spektral, filtert man einen dieser Fock-Zustände heraus.

In der Theorie mag der Unterschied zwischen klassischem und nicht-klassischem Licht offensichtlich sein. Die Aufgabe eines Experimentators ist es nun aber, nachzuweisen, dass eine Quelle tatsächlich nicht-klassisches Licht emittiert. Dies kann durch Messung der zeitlichen Korrelationsfunktion zweiter Ordnung geschehen, die im nächsten Abschnitt diskutiert wird.

2.3.3 Korrelationsfunktion 2. Ordnung $g^{(2)}(\tau)$

Zeitliche Autokorrelationsfunktionen der Emission einer Quelle geben Auskunft über ihre Statistik. Von experimenteller Bedeutung sind die Korrelationsfunktionen $g^{(1)}(\tau)$ und $g^{(2)}(\tau)$ erster bzw. zweiter Ordnung, die wie folgt definiert sind [43]:

$$g^{(1)}(\tau) = \frac{\langle \hat{a}^\dagger(t)\hat{a}(t+\tau) \rangle}{\langle \hat{a}^\dagger(t)\hat{a}(t) \rangle}$$

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle \hat{a}^\dagger(t)\hat{a}^\dagger(t+\tau)\hat{a}(t+\tau)\hat{a}(t) \rangle}{\langle \hat{a}^\dagger(t)\hat{a}(t) \rangle^2}$$

Dabei sind $\hat{a}(t)$ und $\hat{a}^\dagger(t)$ die Photonenvernichtungs- und Photonenerzeugungsoperatoren. Die Korrelationsfunktion 1. Ordnung $g^{(1)}(\tau)$ kann mit einem Michelson-Interferometer gemessen werden und gibt die Kohärenz des Signals wieder. Die Korrelationsfunktion 2. Ordnung $g^{(2)}(\tau)$ wird durch ein *Hanbury-Brown & Twiss*-Setup experimentell bestimmt (vgl. Abs. 6.5.1). Um zwischen der Natur von Lichtquellen zu unterscheiden, ist vor allem die Korrelation 2. Ordnung von Bedeutung. Bei einer Zeitverzögerung $\tau = 0$ der Autokorrelation gilt für die verschiedenen Lichtquellen [43]:

- **Thermische Lichtquelle:**

$$g^{(2)}(0) = 2$$

- **Glauber-Zustand (Laser):**

$$g^{(2)}(0) = 1$$

- **Fock-Zustand** $|n\rangle$:

$$g^{(2)}(0) = 1 - \frac{1}{n}$$

Für eine Einzelphotonenquelle, also den Fock-Zustand $n = 1$ erhält man so $g^{(2)}(0) = 0$. Bei einer experimentellen Messung beweist allerdings schon $g^{(2)}(0) < 0,5$, dass mindestens eine Einzelphotonenquelle zum Signal beiträgt, da für zwei Photonen $g^{(2)}(0) \geq 0,5$ gelten muss.

3 Simulationen nasschemischer Ätzprozesse und optischer Eigenschaften

Im folgenden Kapitel werden zwei Simulationstechniken vorgestellt, die in dieser Arbeit verwendet und größtenteils auch entwickelt wurden. Es wird zunächst ein Algorithmus zur Simulation des anisotropen Ätzverhaltens von Kristallen mit Zinkblendestruktur dargelegt, der für eine bessere Vorhersage der Ergebnisse nasschemischer Ätzprozesse eingesetzt wurde. Daraufhin wird ein FDTD-Algorithmus (*engl.* FDTD \rightarrow *Finite Difference Time Domain*) vorgestellt, der anders als üblich die Wechselwirkung eines Emitters mit dem elektromagnetischen Strahlungsfeld berücksichtigt und so auch schwache wie starke Kopplung zwischen Emitter und optischen Moden erfasst.

3.1 Ätzsimulation in Kristallen mit Zinkblendestruktur

Das nasschemische Ätzverhalten von Kristallen scheint auf den ersten Blick ein Mysterium zu sein. Wer erwartet, durch das Ätzen ein exaktes Abbild einer Ätzmaske in den Kristall zu überführen, kann schnell eines Besseren belehrt werden. Durch die unterschiedlichen chemischen Eigenschaften verschieden orientierter Kristalloberflächen ist ein isotropes Ätzen kaum möglich. So bilden sich schnell abstrakte dreidimensionale Gebilde, in denen bestimmte Kristallebenen bevorzugt hervortreten. Um bessere Vorhersagen über das Ätzverhalten und die prinzipiellen Strukturierungsmöglichkeiten zu haben, wurde daher eine Simulationssoftware entwickelt, die die Symmetrie der Zinkblendestruktur widerspiegelt. In der vorangegangenen Dissertation von Matthias Karl [46] wurde schon eine *Monte Carlo*-Simulation eingesetzt, mit der die Entstehung von Pyramiden beim Ätzen von Heterostrukturen demonstriert werden konnte. Allerdings ist bei diesem Ansatz die Anisotropie des Kristalls noch nicht berücksichtigt worden. Auch in der Literatur konnte kein brauchbarer, flexibler Ansatz für diese Problemstellung gefunden werden. Im Folgenden wird nun das Prinzip der, in dieser Arbeit entwickelten, Software und der Vergleich des anisotropen Ätzverhaltens mit dem Experiment beschrieben. Im Verlauf dieser Arbeit werden dann weitere Simulationsergebnisse für die jeweilig diskutierten Strukturen vorgestellt (Abs. 6.4.3 und 6.6).

3.1.1 Quasi-atomistische Implementierung der Zinkblendesymmetrie

In einem Kristall mit Zinkblendestruktur wie GaAs, AlAs, InAs, u.v.m. ist die Kristallsymmetrie durch die tetraedrische Anordnung der Valenzelektronen vorgegeben. Hierbei liegt die Verbindungslinie zwischen zwei Atomen immer parallel zu einer der acht $\langle 111 \rangle$ -Richtungen des Kristalls (vgl. Abb. 3.1). Betrachtet man die Bindungen eines GaAs-Kristalls aus dem Blickwinkel eines Galliumatoms, sind diese entlang der vier $\langle 111 \rangle$ -A-Richtungen $[111]$, $[1\bar{1}\bar{1}]$, $[\bar{1}\bar{1}1]$ und $[\bar{1}1\bar{1}]$ orientiert. Aus Sicht der Arsenatome sind es die vier $\langle 111 \rangle$ -B-Richtungen $[\bar{1}\bar{1}\bar{1}]$, $[11\bar{1}]$, $[1\bar{1}1]$ und $[\bar{1}11]$. Entsprechend unterschiedlich sind die chemischen Eigenschaften der $\{111\}$ -A- und $\{111\}$ -B-Oberflächen [47–50], zumal für die A-Oberflächen nur eine Ga-Bindung, aber drei As-Bindungen aus der Ebene herauszeigen, während für die B-Oberflächen das Gegenteil der Fall ist.

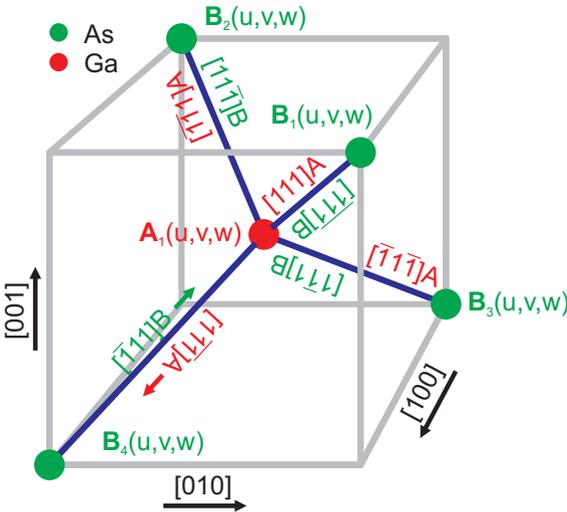


Abbildung 3.1: Orientierung der Bindungen zwischen Gallium- und Arsenatomen in Bezug auf die Kristallachsen, jeweils aus Sicht des Ga-Atoms (rot) und des As-Atoms (grün). Die Bindungen sind entlang der Normalen der $\{111\}$ -A- bzw. $\{111\}$ -B-Ebenen orientiert. Das Galliumatom an der Position (u, v, w) des Untergitters A_1 hat vier nächste Nachbarn B_1 , B_2 , B_3 und B_4 .

Anschaulich lässt sich die Zinkblendestruktur als zwei kubisch-flächenzentrierte oder fcc-Kristalle (*engl.* fcc \rightarrow *face centered cubic*) verstehen, die um einen Vektor $\frac{1}{4}(a, a, a)$ gegeneinander verschoben sind (a ist die Gitterkonstante des Kristalls). Dabei bestehen die beiden Untergitter aus jeweils einer Atomsorte. Sind die Atomsorten der beiden Gitter identisch, spricht man von einer Diamantstruktur, die eben z.B. im Diamant oder auch in Silizium vorliegt. Die beiden fcc-Gitter lassen sich jeweils durch vier einfach kubische

Gitter beschreiben, die gegeneinander verschoben sind. Man kann nun die vier Untergitter der Atomsorten A und B mit $\mathbf{A}_i(u, v, w)$ bzw. $\mathbf{B}_i(u, v, w)$ und $i = 1, 2, 3, 4$ bezeichnen. Die Indizes $u, v, w \in \mathbb{Z}$ beschreiben wie üblich die Gitterpunkte, die um ganzzahlige Vielfache u, v, w der drei Basisvektoren $\vec{a}, \vec{b}, \vec{c}$ des Gitters zum Ursprung des jeweiligen Untergitters verschoben sind. Für die Position des Ursprungs der Untergitter im Kristall lassen sich beliebig viele mögliche Kombinationen finden. Da man natürlich eine möglichst einfache Kombination bevorzugt, wurde der Ursprung der jeweiligen Untergitter an die Koordinaten im Kristall gemäß Tab. 3.2 gelegt.

Die vier nächsten Nachbarn eines Atoms lassen sich dann gemäß Tab. 3.3 eindeutig zuordnen (vgl. Abb. 3.1).

3.1.2 Ansatz zur Fortpflanzung der Ätzfront

Ätzen ist streng genommen ein binärer Vorgang, d.h. ein Atom ist zu einem Zeitpunkt t aus dem Kristallverbund herausgelöst oder nicht. Da der Zeitpunkt, an dem ein Atom aus dem Kristallverbund gelöst wird, allerdings nur mit einer bestimmten Wahrscheinlichkeit statistisch vorgegeben werden kann, ist es sinnvoll, eine Wahrscheinlichkeit $\rho_{A_k}(u, v, w, t)$ zu definieren, dass sich ein Element des Untergitters \mathbf{A}_k noch an der Stelle (u, v, w) dieses Untergitters befindet. Ob ein Atom zu einer bestimmten Zeit t geätzt wird, hängt im Wesentlichen davon ab, wie viele seiner Bindungspartner sich noch im Kristallverbund befinden; oder anders ausgedrückt, ob sich das Atom an einer Oberfläche befindet. Mit den Bindungspartnern aus Tab. 3.3 ließe sich dann für ein isotropes Ätzverhalten eine Art Mastergleichung definieren:

$$\frac{d}{dt} \rho_{A_k}(u, v, w, t) = -r_A \rho_{A_k}(u, v, w, t) \times \sum_{i=0}^4 \bar{\varrho}_{A_k, i}(u, v, w, t) \quad (3.1)$$

Hierbei stehen r_A für die Ätzrate der Atomsorte A und die $\bar{\varrho}_{A_k, i}(u, v, w, t)$ für die Besetzungswahrscheinlichkeiten der vier nächsten Nachbarn eines Atoms des Untergitters \mathbf{A}_k . Der Strich über $\bar{\varrho}$ bedeutet die Negierung der Wahrscheinlichkeit, also $\bar{\varrho} = 1 - \varrho$.

Bei genauerer Betrachtung ereilt einen jedoch schnell die Erkenntnis, dass Gl. 3.1 wenig mit der tatsächlichen Kinetik der beteiligten chemischen Reaktionen gemein haben dürfte. Schließlich unterscheidet sie, um ein Beispiel zu geben, nicht zwischen den Fällen, dass ein Bindungspartner fehlt oder dass alle Bindungspartner mit einer Wahrscheinlichkeit von 25% fehlen. Ohne Bindungspartner ist ein Atom natürlich kein Teil des Kristalls mehr. In diesem Fall wäre also das betrachtete Atom mit 25% Wahrscheinlichkeit selbst nicht mehr im Kristallverbund. Dahingegen gibt es a priori keinen zwingenden

Grund zur Annahme, dass bei nur einem fehlenden Bindungspartner überhaupt eine nennenswerte Ätzrate vorhanden ist. Sinnvoller erscheint es hier nicht über die Wahrscheinlichkeiten für fehlende Bindungen zu mitteln, sondern die Wahrscheinlichkeiten $\bar{\xi}_{\mathbf{A}_k, n}$ bzw. $\bar{\xi}_{\mathbf{B}_k, n}$ für das Fehlen von n Bindungspartnern ($n = 0, 1, 2, 3, 4$) des Typs A bzw. B mit den entsprechenden Ätzraten $r_{A, n}$ bzw. $r_{B, n}$ zu mitteln. Die Mastergleichung lässt sich dann präziser formulieren:

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \rho_{\mathbf{A}_k}(t) &= -\rho_{\mathbf{A}_k}(t) \times \sum_{n=0}^4 r_{A, n} \bar{\xi}_{\mathbf{A}_k, n}(t) & (3.2) \\ \bar{\xi}_{\mathbf{A}_k, 0}(t) &= \prod_{i=1}^4 \varrho_{\mathbf{A}_k, i}(t) \\ \bar{\xi}_{\mathbf{A}_k, 1}(t) &= \sum_{i=1}^4 \left(\frac{\bar{\varrho}_{\mathbf{A}_k, i}(t)}{\varrho_{\mathbf{A}_k, i}(t)} \times \prod_{j=1}^4 \varrho_{\mathbf{A}_k, j}(t) \right) \\ \bar{\xi}_{\mathbf{A}_k, 2}(t) &= 1 - \bar{\xi}_{\mathbf{A}_k, 0}(t) - \bar{\xi}_{\mathbf{A}_k, 1}(t) - \bar{\xi}_{\mathbf{A}_k, 3}(t) - \bar{\xi}_{\mathbf{A}_k, 4}(t) \\ \bar{\xi}_{\mathbf{A}_k, 3}(t) &= \sum_{i=1}^4 \left(\frac{\varrho_{\mathbf{A}_k, i}(t)}{\bar{\varrho}_{\mathbf{A}_k, i}(t)} \times \prod_{j=1}^4 \bar{\varrho}_{\mathbf{A}_k, j}(t) \right) \\ \bar{\xi}_{\mathbf{A}_k, 4}(t) &= \prod_{i=1}^4 \bar{\varrho}_{\mathbf{A}_k, i}(t) \end{aligned}$$

Letzteres gilt ebenso bei Austauschen von A mit B .

3.1.3 Diskretisierung des Problems

Eine Simulation des Ätzvorgangs auf atomarer Basis ist für größere Strukturen nicht möglich, aber wohl auch kaum vonnöten, solange man mit einer ausreichenden Zahl finiter Elemente arbeitet. Es genügt, den Kristall durch eine bestimmte Zahl von Elementen zu beschreiben, die in den acht dreidimensionalen Matrizen, wie in Abs. 3.1.1 eingeführt, angeordnet sind. Die Elemente sitzen dann nicht mehr auf den Gitterplätzen der Atome, sondern in einem Abstand Δx zueinander. Die Symmetrie der Zinkblendestruktur bleibt durch die Verknüpfung zu den Bindungspartnern gemäß Tab. 3.3 erhalten. Mit Hilfe von Gl. 3.2 lassen sich dann im Wechsel die zeitlichen Entwicklun-

gen der Untergitter \mathbf{A}_k und \mathbf{B}_k berechnen. Es gilt:

$$\rho_{\mathbf{A}_k}(t + \Delta t/2) = \rho_{\mathbf{A}_k}(t - \Delta t/2) \left(1 - \Delta t \cdot \sum_{n=0}^4 \frac{r_{A,n}}{\Delta x} \bar{\xi}_{\mathbf{A}_k,n}(t) \right) \quad (3.3)$$

$$\rho_{\mathbf{B}_k}(t + \Delta t) = \rho_{\mathbf{B}_k}(t) \left(1 - \Delta t \cdot \sum_{n=0}^4 \frac{r_{B,n}}{\Delta x} \bar{\xi}_{\mathbf{B}_k,n}(t + \Delta t/2) \right) \quad (3.4)$$

Die Ätzzraten r werden hier in Einheiten einer Geschwindigkeit angegeben, um einen Bezug zur räumlichen Dimension zu bekommen. Die Stabilitätsbedingung für diese Diskretisierung lässt sich einfach durch die Beschränkung der relativen Änderung der Wahrscheinlichkeiten $\Delta\rho(t)/\rho(t) \leq 1$ herleiten. Daraus erhält man eine Bedingung für den maximal möglichen Zeitschritt Δt_{\max} :

$$\Delta t_{\max} = \frac{\Delta x}{\max\{r_{A,n}, r_{B,n}\}} \quad (3.5)$$

In der Praxis wurden die Ätzzraten $r_{A,4}$ und $r_{B,4}$ für den Fall, dass alle Bindungspartner fehlen, so gewählt, dass $\Delta\rho(t)/\rho(t) = 1$ galt und entsprechend die Raten $r_{A,0}$ und $r_{B,0}$ gleich null gesetzt. Da mit Sicherheit $r_n > r_m$ für $n > m$ gelten muss, wurde der Zeitschritt Δt durch

$$\Delta t = \gamma \frac{\Delta x}{\max\{r_{A,3}, r_{B,3}\}}, \quad 0 < \gamma < 1 \quad (3.6)$$

berechnet.

Um auch das Ätzen von Heterostrukturen simulieren zu können, wurden die Ätzzraten zudem in Abhängigkeit der z -Koordinate oder diskret ausgedrückt des w -Indizes variiert. Die Ätzmaste wurde in die obersten Ebenen $\rho_{\mathbf{B}_1}(u, v, 0)$ und $\rho_{\mathbf{B}_2}(u, v, 0)$ der Untergitter \mathbf{B}_1 und \mathbf{B}_2 geschrieben und über die Simulationszeit nicht variiert. Die räumliche Schrittweite Δx musste entsprechend der kleinsten Details, die aufgelöst werden sollten, gewählt werden.

3.1.4 Vergleich der Anisotropie in Simulation und Experiment

Es ist klar, dass mit einem solchen doch eher einfachen Ansatz, der nicht wirklich die Reaktivität von Oberflächen und deren freie Energien berücksichtigt, nicht die ganze Komplexität des anisotropen Ätzverhaltens in einem Zinkblendekristall reproduziert werden kann. Auch die Vernachlässigung von Diffusionsmechanismen wird zu Abweichungen zum Experiment führen. Da man aber durch die Wahl der Ätzzraten anhand der fehlenden Bindungspartner insbesondere in den $\{111\}$ -Richtungen eine gewisse Anisotropie vorgeben

kann, zeigt sich in den Simulationen, dass wesentliche Eigenschaften des Ätzmechanismus reproduziert werden können. Dazu ist in Abb. 3.2 ein Vergleich zwischen einer in GaAs anisotrop geätzten Mesa und der entsprechenden Simulation dargestellt. Wie zu sehen ist, werden die hauptsächlichen Merkmale des anisotropen Ätzens qualitativ sehr gut wiedergegeben. Die Ätzraten $r_{A,n}$ und $r_{B,n}$ wurden im Wesentlichen durch visuellen Vergleich der Simulationsergebnisse zu den realen Strukturen bestimmt und sind für die in Abb. 3.2 gezeigten Simulationsergebnisse in Tab. 3.1 aufgelistet.

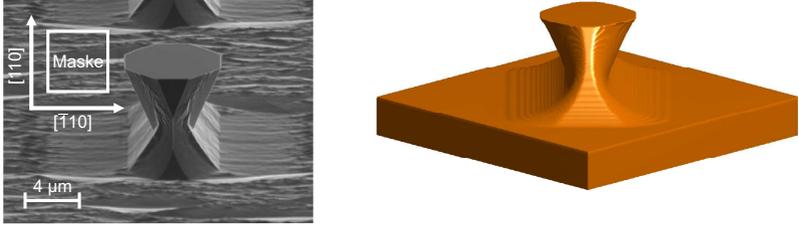


Abbildung 3.2: Elektronenmikroskopische Aufnahme einer Mesa (Probe *WTE05*), die mit der *Zitronensäureätze 5:1* (s. Anh. A.1) in ein GaAs-Substrat geätzt wurde (links) und Simulation des anisotropen Ätzverhaltens (rechts). In den Simulationen werden die Merkmale des anisotropen Ätzens qualitativ gut reproduziert. Die Ätzraten, die für die Simulation verwendet wurden, sind in Tab. 3.1 aufgelistet.

Ätzrate	$r_{A,1}$	$r_{A,2}$	$r_{A,3}$	$r_{B,1}$	$r_{B,2}$	$r_{B,3}$
Wert	0,001	1,2	2,0	0,1	0,2	0,2

Tabelle 3.1: Ätzraten, die für die Simulation in Abb. 3.2 gewählt wurden.

Gitter	\mathbf{A}_1	\mathbf{A}_2	\mathbf{A}_3	\mathbf{A}_4	\mathbf{B}_1	\mathbf{B}_2	\mathbf{B}_3	\mathbf{B}_4
Ursprung	$\begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} \frac{1}{2} \\ \frac{1}{2} \\ 0 \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} \frac{1}{2} \\ 0 \\ -\frac{1}{2} \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} 0 \\ \frac{1}{2} \\ -\frac{1}{2} \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} \frac{1}{4} \\ \frac{1}{4} \\ \frac{1}{4} \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} -\frac{1}{4} \\ -\frac{1}{4} \\ \frac{1}{4} \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} -\frac{1}{4} \\ \frac{1}{4} \\ \frac{1}{4} \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} \frac{1}{4} \\ -\frac{1}{4} \\ -\frac{1}{4} \end{pmatrix}$

Tabelle 3.2: Koordinaten des Ursprungs der verschiedenen Simulationsuntergitter.

Nächste Nachbarn	
\mathbf{A}_1	$\mathbf{B}_1(u, v, w)$
\mathbf{A}_2	$\mathbf{B}_2(u, v, w)$
\mathbf{A}_3	$\mathbf{B}_3(u, v, w)$
\mathbf{A}_4	$\mathbf{B}_4(u, v, w)$
\mathbf{B}_1	$\mathbf{A}_1(u, v, w)$
\mathbf{B}_2	$\mathbf{A}_2(u, v, w)$
\mathbf{B}_3	$\mathbf{A}_3(u, v, w)$
\mathbf{B}_4	$\mathbf{A}_4(u, v, w)$

 Tabelle 3.3: Nächste Nachbarn eines Elements an der Stelle (u, v, w) eines Untergitters.

3.2 Elektromagnetische FDTD-Simulationen

Der Herstellung optischer Bauelemente geht häufig eine längere Phase der Designoptimierung voraus. Hierbei ist es hilfreich, die optischen Eigenschaften des Bauelements mithilfe elektromagnetischer Simulationen vorherzusagen, um groben Designfehlern von Anfang an aus dem Weg zu gehen. Die Simulationsprogramme sind darauf ausgelegt, die makroskopischen Maxwell-Gleichungen für eine beliebige räumliche Variation der materialabhängigen Parameter zu lösen. Insbesondere ist hier meist die räumliche Änderung des Brechungsindex n bzw. der Permittivität ϵ von Interesse. Die Ansätze zur Lösung der Maxwell-Gleichungen lassen sich grob in zwei Gruppen unterteilen: (i) Die Lösung der zeitabhängigen Maxwell-Gleichungen und (ii) die Lösung der zeitharmonischen¹ Gleichungen. Die etabliertesten Ansätze sind dabei FDTD-Methoden (*engl.* FDTD \rightarrow *Finite Difference Time Domain*) zur Lösung des zeitabhängigen Problems und FEM-Simulationen (*engl.* FEM \rightarrow *Finite Element Methods*) zur Lösung der zeitharmonischen Gleichungen.

Die Wahl der optimalen Simulationsmethode hängt von den jeweiligen Anforderungen ab. Vergleiche und Erläuterungen zu den verschiedenen numerischen Modellen lassen sich beispielsweise in Ref. [51] finden. FEM-Simulationssoftware hat meist eine ausgefeilte Fehleranalyse und ist numerisch sehr stabil. Andererseits können nur monochromatische Probleme behandelt werden. Die Dynamik eines Systems sowie nichtlineare Effekte können mithilfe eines zeitharmonischen Ansatzes i.d.R. nicht simuliert werden. In einer FDTD-Simulation kann eigentlich jede Art von System beschrieben werden, da sie die Maxwell-Gleichungen in ihrer ursprünglichen Form löst. Insbesondere ist die Verwendung von Quellen bei dieser Methode obligatorisch, während das in FEM-Simulation nicht zwangsweise notwendig ist. Eine FDTD-Simulation liefert die zeitliche Entwicklung eines realen physikalischen Systems, dahingegen sind die Lösungen einer FEM-Simulation abstrakterer Natur. Leider gibt es jedoch kaum eine Möglichkeit zur Fehleranalyse während einer FDTD-Simulation.

Da in der vorliegenden Arbeit Simulationen vorwiegend zur Quantifizierung des Abstrahlverhaltens von Quantenpunkten in optischen Mikrokaavitäten genutzt wurden, lag die Verwendung von FDTD-Simulationen nahe. Letztere bieten zudem einen sehr intuitiven Zugang zur Lösung der Maxwell-Gleichungen. Die betrachteten optischen Bauelemente wiesen jedoch häufig eine sehr komplexe Geometrie auf, die sich schwer in die *Black-Box* kommerzieller Software integrieren und parametrisieren ließ. Daher wurde ein eigener FDTD-Algorithmus implementiert, der zudem einfachen Zugang zu den re-

¹Im zeitharmonischen Fall wird die Zeitabhängigkeit des elektromagnetischen Feldes durch den Sinusoid $e^{i\omega t}$ ausgedrückt. Dadurch können zeitliche Ableitungen $\frac{\partial}{\partial t} \rightarrow i\omega$ ersetzt werden.

levanten Größen lieferte. Dieser Algorithmus soll im Folgenden beschrieben werden.

3.2.1 Implementierung des FDTD-Algorithmus

Ein FDTD-Algorithmus ist vergleichsweise einfach zu implementieren. Es gibt hierzu in gedruckter und elektronischer Form ausreichend Tutorien [52–54], die, gewisse Programmierfähigkeiten vorausgesetzt, eine schnelle Fertigstellung des Codes ermöglichen. Ohne auf die Details des FDTD-Ansatzes, insbesondere der besonderen Geometrie der sog. Yee-Zelle [55], einzugehen, werden in diesem Abschnitt die physikalisch relevanten Gleichungen zusammengefasst, wie sie für einen schnellen Überblick Ref. [54] oder einen tieferen Einblick Ref. [52, 53] entnommen werden können.

Die zeitabhängigen makroskopischen Maxwell-Gleichungen lassen sich einfach nach den zeitlichen Ableitungen für das elektrische Feld \mathbf{E} und das magnetische Feld \mathbf{B} auflösen. Man erhält dann:

$$\frac{\partial}{\partial t} \mathbf{E} = \frac{1}{\mu_0 \epsilon_0 \epsilon} \nabla \times \mathbf{B} - \frac{1}{\epsilon_0 \epsilon} \mathbf{j} \quad (3.7)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} \mathbf{B} = -\nabla \times \mathbf{E} \quad (3.8)$$

Über die elektrische Stromdichte \mathbf{j} lässt sich einfach eine Quelle realisieren, indem man z.B. ansetzt: $\mathbf{j}(\mathbf{x}, t) = \mathbf{j}_0 \delta(\mathbf{x} - \mathbf{x}_0) \sin(\omega_0 t)$. Diskretisiert man nun Gl. 3.7 und 3.8, lassen sich \mathbf{E} und \mathbf{B} wie folgt fortpflanzen:

$$\mathbf{E}(\mathbf{x}, t + \Delta t) = \mathbf{E}(\mathbf{x}, t) + \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{E}(\mathbf{x}, t) \Delta t \quad (3.9)$$

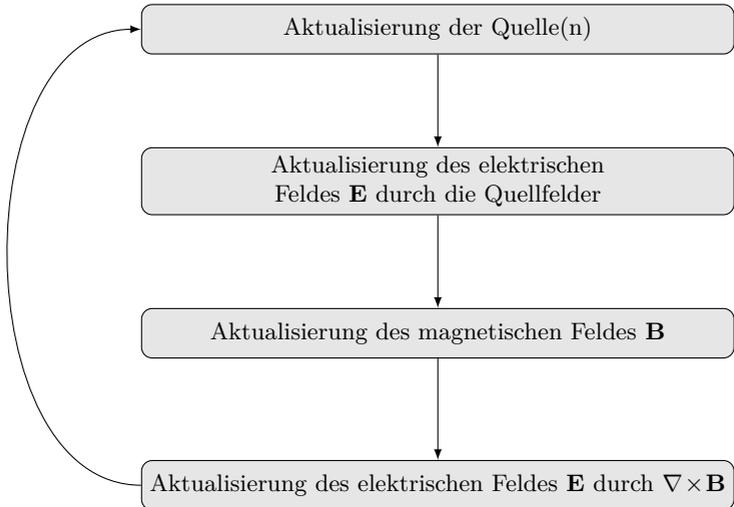
$$\mathbf{B}(\mathbf{x}, t + \Delta t) = \mathbf{B}(\mathbf{x}, t) + \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{B}(\mathbf{x}, t) \Delta t \quad (3.10)$$

Für die Diskretisierung der räumlichen Ableitungen der j -ten Komponente der Vektorfelder \mathbf{E} , \mathbf{B} nach der i -ten Komponente des Ortsvektors \mathbf{x} verwendet man:

$$\frac{\partial}{\partial x_i} E_j(\mathbf{x}, t) = \frac{1}{\Delta x_i} (E_j(\mathbf{x} + \Delta x_i \mathbf{e}_i, t) - E_j(\mathbf{x}, t)) \quad (3.11)$$

$$\frac{\partial}{\partial x_i} B_j(\mathbf{x}, t) = \frac{1}{\Delta x_i} (B_j(\mathbf{x}, t) - B_j(\mathbf{x} - \Delta x_i \mathbf{e}_i, t)) \quad (3.12)$$

Mit Gl. 3.7–3.12 lässt sich nun die zeitliche Entwicklung der elektromagnetischen Felder beschreiben. Die Berechnung folgt dem im Folgenden dargestellten Zyklus:



Damit die Simulation stabil bleibt, d.h. kleine numerische Fehler sich nicht exponentiell fortpflanzen, müssen Kriterien für die räumliche und zeitliche Schrittweite Δx bzw. Δt eingehalten werden. Es sollte dabei $\Delta x < \lambda_0/10$ und $\Delta t \leq 1/\sqrt{3}$ sein, wenn λ_0 der Emissionswellenlänge der Quelle entspricht.

Ein letztes Hindernis zum erfolgreichen Implementieren eines FDTD-Codes stellen die Randbedingungen dar. Diese sind wichtig, da nur in einem begrenzten Gebiet, der sog. *Computational Domain*, simuliert werden kann. Sollen keine metallischen oder periodischen Randbedingungen angenommen werden, muss dafür gesorgt werden, dass die elektrischen Felder zum Rand hin möglichst kontinuierlich exponentiell abfallen, um keine Reflexionen zu verursachen. In der Literatur wird hierfür häufig eine komplexe Permittivität $\epsilon = \epsilon_1 + i\epsilon_2$ an den Rändern eingeführt, was im physikalischen Sinne einem absorbierenden Material, den sog. *Perfectly Matched Layers*, entspricht [56]. Da in dem hier implementierten Code jedoch keine komplexen Felder eingesetzt wurden, wurden die Felder einfach zu den Rändern hin bei jedem Simulationszyklus leicht gedämpft, was etwas rudimentärer ist, seinen Zweck aber zu Genüge erfüllte.

3.2.2 Kopplung der Quelle an das Strahlungsfeld

Gewöhnlich wird der Quellstrom $\mathbf{j}(\mathbf{x}, t)$ durch eine feste Funktion der Zeit vorgegeben. Mögliche Kopplungseffekte mit dem elektromagnetischen Feld werden dann anhand der Feldüberhöhung am Ort der Quelle mit analytischen Methoden abgeschätzt. Da jedoch die schwache Kopplung zwischen Emit-

ter und Resonatormode insbesondere beim Design von Einzelphotonenquellen immer eine wichtige Rolle spielt, wäre es auch interessant, die Rückkopplung des elektromagnetischen Feldes auf die Strahlungsquelle direkt zu berücksichtigen. Streng genommen divergiert das elektrische Feld am Ort $\mathbf{x}_{\text{Quelle}}$ der Quelle natürlich, da das von einer Punktladung ausgehende Feld am Ort \mathbf{x} über $\mathbf{E}_{\text{Quelle}} = \frac{q}{4\pi\epsilon_0\epsilon} \frac{\mathbf{x}_{\text{Quelle}} - \mathbf{x}}{|\mathbf{x}_{\text{Quelle}} - \mathbf{x}|^3}$ gegeben ist. Andererseits stellt sich dieses Problem in einem diskretisierten Raum nicht. Da bei einer FDTD-Simulation die Quellströme wie bei einem Hertzschen Dipol punktförmig angenommen werden, wird durch die Quelle nur an einem Punkt des Simulationsgitters ein finites elektrisches Feld $\mathbf{E}_{\text{Quelle}}$ erzeugt. Daher sollte es möglich sein, die Rückkopplung des elektromagnetischen Feldes auf eine Quelle durch die Lorentzkraft $\mathbf{F} = q(\mathbf{E}(\mathbf{x}_{\text{Quelle}}) + \mathbf{v} \times \mathbf{B}(\mathbf{x}_{\text{Quelle}}))$ zu beschreiben.

Um nun einen harmonisch oszillierenden Dipol zu simulieren, wurde eine Hilfsdifferentialgleichung für den Quellstrom \mathbf{j} verwendet. In der Literatur wird für diese Differentialgleichungen die englische Bezeichnung *Auxiliary Differential Equation* oder kurz ADE verwendet. Sie wurden allerdings nicht zur Beschreibungen der Rückkopplung auf eine Quelle, sondern für die Beschreibung von Metallen mithilfe des Lorentz-Drude-Modells verwendet [57]. Um die Quelle an das Strahlungsfeld zu koppeln, wurde der Quellstrom $\mathbf{j}_{\text{Quelle}} = q\mathbf{v}_{\text{Quelle}}$ durch einen gedämpften harmonischen Oszillator beschrieben. Setzt man $q = 1$, was effektiv einer Normierung der abgestrahlten Leistung entspricht, folgt der Quellstrom $\mathbf{j}_{\text{Quelle}}$ den Differentialgleichungen:

$$\frac{\partial \mathbf{p}_{\text{Quelle}}(t)}{\partial t} = \mathbf{j}_{\text{Quelle}}(t) \quad (3.13)$$

$$\frac{\partial \mathbf{j}_{\text{Quelle}}(t)}{\partial t} = -\omega_{\text{Quelle}}^2 \mathbf{p}_{\text{Quelle}}(t) + \hat{\kappa}(\mathbf{E}(\mathbf{x}_{\text{Quelle}}, t) + \mathbf{j}_{\text{Quelle}}(t) \times \mathbf{B}(\mathbf{x}_{\text{Quelle}}, t)) \quad (3.14)$$

$\mathbf{p}_{\text{Quelle}}(t)$ ist das Dipolmoment der Quelle, der Tensor $\hat{\kappa}$ die Kopplungsstärke zwischen Dipol und Strahlungsfeld. Wählt man nun Anfangsbedingungen für $\mathbf{p}_{\text{Quelle}}(0)$ und $\mathbf{j}_{\text{Quelle}}(0)$, können Dipolmoment und Quellstrom von Simulationsschritt zu Simulationsschritt fortgepflanzt werden:

$$\mathbf{p}_{\text{Quelle}}(t + \Delta t) = \mathbf{p}_{\text{Quelle}}(t) + \mathbf{j}_{\text{Quelle}}(t) \Delta t \quad (3.15)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{j}_{\text{Quelle}}(t + \Delta t) = & \mathbf{j}_{\text{Quelle}}(t) - \omega_{\text{Quelle}}^2 \mathbf{p}_{\text{Quelle}}(t) \Delta t + \\ & \hat{\kappa}(\mathbf{E}(\mathbf{x}_{\text{Quelle}}, t) + \mathbf{j}_{\text{Quelle}}(t) \times \mathbf{B}(\mathbf{x}_{\text{Quelle}}, t)) \Delta t \end{aligned} \quad (3.16)$$

Der Quantisierung im FDTD-Algorithmus und der Verwendung der Yee-Zelle ist es allerdings zusätzlich geschuldet, dass das elektrische Feld nicht nur an einem Punkt im Simulationsgitter, sondern in einer etwas komplexeren Anordnung von \mathbf{E} - und \mathbf{B} -Feld erzeugt werden muss. Befindet sich die Quelle

an einem Punkt (i, j, k) des Simulationsgitters, setzt sich das elektrische Feld $\mathbf{E}_{\text{Quelle}}$ der Stromquelle aus folgenden Komponenten zusammen:

$$\mathbf{E}_{\text{Quelle}} = \begin{pmatrix} E_x(i, j, k) + E_x(i - 1, j, k) \\ E_y(i, j, k) + E_y(i, j - 1, k) \\ E_z(i, j, k) + E_z(i, j, k - 1) \end{pmatrix}$$

Für die Rückkopplung auf die Quelle werden dieselben Komponenten des elektrischen Feldes verwendet. Um die Wirkung des magnetischen Feldes $\mathbf{B}_{\text{Quelle}}$ zu berücksichtigen, wird ebenfalls die Summe aus jeweils zwei Positionen des Simulationsgitters benötigt:

$$\mathbf{B}_{\text{Quelle}} = \begin{pmatrix} B_x(i, j, k - 1) + B_x(i, j - 1, k) \\ B_y(i, j, k - 1) + B_y(i - 1, j, k) \\ B_z(i, j - 1, k) + B_z(i - 1, j, k) \end{pmatrix}$$

Diese Definitionen wurden nicht theoretisch hergeleitet, sondern sozusagen experimentell bestimmt. Sie dienen dazu, zu verhindern, dass an der Quelle im Vakuum elektrische Felder, die orthogonal, bzw. magnetische Felder, die parallel zum Quellstrom verlaufen, entstehen.

Durch die Kopplung an das elektromagnetische Strahlungsfeld gemäß Gl. 3.14 sollte die im Dipol der Quelle gespeicherte Energie einen mit der Zeit exponentiell abfallenden Verlauf nehmen. Dass dies in der Tat der Fall ist, wird in Abb. 3.3 (grüne Linie) demonstriert. Im selben Schaubild, ist auch zu sehen, was passiert, wenn man die Quelle in einer optischen Kavität platziert. Ist die Quelle in Resonanz mit der Kavität, wird die Dämpfung der Oszillation verstärkt (gelbe und rote Linie), ist sie außerhalb der Resonanz, wird die Dämpfung verzögert (magentafarbene Linie). Schlussendlich ist in Form der Ergebnisse in Abb. 3.3 eine direkte Simulation des Purcell-Effekts gelungen. Hier sei noch einmal erwähnt, dass die Dämpfung der Dipoloszillation nur durch die Wechselwirkung mit dem eigenen Strahlungsfeld durch die Lorentzkraft geschieht.

3.2.3 Starke und nicht-resonante Kopplung zwischen Emitter und optischer Mode

Neben der Simulation des Purcell-Effekts durch die Kopplung der Emitterstromquelle an das elektromagnetische Strahlungsfeld sollte es auch möglich sein, dass der Emitter einen Teil seiner Strahlungsleistung in eine optische Mode hoher Güte koppelt, auch wenn er nicht exakt in Resonanz mit ihr ist. Wenn es auch im ersten Moment sehr ambitioniert klingen mag, kann es prinzipiell sogar möglich sein, eine starke Kopplung zwischen dem Emitter und der optischen Mode zu erreichen.

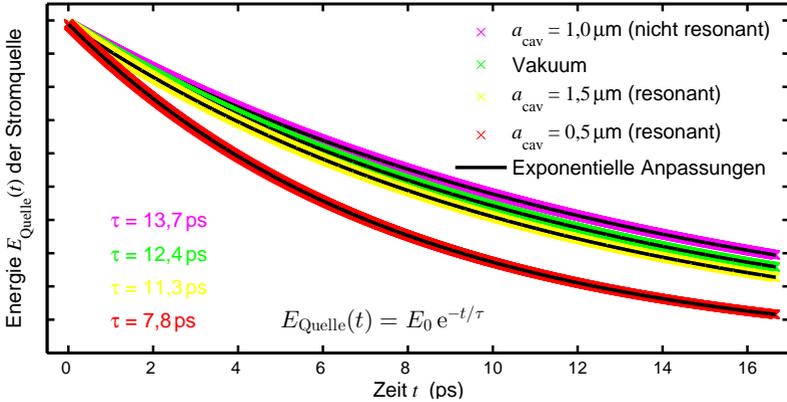


Abbildung 3.3: Zeitlicher Verlauf der in einer Dipolquelle mit Resonanzwellenlänge $\lambda_{\text{Quelle}} = 1 \mu\text{m}$ gespeicherten Energie $E_{\text{Quelle}}(t)$. Befindet sich die Quelle in einer resonanten Kavität (gelb/rot), wird die Relaxationszeit τ im Vergleich zum Vakuum (grün) durch den Purcell-Effekt verkürzt. In einer nicht-resonanten Kavität (magenta) wird sie hingegen verlängert. Die Kavität besteht aus einem Würfel mit Kantenlänge a_{cav} , dessen Außenwände eine Reflektivität von 60% aufweisen. Der Queldipol wurde im Zentrum des Würfels positioniert und in z -Richtung polarisiert mit einer Dämpfung $\kappa_z = 10^{-5}$.

Um zu überprüfen, ob diese Effekte tatsächlich in einer Simulation beobachtet werden können, wurde der Emittor in einer kubischen Kavität platziert, deren Außenwände einem idealen elektrischen Leiter entsprechen, jedoch ein 100 000stel der einfallenden optischen Leistung absorbieren. Wie bei der Simulation des Purcell-Effekts (Abb. 3.3) wurde auch hier der Dipolemittor in z -Richtung polarisiert. Um die Simulationszeit kurz zu halten, wurde allerdings die Kopplungskonstante κ_z von 10^{-5} auf 10^{-4} erhöht. Dies hat simulationsbedingt den kleinen Nebeneffekt, dass sich die Emissionswellenlänge des Emittors im Spektrum um etwa 1% gegenüber dem vorgegebenen Wert verschiebt. Die Emittorwellenlänge λ_{Emittor} wurde dann so variiert, dass sie die Resonanzwellenlänge der Kavitätsmode kreuzt.

Im Spektrum des elektromagnetischen Feldes in der Kavität, welches in Abb. 3.4 illustriert wird, ist gut zu erkennen, wie der Emittor bei Annäherung seiner Emissionswellenlänge an die Resonanz der Kavität zunehmend mehr optische Leistung in die Kavitätsmode abstrahlt. Noch interessanter ist jedoch das auftretende *Anti-Crossing* der spektralen Linien, wenn die Wellenlänge des Emittors in Resonanz mit der Kavitätsmode ist. Dies ist ein eindeutiges Indiz für ein stark gekoppeltes System.

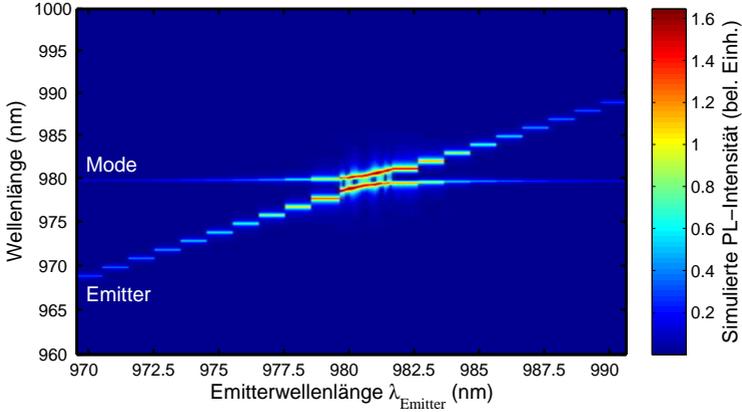


Abbildung 3.4: Simulation der starken und der nicht-resonanten Kopplung eines Emitters und einer Kavitätsmode. Bei Annäherung der Emitterwellenlänge an die Resonanzwellenlänge der Kavität ist deutlich das charakteristische *Anti-Crossing* der spektralen Linien durch die starke Kopplung zu erkennen. In diesem Bereich wurde für eine bessere Auflösung die Emitterwellenlänge in kleineren Schritten variiert. Die kubische Kavität hat eine Kantenlänge von 717,4 nm und Brechungsindex 1. Durch die recht hohe Kopplungskonstante $\kappa_z = 10^{-4}$ des in z -Richtung polarisierten Dipolemitters zum elektromagnetischen Strahlungsfeld (vgl. Gl. 3.14) ist die Emitterwellenlänge im Spektrum um ca. 1%o zum vorgegebenen Wert (x -Achse) verschoben. Der Emitter befindet sich im Zentrum der Kavität.

Zusätzlich zum Auftreten des *Anti-Crossings*, das auch als Rabi-Splitting bezeichnet wird, können auch die sog. Rabi-Oszillationen beobachtet werden. In Abb. 3.5 ist der zeitliche Verlauf der im Dipol gespeicherten Energie für verschiedene Emitterwellenlängen aus der Simulation in Abb. 3.4 aufgetragen. Ist der Emitter nicht-resonant an die optische Mode gekoppelt, sind nur geringe Oszillationen sichtbar (blaue Linie). Nähert sich die Emitterwellenlänge jedoch der Resonanz der Kavität, wird die Amplitude der Oszillation zunehmend stärker und die Frequenz geringer (rote und grüne Linie). Ist das Regime der starken Kopplung erreicht (schwarze Linie), entspricht die Amplitude der Gesamtenergie des Systems. Das bedeutet, dass die Gesamtenergie, eingehüllt von den Verlusten der Kavität, im Wechsel komplett in der optischen Mode und dem Dipolemitter gespeichert ist. In einer quantenmechanischen Beschreibung würde man hier von Rabi-Oszillationen sprechen, bei denen das System zwischen einem photonischen und elektronischen Zustand oszilliert.

Es ist also tatsächlich möglich, mit dem klassischen Ansatz, einen Dipol-

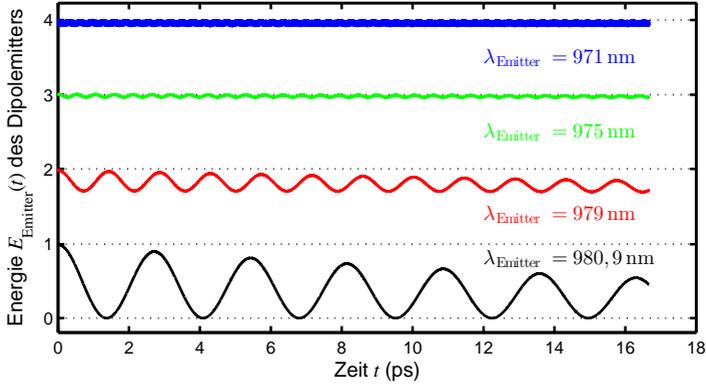


Abbildung 3.5: Zeitlicher Verlauf der im Dipolemitter gespeicherten Energie $E_{\text{Emittter}}(t)$ für verschiedene Emittewellenlängen $\lambda_{\text{Emittter}}$ aus Abb. 3.4. Während durch die nicht-resonante Kopplung (blau) zu einer Kavitätsmode nur leichte Oszillationen sichtbar sind, verstärken sich diese, sobald sich der Emittter der Resonanzwellenlänge der Mode nähert (grün/rot). Ist das Regime der starken Kopplung erreicht (schwarz), werden Rabi-Oszillationen sichtbar. Die Gesamtenergie ist dann abwechselnd im Dipol und dem elektromagnetischen Feld der optischen Mode gespeichert.

lemittter durch die Lorentzkraft an das elektromagnetische Feld zu koppeln, sowohl schwache als auch starke Kopplung zwischen dem Emittter und einer Kavitätsmode zu simulieren.

3.3 Zusammenfassung der Ergebnisse

Das anisotrope Ätzverhalten von Kristallen mit Zinkblendestruktur wurde durch die Verwendung eines quasi-atomistischen Modells simuliert. Die Symmetrie des Kristalls wurde dabei durch jeweils vier kubische Untergitter für die beiden Atomsorten der zweiatomigen Basis reproduziert. Durch die Berücksichtigung nächster Nachbarn in einer Mastergleichung für die Propagation der Ätzfront konnte nicht nur das anisotrope Ätzverhalten (Abb. 3.2) sondern auch das Ätzen von Heterostrukturen (Abs. 6.4.3 und 6.6) vorhergesagt werden.

Zur Simulation des Strahlungsprofils eines Emitters in einer optischen Mikrokavität (vgl. Abs. 6.3) wurde ein eigener FDTD-Algorithmus implementiert. In diesem konnten Dipolquellen mithilfe eines neuartigen Ansatz über die klassische Lorentzkraft an das elektromagnetische Strahlungsfeld gekop-

pelt werden. Mit diesem System war es möglich, den Purcell-Effekt sowie die nicht-resonante und die starke Kopplung zwischen Emitter und einer Kavitätsmode zu simulieren. Im Regime starker Kopplung waren sowohl das *Anti-Crossing* (Abb. 3.4) der spektralen Linien als auch die Rabi-Oszillationen (Abb. 3.5) zwischen photonischen und elektronischen Zuständen zu beobachten. Diese Simulationstechnik bietet also eine theoretische Beschreibung fast aller für aktive Mikroresonatoren relevanten Effekte, ohne auf quantenmechanische Kopplungseffekte zurückzugreifen.

4 InAs-Quantenpunkte

Neben der Herstellung optischer Kavitäten hoher Güte ist bei der Erforschung der Licht–Materie–Wechselwirkung natürlich auch dem optisch aktiven Medium in Form der InAs-Quantenpunkte große Aufmerksamkeit zu widmen. Ist bei der Herstellung von Bragg-Kavitäten wie z.B. den sog. Pillarresonatoren, die in Abschnitt 5.2 vorgestellt werden, das Einstellen der Resonanzwellenlänge im Wesentlichen durch die geometrischen Parameter bestimmt, so ist die Herstellung von Quantenpunkten mit definierter Emissionswellenlänge eine weitaus größere Herausforderung. Sie hängt neben der chemischen Zusammensetzung des Materials auch wesentlich von der Größe der Quantenpunkte ab, die immer eine nicht zu vernachlässigende Statistik aufweist. Zudem stellt die Anzahl der Quantenpunkte, die in einem Film gewachsen werden, ein Problem dar, wenn gezielt einzelne Quantenpunkte spektroskopiert werden sollen. Das Ziel ist es also, Quantenpunktfilme niedriger Dichte oder besser noch Quantenpunkte an vorbestimmten Positionen zu wachsen, die zudem eine definierte Emissionswellenlänge haben. Gleichzeitig sollte es auch nach dem Wachstum noch möglich sein, die Emissionswellenlänge zu beeinflussen, um die Kopplung zu optischen Moden zu kontrollieren.

Im Folgenden werden daher Wachstumsmethoden zur Kontrolle von Emissionswellenlänge und Quantenpunktdichte vorgestellt. Daraufhin wird diskutiert, inwieweit eine Kontrolle der Emissionswellenlänge durch das Anlegen elektrischer Felder und den so auftretenden *Quantum-Confined Stark Effect* möglich ist. Abschließend werden dann Messungen an potentiell strukturiert gewachsenen Quantenpunkten gezeigt, für die eigens ein neues Verfahren zur orts aufgelösten Spektroskopie entwickelt wurde. Die Proben hierfür wurden in der Nachwuchsgruppe von Prof. Dr. Daniel M. Schaadt am selben Institut hergestellt.

4.1 Herstellung mittels Molekularstrahlepitaxie

4.1.1 Selbstorganisiertes Wachstum

InAs-Quantenpunkte werden in der Regel selbstorganisiert im *Stranski-Krastanov-Modus* gewachsen. Hierbei stellt sich nach Benetzung der Oberfläche, der sog. Benetzungsschicht oder engl. *wetting layer*, ein Inselwachstum aufgrund der unterschiedlichen Gitterkonstanten von GaAs (5,65 Å) und InAs

(6,05 Å) ein [58]. Dadurch kann sich die Gitterkonstante in den Inseln in Wachstumsrichtung solange vergrößern, bis jegliche Verspannung aufgehoben ist. Da dieses Wachstum selbstorganisiert abläuft, verteilt sich die Emissionswellenlänge der Quantenpunkte häufig über 100 und mehr Nanometer. Zudem hängt die Emissionswellenlänge sehr entscheidend von der sehr kurzen Wachstumszeit und der Temperatur des Substrats ab.

4.1.2 Einfluss der Wachstumsparameter auf die Dichte und Emissionswellenlänge der Quantenpunkte

Da in dieser Arbeit im Wesentlichen die Möglichkeit, einzelne Quantenpunktlinien spektral gut zu separieren, von Bedeutung war, wurde keine systematische Bestimmung der Quantenpunktdichte durchgeführt. Stattdessen wurde ein zweckgebundener Ansatz gewählt, bei dem überprüft wurde, wie gut die einzelnen Quantenpunktlinien auf einer unstrukturierten Probe unter konfokaler Anregung spektral separiert waren. Hierzu wurden drei verschiedene Wachstumsarten verwendet: Ein Wachstum mit langsamer Wachstumsrate, Tempern der Quantenpunkte und das im nächsten Abschnitt beschriebene *Flushing*. Im Folgenden werden die Erfahrungswerte in Bezug auf die verschieden gewachsenen Quantenpunkte aufgelistet.

Wachstum mit langsamer Wachstumsrate Bei dieser Wachstumsart wird die Wachstumsrate so eingestellt, dass die Bildung von Quantenpunkten nach etwa 5 min beginnt [59]. Die Substrattemperatur ist dabei mit 450°C recht gering. Durch das langsame Wachstum kann der Zeitpunkt, an dem die Bildung der Quantenpunkte gerade beginnt, sehr gut getroffen werden. Die Quantenpunktdichte ist daher sehr gering. Allerdings ist die Quantenpunktdichte mit diesem Verfahren immer mit der Emissionswellenlänge korreliert, d.h. längere Wachstumszeit bedeutet höhere Dichte, größere Quantenpunkte und niedrigere Emissionsenergie. Die Wachstumszeit hängt bei diesem Wachstum sehr kritisch von der Substrattemperatur ab.

Tempern der Quantenpunkte Beim Tempern oder *Annealing* der Quantenpunkte nach deren Wachstum kann die Quantenpunktdichte und Emissionswellenlänge beeinflusst werden [60–62]. Bei langem Tempern dissoziiert ein Großteil des InAs und nur wenige Quantenpunkte bleiben zurück. Zusätzlich beobachtet man die Tendenz, dass sich kleinere Quantenpunkte zu größeren verbinden. Auch wenn dieses Verfahren generell eine gute Möglichkeit bietet, die Quantenpunktdichte zu beeinflussen, wurden mit Proben dieser Art bei optischen Messungen keine guten Erfahrungen gemacht. Die Intensität der Quantenpunktlinien war schwach, was an einer fehlenden Benetzungsschicht

liegen könnte, die, sofern vorhanden, den Transport von Ladungsträgern in die Quantenpunkte begünstigen kann.

Flushing Durch das *Flushing* (siehe unten) konnte eine gute spektrale Isolation einzelner Quantenpunkte vor allem durch die sehr definierte Position der Emissionsenergien erreicht werden. Bewegte man sich bei der optischen Messung energetisch oberhalb des Ensemblemaximums von etwa 950 nm, konnten einzelne Linien sehr gut separiert werden. Die eher kurze Wachstumszeit von ca. 30 s machte es jedoch schwierig, reproduzierbar Quantenpunktschichten mit ausreichend geringer räumlicher Dichte herzustellen.

Letztendlich wurde bei der Probenherstellung wegen seiner guten Reproduzierbarkeit in Bezug auf die Emissionswellenlänge der Quantenpunkte meistens das *Flushing*-Verfahren verwendet. Gerade für die Herstellung der Einzelphotonenquellen wurde aber auch das Wachstum mit niedrigen Wachstumsraten verwendet, da so die geringsten Quantenpunktdichten erreicht werden konnten.

4.1.3 Kontrolle der Emissionswellenlänge durch „Flushing“

Zur Verminderung der Breite der Quantenpunktemission kann ein in der Literatur als *Flushing* bezeichnetes Verfahren verwendet werden [63–65]. Hierbei wird nach dem InAs-Wachstum eine nur wenige Nanometer dicke GaAs-Schicht gewachsen und danach für einige Minuten getempert. Wie in Abb. 4.1 zu sehen, vermindert sich die Halbwertsbreite der Emission dadurch deutlich und verschiebt sich im Mittel zu höherer Energie. Eine beliebte Erklärung hierfür ist, dass die größeren Quantenpunkte nicht vollständig von der dünnen GaAs-Schicht benetzt werden, abdampfen und die kleineren Quantenpunkte mit höherer Energie hinterlassen [66]. Es ist allerdings fragwürdig, ob diese Argumentation für die hier verwendeten Quantenpunkte so zutrifft.

4.2 Quantum-Confined Stark Effect

Ist ein Quantenpunkt resonant an eine optische Mode gekoppelt, ist es im Hinblick auf logische Schaltvorgänge wünschenswert, die Kopplung möglichst schnell an- und auszuschalten. Eine naheliegende Realisierung hierfür ist die Verschiebung der Emissionswellenlänge des Quantenpunkts. Zu diesem Zweck kann z.B. eine langsame thermische Verschiebung der Bandlücke in Betracht gezogen werden oder das schnellere Anlegen eines elektrischen Feldes F . Letzteres bewirkt durch den sog. *Quantum-Confined Stark Effect* eine Verkipfung

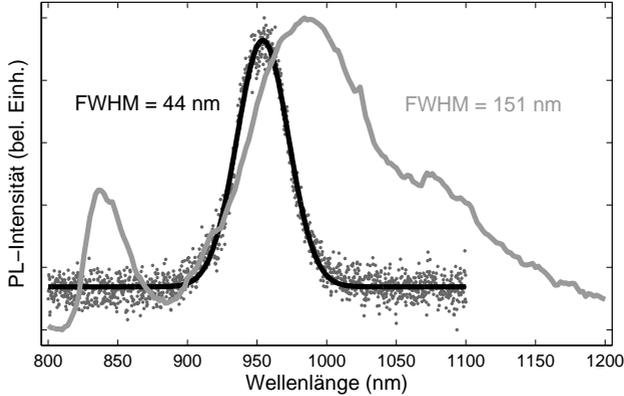


Abbildung 4.1: Emission der Quantenpunkte mit (Punkte mit angepasster Gauß-Verteilung) und ohne (graue Linie) sog. *Flushing* während des Wachstums (Proben *A1079* und *A1015*). Beim *Flushing* wurden die Quantenpunkte mit 2 nm GaAs überwachsen und dann durch ein zweiminütiges Aufheizen von der Quantenpunkt-wachstumstemperatur (470°C) auf 520°C getempert. Nach dem *Flushing* ist eine deutliche Verschmälerung der Quantenpunktemission zu erkennen.

der Bandstruktur und damit eine Änderung der Emissionsenergie [67–69]

$$\Delta E(F) = \mu_{el}F + \alpha F^2. \quad (4.1)$$

In diesem Fall beschreibt μ_{el} das permanente elektrische Dipolmoment und α die Polarisierbarkeit des exzitonischen Dipols im Quantenpunkt. Zudem ist es wünschenswert, das elektrische Feld lateral anzulegen, da so weiterhin die Möglichkeit besteht, die Quantenpunkte durch eine vertikale Diodenstruktur elektrisch anzulegen. Man erhofft sich durch die größere Ausdehnung der Quantenpunkte in lateraler Richtung auch eine stärkere Polarisierbarkeit der Exzitonen als in vertikaler Richtung. Laut Ref. [69] ergibt sich unter lateralem elektrischen Feld ein permanentes Dipolmoment $\mu_{el} \approx 0$ und die Polarisierbarkeit $\alpha \approx -3 \mu\text{eVcm}^2/\text{kV}^2$, was bei einem Abstand zweier Elektroden von $10 \mu\text{m}$ und einer angelegten Spannung von 8 V einer Verschiebung um ca. 0,4 meV entspricht. Verglichen mit der Halbwertsbreite einer Resonatormode, die typischerweise im Bereich von 0,1–0,5 meV liegt, ist das ein sehr zufriedenstellendes Ergebnis.

Um die Ergebnisse aus Ref. [69] zu bestätigen und die Brauchbarkeit für ein schnelles Verschieben der Quantenpunktemission zu überprüfen, wurden Pro-

ben mit Fingerkontakten im Abstand von $4\text{--}16\ \mu\text{m}$ hergestellt. Die Quantenpunktschicht wurde $25\ \text{nm}$ über einer AlAs-Ätzstoppschicht positioniert. Um die späteren Kontakte herum wurde eine Ätzmaske strukturiert. Daraufhin wurde die oberste GaAs-Schicht in den freien Bereichen mit der *Zitronensäure* $5:1$ (siehe Anhang A.1) selektiv bis zur AlAs-Schicht geätzt. Nach dem darauffolgenden Bedampfen mit Gold und dem Ablösen des restlichen Goldes auf der zurückgebliebenen Lackschicht konnten so Elektroden auf Höhe der Quantenpunkte hergestellt werden (siehe Abb. 4.2).

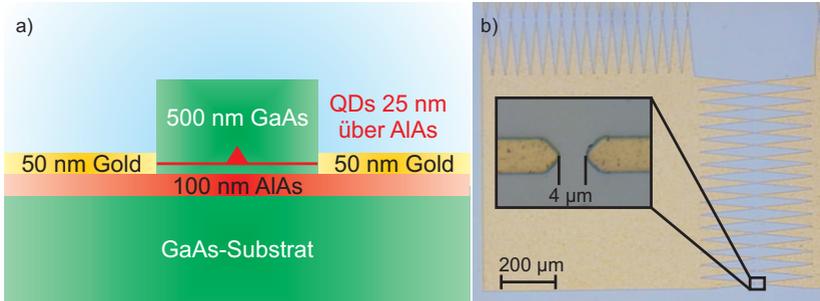


Abbildung 4.2: (a) Schematische Darstellung der Kontaktierung zum Anlegen eines lateralen elektrischen Feldes und (b) Mikroskopaufnahmen der Kontakte (Probe A0996c).

Die Prozessierung der Proben und die im Folgenden vorgestellten optischen Messungen wurden zusammen mit Florian Stockmar im Rahmen seiner begleitenden Diplomarbeit [70] durchgeführt. Die Auswertung der Messungen wurde jedoch in vorliegender Arbeit nochmals detaillierter aufgearbeitet, so dass die unten diskutierten Ergebnisse aus den Messungen extrahiert werden konnten.

Da die Quantenpunkte für die Messungen optisch angeregt werden mussten, konnte ein Stromfluss zwischen den Elektroden durch die so erzeugten Ladungsträger nicht verhindert werden. Um den Einfluss der ohmschen Wärme auf die zu erwartende Verschiebung der Quantenpunktemission durch den *Quantum-Confined Stark Effect* auszuschließen, wurde, statt wie gewöhnlich einer Gleichspannung, eine Rechteckspannung zwischen $0\ \text{V}$ und dem gewünschten Wert mit einer Frequenz von $500\ \text{kHz}$ angelegt. Die Spannungspulse sind somit lang im Vergleich zur Lebensdauer der Quantenpunkte und gewährleisten ein quasi-statisches Feld. Verglichen mit thermischen Zeitskalen sind sie jedoch recht kurz. Man erwartet daher eine konstante Verschiebung der Emission durch die ohmsche Wärme und eine Aufspaltung der Emissionslinien in eine unbeeinflusste und eine durch das Feld verschobene Linie für

zeitintegrierte Spektren. Durch Änderung des Tastverhältnis zwischen ‘an’- und ‘aus’-Zustand, sollte dann anhand der Intensität zwischen verschobener und unbeeinflusster Linie unterschieden werden können.

In Abb. 4.3 sind die Ergebnisse einer solchen Messung dargestellt. Die Identifikation der Verschiebungen ist durch die Anzahl der Linien und das schwache Signal der Quantenpunkte recht schwierig. Wenn man die Ergebnisse für ein Tastverhältnis von 20% betrachtet, sieht man im Wesentlichen die vom angelegten Feld unbeeinflusste Emission der Quantenpunkte. Dahingegen kann man bei einem Tastverhältnis von 50% bei kleinen Feldern an einigen Linien den Beginn der parabolischen Verschiebungen erkennen, die allerdings schnell an Intensität abnehmen. Bei einem Tastverhältnis von 80% sind dann fast ausschließlich die, durch das Feld verschobenen, Linien zu erkennen. Für drei solcher Linien wurde die Stark-Verschiebung aufgetragen. Für die Linie 1 kann man auch bei einem Tastverhältnis von 80% deutlich die vom Feld unbeeinflusste und die durch den Stark-Effekt verschobene Emissionslinie erkennen. Aus parabolischen Anpassungen an die gemessenen Stark-Verschiebungen wurden Polarisierbarkeiten $\alpha \approx -0.9 \dots -1.4 \mu\text{eV cm}^2/\text{kV}^2$ errechnet. Diese Werte liegen etwa um einen Faktor drei unter denen in Ref. [69]. Auch das permanente Dipolmoment $\mu_{el} \approx -0.1 \dots 3.0 \mu\text{eV cm/kV}$ weicht hier von 0 ab, was durchaus zu erwarten ist, geht man davon aus, dass die Quantenpunkte durch das selbstorganisierte Wachstum unterschiedliche Gitterverspannungen aufweisen. Zusätzlich zur Verschiebung von Emissionslinien tauchen bei höheren elektrischen Feldern neue Linien im Spektrum auf, die möglicherweise auf eine erhöhte Wahrscheinlichkeit für die Erzeugung von geladenen Exzitonen, also exzitonischen Zuständen mit ungleicher Loch- und Elektronenzahl, hinweisen.

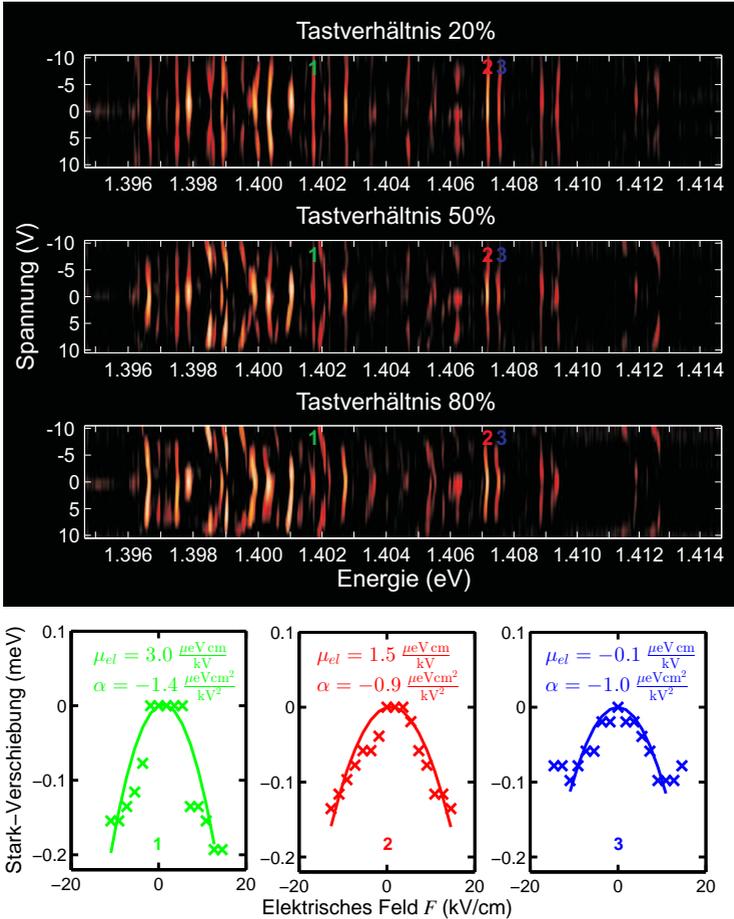


Abbildung 4.3: Verschiebung der Quantenpunktemission unter Wechselspannung (500 kHz) und variablem Tastverhältnis. Der Abstand zwischen den Gold-Elektroden beträgt $5,5 \mu\text{m}$ (Probe *A0996c*, Kontakt 3-7). Bei einem Tastverhältnis von 50% sind die konstanten Linien ohne Einfluss des elektrischen Feldes und gleichzeitig der Beginn des parabolischen Verlaufs der Stark-Verschiebung am ehesten zu identifizieren. Bei den Tastverhältnissen 20% bzw. 80% ist jeweils nur eine Linie deutlich sichtbar. Für drei Emissionslinien wurde die Stark-Verschiebung aufgetragen und eine parabolische Kurvenanpassung vorgenommen.

4.3 Ortsaufgelöste Messungen an strukturiert gewachsenen Quantenpunkten

Für die Einbettung von Quantenpunkten in optische Mikro kavitäten ist es von Vorteil, wenn Quantenpunkte kontrolliert an vorbestimmten Positionen gewachsen werden können. Dafür wird gewöhnlich ein Verfahren verwendet, bei dem kleine Löcher nasschemisch in die GaAs-Oberfläche geätzt werden. An den Facetten dieser Löcher wachsen die Quantenpunkte dann bevorzugt [71–74]. Die Positionierung der Quantenpunkte an sich war nicht Teil dieser Arbeit, jedoch wurde dies in einer Kooperation in der Nachwuchsgruppe von Prof. Dr. Daniel M. Schaadt am selben Institut versucht. Um in Erfahrung zu bringen, ob diese Strukturierung erfolgreich war, wurde im Rahmen dieser Arbeit ein Verfahren entwickelt, mit dem die Lumineszenz der Quantenpunkte sowohl mit hoher spektraler Auflösung als auch ortsaufgelöst gemessen werden konnte. Hierzu wurde ein rotierendes Dove-Prisma verwendet, dessen Funktionsweise im Folgenden erklärt wird.

4.3.1 Messprinzip und Funktionsweise des Dove-Prismas

Die entscheidende Eigenschaft eines Dove-Prismas ist es, einen kollimierten Strahl zu invertieren, so dass das Bild hinter dem Prisma auf dem Kopf steht. Dadurch kann, wie bei allen invertierenden Prismen, das invertierte Bild hinter dem Prisma gedreht werden. Das Bild wird dabei um einen Winkel 2ϕ gedreht, wenn sich das Prisma um einen Winkel ϕ dreht. Ein Punkt (x, y) in der Objektebene wird dann gemäß folgender Abhängigkeit auf einen Punkt (\bar{x}, \bar{y}) in der Bildebene abgebildet:

$$\begin{pmatrix} \bar{x} \\ \bar{y} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos(2\phi) & \sin(2\phi) \\ \sin(2\phi) & -\cos(2\phi) \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} x \\ y \end{pmatrix} \quad (4.2)$$

Damit Gl. 4.2 gültig ist, muss für die Höhe h und die Länge l des Prismas auf halber Höhe die Beziehung $l = (\sqrt{2n^2 - 1} + 1)/(\sqrt{2n^2 - 1} - 1)$ gelten, sofern der Winkel zwischen den Ein- und Ausgangsfacetten zur Basisfläche 45° beträgt.

Befindet sich in der Bildebene an der Position \bar{x}_{Spalt} der Eingangsspalt eines Spektrometers (Abb. 4.4), kann jedem Punkt $(\bar{x}_{\text{Spalt}}, \bar{y})$ entlang der Spaltöffnung ein Punkt in der Objektebene zugeordnet werden. Die Position \bar{y} wird im Spektrometer mithilfe einer Si-CCD (*engl.* CCD \rightarrow *Charge Coupled Device*) bestimmt. Die CCD hat 256×1024 Bildpunkte, mit denen senkrecht zum Spalt die Dispersion des einfallenden Lichts über 1024 Kanälen aufgelöst wird. Für die Ortsmessung stehen dann pro spektralem Kanal 256 Bildpunkte parallel zum Spalt zur Verfügung. Durchsticht die Rotationsachse des Prismas

die Ebene der CCD am Punkt (\bar{x}_0, \bar{y}_0) , kann einem Punkt $(\bar{x}_{\text{Spalt}}, \bar{y}_{\text{Spalt}})$ auf der CCD ein Punkt (x, y) in der Objektebene zugeordnet werden über

$$\begin{pmatrix} x \\ y \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos(2\bar{\phi}) & \sin(2\bar{\phi}) \\ \sin(2\bar{\phi}) & -\cos(2\bar{\phi}) \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \bar{x}_{\text{Spalt}} \\ \bar{y}_{\text{Spalt}} - \bar{y}_0 \end{pmatrix}, \quad (4.3)$$

mit $\bar{\phi} = -\phi$. Damit ist es also möglich, ein komplettes spektral und in zwei Dimensionen räumlich aufgelöstes Bild zu rekonstruieren.

Für die Messung wurde das Prisma hinter einer Apertur befestigt, die durch einen Schrittmotor gedreht werden konnte. Das Prisma wurde dann in kleinen Schritten um 360° gedreht. Allerdings ist die Justierung der Rotationsachse nicht ganz trivial. Das Prisma und die Rotationsachse sollten möglichst parallel zum Strahl orientiert sein. Außerdem sollte die Rotationsachse die Bildebene möglichst an der Position des Spalts und in der Mitte der CCD durchlaufen. Daher wurde die Rotationseinheit auf einer in x - und y -Richtung verschiebbaren sowie in zwei Achsen kippbaren Halterung befestigt.

4.3.2 Vorteile der Rotation des Bildes gegenüber anderen Messmethoden

Anfangs kann natürlich die Frage aufkommen, wieso man das Bild einer Probe über den Eingangsspalt des Spektrometers rotieren sollte, wo doch die Rekonstruktion des Bildes, wie insbesondere im Folgenden noch ersichtlich wird, nicht gerade trivial ist. Vergleicht man dieses Verfahren jedoch mit den möglichen Alternativen, stellt es sich als äußerst nützlich heraus.

Die wohl am häufigsten verwendete Methode, um ein ortsaufgelöstes Spektrum zu erhalten, ist das Abrastern der Probe. Dies kann durch Verschieben der Probe unter konfokaler Anregung mithilfe von Piezo-Verschiebeeinheiten

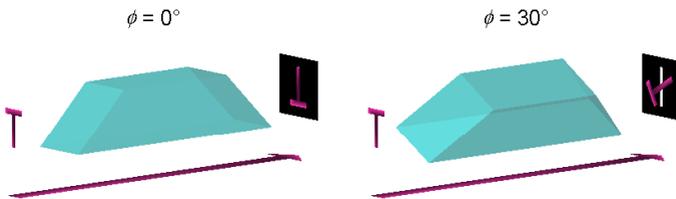


Abbildung 4.4: Prinzip der ortsaufgelösten Messung mithilfe eines Dove-Prisma. Das invertierte Bild eines Objekts wird um einen Winkel 2ϕ durch Rotation des Prismas um einen Winkel ϕ gedreht. In der Bildebene befindet sich der Spalt des Spektrometers. Anhand des Rotationswinkels ϕ und der Position eines Bildpunktes auf dem Spalt kann die Position des Punktes in der Objektebene rekonstruiert werden.

oder durch Verschieben des Anregungsspot selbst geschehen. Dabei wird pro Messpunkt ein Spektrum aufgenommen. In diesem Fall ist die räumliche Auflösung durch die Größe des Laserspots auf der Probe, aber auch durch die Diffusionslängen der Ladungsträger begrenzt. Das eigentliche Problem dieser Methode ist allerdings das zweidimensionale Rastern, das die Messzeit proportional zur Fläche und zum Quadrat der räumlichen Auflösung macht. Für das Vermessen eines $100 \times 100 \mu\text{m}$ großen Bereiches mit einer Auflösung von 500 nm und einer Integrationszeit von 5 s pro Messschritt würde man mehr als zwei Tage Messzeit benötigen.

Man könnte nun natürlich analog zur Rotation des Bildes den Anregungsspot des Lasers aufweiten und die Probe senkrecht zum Spalt verfahren, während man parallel zum Spalt die räumliche Auflösung der CCD-Kamera verwendet. Auch dieses Verfahren hat allerdings seine Nachteile. Zum einen schiebt man die Probe durch das Anregungsprofil des Lasers hindurch, was die Position der Emitter merklich verzerren kann, zum anderen muss man mit den zwei Längenskalen der Piezoeinheit und der CCD-Kamera arbeiten.

Als letzte Alternative, die hier erwähnt werden soll, könnte man auch das Bild senkrecht zum Spalt verschieben. Da dies aber effektiv eine Verschiebung der abbildenden Linsen zueinander bedeutet, ist dies keine Alternative, die man für eine exakte Bildgebung ernsthaft in Betracht ziehen sollte.

Abschließend sollen die Vorteile hervorgehoben werden, die die Verwendung des bildrotierenden Prismas mit sich bringt:

- Bei Rotation eines Dove-Prismas wird das Bild nur entlang der optischen Achse gedreht. Ein Strahlengang mit sphärischen Linsen bleibt davon also vollkommen unbeeinträchtigt.
- Es handelt sich hier um ein reines Abbildungsverfahren, d.h. die räumliche Auflösung ist durch das Auflösungsvermögen des optischen Systems und den Eingangsspalt des Spektrometers bestimmt.
- Das Dove-Prisma ist in jeden Lumineszenzmessplatz problemlos integrierbar, der in etwa 30 cm Platz im kollimierten Strahl bietet und eine CCD-Kamera zur ortsauflösten Spektroskopie verwendet.
- Es gibt nur eine Längenskala, nämlich die Bildpunkte der CCD-Kamera.
- Die Messzeit skaliert linear mit der räumlichen Auflösung.
- Es werden keine Piezo-Verschiebeeinheiten benötigt. Lediglich ein Schrittmotor ist erforderlich, der das Prisma dreht und, natürlich abhängig vom Bedarf des Anwenders, eine relativ geringe Genauigkeit in der Positionierung gewähren muss.

4.3.3 Einfluss leichter Verkippungen des Prismas auf die Abbildung

Da es nur bis zu einem bestimmten Maß möglich ist, das Prisma auf die optische Achse des Strahlengangs und des Spektrometers auszurichten, wurde der Einfluss von leichten Verkippungen des Prismas um die Rotationsachse auf die Abbildung berechnet. Hierfür wurde angenommen, dass das Prisma um die Winkel ω_y bzw. ω_x um die x - bzw. y -Achse zur Rotationsachse des Motors verkippt ist. Zusätzlich wurde angenommen, dass die Rotationsachse selbst zur optischen Achse um die Winkel Ω_y und Ω_x verkippt ist. Eine Verkippung um die z -Achse ist hier nicht relevant, da sie für kleine Winkel nur eine Phasenverschiebung in der Rotationsmatrix verursacht. Ist das Prisma nun um einen Winkel ϕ gedreht, gilt bei kleinen Verkippungen Ω_x , Ω_y , ω_x , ω_y , dass die Normalen \mathbf{n}_i der Ebenen des Prismas durch eine Rotationsmatrix $\hat{\mathbf{R}}(\phi)$ auf die Normalen $\bar{\mathbf{n}}_i(\phi)$ abgebildet werden. Für $\hat{\mathbf{R}}(\phi)$ gilt dann:

$$\begin{aligned} \hat{\mathbf{R}}(\phi) &= \\ &\begin{pmatrix} 1 & 0 & \Omega_x \\ 0 & 1 & -\Omega_y \\ -\Omega_x & \Omega_y & 1 \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \cos(\phi) & -\sin(\phi) & 0 \\ \sin(\phi) & \cos(\phi) & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} 1 & 0 & \omega_x \\ 0 & 1 & -\omega_y \\ -\omega_x & \omega_y & 1 \end{pmatrix} \\ \hat{\mathbf{R}}(\phi) &= \\ &\begin{pmatrix} \cos(\phi) & -\sin(\phi) & \Omega_x + \omega_x \cos(\phi) + \omega_y \sin(\phi) \\ \sin(\phi) & \cos(\phi) & -\Omega_y + \omega_x \sin(\phi) - \omega_y \cos(\phi) \\ -\Omega_x - \omega_x \cos(\phi) + \omega_y \sin(\phi) & \Omega_y + \omega_x \sin(\phi) + \omega_y \cos(\phi) & 1 \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (4.4)$$

Zur Berechnung von $\hat{\mathbf{R}}(\phi)$ wurden nur Verkippungswinkel in 1. Ordnung berücksichtigt, also z.B. $\sin(\Omega_x) = \Omega_x$, $\cos(\omega_y) = 1$, $\omega_x^2 = 0$ und $\Omega_y \omega_x = 0$. Mithilfe der rotierten Normalenvektoren $\bar{\mathbf{n}}_i(\phi) = \hat{\mathbf{R}}(\phi) \cdot \mathbf{n}_i$ kann dann der Verlauf des Strahls anhand der Brechung an den angewinkelten Flächen und der Totalreflexion an der Basisfläche berechnet werden. Die Berechnung hierfür ist nicht ganz trivial und wurde mit *Wolfram Mathematica* durchgeführt. Werden in der Rechnung konsequent die Verkippungswinkel nur in 1. Ordnung berücksichtigt, ergibt sich für die Rekonstruktion des Bildes in der Objektebe-

ne:

$$\begin{pmatrix} x \\ y \end{pmatrix} = \hat{\mathbf{M}}(\bar{\phi}) \cdot \begin{pmatrix} \bar{x}_{\text{Spalt}} \\ \bar{y}_{\text{CCD}} - \bar{y}_0 \end{pmatrix} + \Delta \mathbf{x}(\bar{\phi}) \quad (4.5)$$

$$\hat{\mathbf{M}}(\phi) = \begin{pmatrix} \cos(2\phi) - 2 \sin^2(\phi) \Delta_y(\phi) & \sin(2\phi) (1 + \Delta_y(\phi)) \\ \sin(2\phi) (1 + \Delta_y(\phi)) & -\cos(2\phi) - 2 \cos^2(\phi) \Delta_y(\phi) \end{pmatrix}$$

$$\Delta \mathbf{x}(\phi) = h \begin{pmatrix} \cos(\phi) \Delta_x(\phi) + \eta \sin(\phi) \Delta_y(\phi) \\ \sin(\phi) \Delta_x(\phi) - \eta \cos(\phi) \Delta_y(\phi) \end{pmatrix}$$

$$\Delta_x(\phi) = \Omega_x + \omega_x \cos(\phi) - \omega_y \sin(\phi)$$

$$\Delta_y(\phi) = \Omega_y + \omega_x \sin(\phi) + \omega_y \cos(\phi)$$

$$\eta = \frac{2n^2 \sqrt{2n^2 - 1}}{2n^4 - 3n^2 + 1}$$

Geht man zusätzlich davon aus, dass die Höhe h des Prismas deutlich größer ist als das Bild auf der CCD-Kamera, also $h \gg \bar{y}_{\text{CCD}} - \bar{y}_0$, genügt es für die Abweichung vom Idealfall (Gl. 4.3), nur den Term $\Delta \mathbf{x}(\bar{\phi})$ zu betrachten, so dass ein unbekannter Parameter wegfällt. Die vier Verkippungswinkel treten dann nämlich nur noch als Produkt mit h auf, so dass die Kenntnis über die Werte dieser Produkte genügt, ohne dass h bekannt sein muss.

4.3.4 Rekonstruktion der Positionen einzelner Quantenpunkte

Die Daten einer Messung an einer Probe mit vermeintlich strukturiert gewachsenen Quantenpunkten sind in Abb. 4.5 dargestellt. Bei dieser Messung wurde das Prisma in $0,4^\circ$ -Schritten von 0° bis 360° gedreht. In dem Intensitätsgraph wurde für einen spektralen Kanal bei $908,7 \text{ nm}$ die Intensität der Photolumineszenz in Abhängigkeit des Drehwinkels ϕ und den Kanälen y_{CCD} der CCD in y -Richtung illustriert. Wie an den markierten Punkten zu sehen ist, trifft die Lumineszenz eines Quantenpunktes bei vier verschiedenen Rotationswinkeln auf die CCD. Dies ergibt sich aus der Drehung des Bildes um den doppelten Rotationswinkel des Prismas und der Lage der Rotationsachse nahe dem Zentrum der CCD. Das Bild vollführt also während einer vollständigen Rotation des Prismas derer zwei. Dreht man das Prisma um 90° oder 270° entspricht dies einer Spiegelung des Bildes an der Rotationsachse. Die Lumineszenz eines Quantenpunktes an der Position $(x_{\text{QD}}, y_{\text{QD}})$ wird also an vier Punkten auf die CCD abgebildet, für die gilt:

$$\begin{pmatrix} x_{\text{QD}} \\ y_{\text{QD}} \end{pmatrix} = \hat{\mathbf{M}}(\bar{\phi}_i) \cdot \begin{pmatrix} \bar{x}_{\text{Spalt}} \\ \bar{y}_i - \bar{y}_0 \end{pmatrix} + \Delta \mathbf{x}(\bar{\phi}_i), \quad i = 1, 2, 3, 4 \quad (4.6)$$

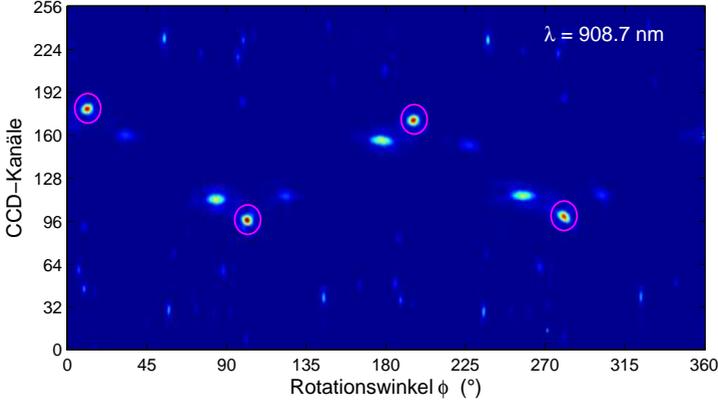


Abbildung 4.5: μ PL-Intensität in Abhängigkeit des Rotationswinkels ϕ des Dove-Prismas und des y -Kanals auf der Si-CCD bei einer Wellenlänge von 908,7 nm. (Feld C3, Probe A1235)

Im Idealfall ist dann $\bar{\phi}_i = \bar{\phi}_{\text{QD}} + (i - 1) \cdot 90^\circ$ und $\bar{y}_i = (-1)^i (\bar{y}_0 - \bar{y}_{\text{QD}})$. Im Experiment ist dies durch die leichten Verkippungen des Prismas natürlich nicht exakt der Fall. Allerdings sind die experimentellen Ergebnisse auch nicht weit vom Idealfall entfernt. In Abb. 4.6a ist die zweidimensionale Autokorrelation des spektral integrierten Signals der Messung aufgetragen. Es sind deutlich die Maxima bei Verschiebungen $\Delta\phi$ des Rotationswinkels um 0° bzw. $\pm 180^\circ$ zu erkennen. Noch interessanter ist die Korrelation des PL-Signals und des PL-Signals, jedoch mit umgekehrter Reihenfolge der CCD-Kanäle (Abb. 4.6b). Man kann dort die erwarteten Maxima bei einer Verschiebung des Rotationswinkels um $\pm 90^\circ$ erkennen. Diese sind allerdings um den Abstand $\Delta\bar{y}_0$ der Rotationsachse des Prismas zum Zentrum der CCD-Kamera verschoben. So lässt sich also die Position \bar{y}_0 der Rotationsachse auf der CCD abschätzen. Da die CCD 256 Kanäle besitzt, gilt $\bar{y}_0 \approx 127,5 + \Delta\bar{y}_0$.

Für die Rekonstruktion des Bildes in der Objektebene geht es nun darum, die unbekanntes Fitparameter aus Gl. 4.5 zu bestimmen, die da wären: \bar{x}_{Spalt} , \bar{y}_0 , $h\Omega_x$, $h\Omega_y$, $h\omega_x$, und $h\omega_y$. Prinzipiell kann die Kalibrierung mit einer dafür angefertigten Referenzprobe durchgeführt werden, z.B. mit kleinen Ansammlungen eines stark streuenden Materials, das an wohldefinierten Punkten aufgebracht wird. Denkbar wäre da unter anderem, kleine Goldscheiben von ca. $1 \mu\text{m}$ Durchmesser durch einen *Lift-off*-Prozess zu strukturieren. Da Quantenpunkte aber ohnehin perfekte Punktquellen darstellen, wurde di-

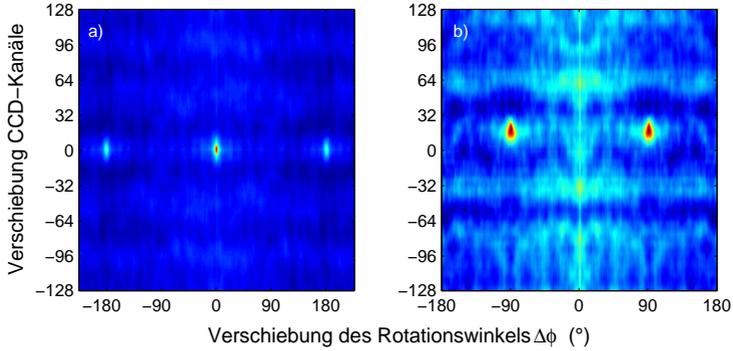


Abbildung 4.6: Zweidimensionale Korrelationsfunktionen einer spektral integrierten ortsaufgelösten Lumineszenzmessung, die durch Rotation des Dove-Prismas aufgenommen wurde (Feld *C3*, Probe *A1235*). (a) Autokorrelation des PL-Signals und (b) Korrelation des PL-Signals mit umgekehrter Reihenfolge der CCD-Kanäle. In (a) sind die Maxima bei 0° und $\pm 180^\circ$ sichtbar, in (b) bei $\pm 90^\circ$. In (b) sind die Maxima zudem in vertikaler Richtung um die Anzahl der CCD-Kanäle verschoben, die die Rotationsachse des Prismas vom Mittelpunkt der CCD abweicht.

rekt die Messung zur Kalibrierung verwendet. Einziges Manko dabei ist, dass sich eine absolute Längenskala in der Objektebene so nicht angeben lässt.

Als Maß für die Optimierung der Parameter wurde dabei Gl. 4.6 herangezogen. Ziel ist es ja letztendlich, dass die vier Positionen, an denen die Lumineszenz eines Quantenpunktes sichtbar wird, wieder auf einen Punkt in der Objektebene abgebildet werden. Mit anderen Worten soll die Varianz der vier rekonstruierten Positionen des Quantenpunktes in der Objektebene minimiert werden. Insgesamt beinhaltet Gl. 4.6 acht Gleichungen, da jeweils die x - und y -Positionen berechnet werden. Allerdings ist die eigentliche Position des Quantenpunktes ebenso eine Unbekannte, auch wenn sie bei der Berechnung der Varianz nur implizit über den Mittelwert eingeht. Man bekommt also pro auftretendem Intensitätsmaximum sechs Gleichungen, was bedeutet, dass für eine Anpassung der sechs Parameter gerade einmal ein Quantenpunkt benötigt wird. Bei dieser Messung wurden dafür jedoch viel mehr, nämlich 750 Emissionslinien verwendet, die teilweise auch von unterschiedlichen Zuständen (Exziton, Biexziton, ...) derselben Quantenpunkte stammten. Die Maxima wurden anhand des abgeschätzten Wertes für \bar{y}_0 ihrer spektralen Position und Intensität einander automatisiert zugeordnet.

Da die Probe einen leichten Drift während der Messdauer aufwies, wurden zu den sechs Fitparametern noch zwei weitere Parameter A_x , A_y hinzugefügt, die eine lineare Verschiebung in x - und y -Richtung beschreiben. Die

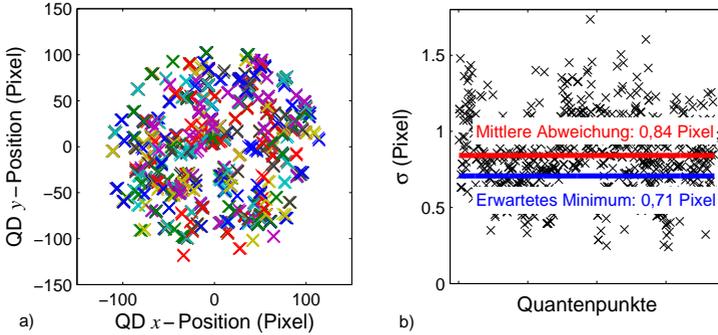


Abbildung 4.7: (a) Rekonstruierte Positionen der Quantenpunkte. Es sind jeweils die vier rekonstruierten Positionen pro Quantenpunkt in gleicher Farbe mit Kreuzen aufgetragen. Unterschiede zwischen den vier Werten sind kaum zu erkennen. (b) Standardabweichung der einzelnen rekonstruierten Positionen zum Mittelwert. Die Abweichungen sind mit durchschnittlich 0,84 Pixeln nahe am erwarteten Minimum von $1/\sqrt{2} \approx 0,71$ Pixel.

Anpassung anhand der 750 Maxima ergab folgende Werte:

Parameter	\bar{x}_{Spalt}	\bar{y}_0	$h\Omega_x$	$h\Omega_y$	$h\omega_x$	$h\omega_y$	A_x	A_y
Wert	-2	139	-1	-2	2	4	-8	-7
Fehler	± 1	± 2	± 1	± 1	± 1	± 2	± 4	± 4

Die Werte sind jeweils in Pixeln der CCD-Kamera angegeben, bis auf die Werte A_x und A_y , die den Drift der Probe über die Messzeit in Pixeln angeben. Sie liegen alle im Rahmen des Erwarteten. Auch der Drift der Probe ist nicht übermäßig groß. Bei ca. 2,5 Pixeln pro Mikrometer in der Objektebene hat sich die Probe also in beide Richtungen nur etwa $3 \mu\text{m}$ während der zweistündigen Messung verschoben.

Da die Positionen der Quantenpunkte über Intensitätsmaxima bestimmt werden, muss davon ausgegangen werden, dass für die Standardabweichungen in die beiden Raumrichtungen $\sigma_{x,y} \geq 0,5$ Pixel gilt. Rekonstruiert man also die Position eines Quantenpunktes anhand seines vierfachen Erscheinens auf der CCD-Kamera, erwartet man für die Standardabweichung σ_{QD} der vier rekonstruierten Positionen von ihrem Mittelwert

$$\sigma_{\text{QD}} = \sqrt{\sigma_x^2 + \sigma_y^2} \geq 1/\sqrt{2} \text{ Pixel.}$$

Wie exakt die Position eines Quantenpunktes tatsächlich rekonstruiert werden kann, ist in Abb. 4.7a zu sehen (oder eben gerade nicht!). Hier sind die vier be-

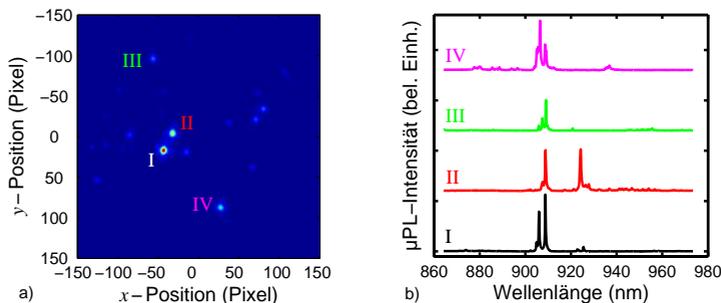


Abbildung 4.8: (a) Rekonstruktion der Intensitätskarte aus Abb. 4.5 in der Objektebene. (b) Emissionsspektren ausgewählter Quantenpunkte. Je Quantenpunkt sind mehrere Emissionslinien sichtbar.

rechneten Positionen eines Quantenpunktes jeweils mit einem Kreuz gleicher Farbe markiert. Eine Abweichung der Kreuze voneinander ist kaum zu erkennen. In Abb. 4.7b ist zusätzlich die Standardabweichung der vier Werte zu ihrem Mittelwert aufgetragen. Der Mittelwert über alle Emissionslinien liegt mit 0,84 Pixeln nur knapp über dem erwarteten Minimum von 0,71 Pixeln. Die Position der Quantenpunkte kann also mithilfe von Gl. 4.5 hervorragend rekonstruiert werden und mit einer Genauigkeit bestimmt werden, die sogar unterhalb der Auflösung der CCD-Kamera liegt. Schätzt man die Genauigkeit in der Positionsbestimmung anhand der Vergrößerung der abbildenden Optik ab, erhält man für die räumliche Auflösung einen Wert von etwa 340 nm. Verbildlicht wird dies auch anhand der Rekonstruktion der Intensitätskarte aus Abb. 4.5 in Abb. 4.8a, wo deutlich die einzelnen Emissionszentren räumlich getrennt zu sehen sind. Zusätzlich sind für vier ausgewählte Quantenpunkte die Emissionsspektren in Abb. 4.8b aufgetragen. Es ist also möglich, das Spektrum eines Quantenpunktes von dem anderer räumlich zu trennen.

So gut die hier beschriebene Technik zur räumlich aufgelösten Spektroskopie auch sein mag, war das eigentliche Ziel doch nachzuweisen, dass die Strukturierung der Quantenpunkte von Erfolg war. Leider konnte auch mit ausgefeilten Kniffen der Datenanalyse keine Korrelation der Quantenpunktpositionen und dem erwarteten Muster nachgewiesen werden. Übrig bleibt also aus Sicht dieser Arbeit ein nützliches Werkzeug zum Betreiben orts aufgelöster Spektroskopie und die Erkenntnis, dass die Strukturierung der Quantenpunkte bis heute leider erfolglos war.

4.4 Zusammenfassung der Ergebnisse

Die drei verwendeten Wachstumsmethoden beinhalten zusammen ein umfassendes Sortiment an Möglichkeiten zur Kontrolle der Emissionsenergie und Quantenpunktdichte. Während durch *Flushing* der Quantenpunkte eine sehr definierte und schmale Verteilung der Emissionsenergien des Ensembles erreicht werden konnte, lagen die Vorteile eines Wachstums mit geringer Wachstumsrate bzw. Tempern der Quantenpunkte in der geringen Dichte. Hierbei lieferten geringe Wachstumszeiten vor allem 'helle' Quantenpunkte mit allerdings nicht einstellbarer Emissionsenergie, wohingegen die Effizienz der getemperten Quantenpunkte etwas geringer war, ihre Größe und Dichte in der Herstellung jedoch kontrollierbarer. Auf den meisten Proben wurden wegen der guten Reproduzierbarkeit die Quantenpunkte mit dem *Flushing*-Verfahren gewachsen. Insbesondere zur Herstellung von Einzelphotonenquellen wurde aber auch das Wachstum mit niedriger Wachstumsrate verwendet, da so die geringsten Quantenpunktdichten erreicht werden konnten.

Die Erwartungen, die in die Nützlichkeit des *Quantum-Confined Stark Effect* gesteckt wurden, konnten zusammenfassend nur bedingt erfüllt werden. Die Verschiebung der Emissionsenergie der Quantenpunkte fiel um etwa einen Faktor drei geringer aus als erwartet, was in Bezug auf die Anforderungen für ein Verschieben aus einer optischen Mode etwas zu wenig ist. Jedoch konnte mit dem neu eingeführten Messverfahren unter Verwendung einer Wechselspannung der Einfluss ohmscher Wärme durch Leckströme ausgeschlossen werden. Die gemessenen Verschiebungen sind daher eindeutig auf das elektrische Feld zurückzuführen. Dies war bei vorherigen Messungen in der Literatur nicht der Fall.

Für die optische Charakterisierung strukturiert gewachsener Quantenpunkte wurde ein neues Verfahren zur orts aufgelösten Spektroskopie entwickelt. Hierfür wurde das Bild der Probe mithilfe eines Dove-Prismas über den Eingangsspalt des Spektrometers gedreht und das spektral aufgefächerte Bild des Spalts mit einer CCD-Kamera aufgenommen. Bei diesem Messverfahren ist es nicht notwendig, die Probe zu bewegen oder den Anregungspot zu verschieben. Gegenüber zweidimensionalen Rastermessungen hat diese Messung außerdem den Vorteil, dass die Messzeit linear mit der räumlichen Auflösung skaliert. Durch Berücksichtigung leichter Verkippungen des Prismas zur Rotationsachse konnte die Position der Quantenpunkte ohne die Anpassung an eine *Point Spread Function* in einer Kreisfläche mit einem Durchmesser von $100\mu\text{m}$ auf 340 nm genau bestimmt werden. Dafür wurden 900 Einzelmessungen unter variierendem Rotationswinkel durchgeführt. Zum Vergleich würde man bei gleicher Auflösung in einem zweidimensionalen Raster scan 23100 Einzelmessungen benötigen, was die Messzeit von ca. 2 Stunden auf mehr als zwei Tage verlängern würde.

5 Aktive Mikroresonatoren

5.1 Einführung: Resonatortypen und ihre Eigenschaften

Für die Herstellung von Mikroresonatoren hoher Güte gibt es verschiedene Ansätze, die je nach Anforderungen Vor- und Nachteile bieten. Dabei stehen nicht nur die optischen Eigenschaften der Resonatoren im Vordergrund, sondern u.a. auch ihre Integrierbarkeit in elektrische und optische Schaltkreise oder die Möglichkeiten, aktive Medien wie Quantenpunkte, Farbstoffe oder strahlende Defekte einzubringen. Die Resonatortypen werden häufig in drei Klassen unterteilt [14]: (i) Fabry–Pérot-Kavitäten [75–77], (ii) photonische Kristalle [78, 79] und (iii) Flüstergalerieresonatoren [80–82].

Fabry–Pérot-Kavitäten und photonische Kristalle unterscheiden sich in ihrer Funktionsweise kaum voneinander. In Fabry–Pérot-Kavitäten ist meist eine λ -Kavität zwischen zwei dielektrischen Spiegeln positioniert, was den Lichteinschluss in einer Dimension garantiert. Für einen Lichteinschluss in alle Raumrichtungen können dann Säulen aus dem Substrat geschnitten werden, wodurch das Licht in lateraler Richtung durch Totalreflexion eingeschlossen ist. Bei photonischen Kristallen wird hingegen meist durch definiert geätzte Lochgitter eine Art zweidimensionaler dielektrischer Spiegel geschaffen, durch den ein Lichteinschluss in lateraler Richtung erreicht wird. In vertikaler Richtung kommt wieder die Totalreflexion zum Tragen. Bei Flüstergalerieresonatoren handelt es sich dagegen um scheiben- oder kugelförmige Resonatoren, in denen durch Totalreflexion eine Mode entlang der Oberfläche geführt wird und nach einem Umlauf konstruktiv interferiert. Für alle drei Resonatortypen konnte bereits starke Kopplung zwischen einem Emitter und einer optischen Mode nachgewiesen werden [16, 17, 83].

In der Herstellung aktiver Resonatoren auf der Basis von Fabry–Pérot-Kavitäten und photonischen Kristallen ist eine Kombination aus den Materialien GaAs, AlAs und $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ für die Kavität und dielektrische Spiegel, sowie InAs oder $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ als optisch aktive Medien in Form von Quantenpunkten und Quantentrögen das absolute Musterbeispiel. Dies liegt vor allem an der hervorragenden kristallinen Qualität, mit der Heterostrukturen gewachsen werden können, und den nahezu einzigartigen optischen Eigenschaften der InAs-Quantenpunkte in Bezug auf ihre Linienbreite und Quanteneffizienz bei tiefen Temperaturen. Die Quantenpunkte oder -tröge können außerdem elektrisch angeregt werden [84, 85]. Diesen Vorteil bieten Resonatoren aus

anderen Materialien wie Gläsern oder Polymeren, die häufig für Flüstergalerieresonatoren verwendet werden, nicht. Hier müssen andere Emittter wie kolloidale Quantenpunkte oder Farbstoffe in die Resonatoren eingebaut werden, auf die dann nur durch optische Anregung zugegriffen werden kann.

Zum Erreichen von schwacher und starker Kopplung oder Lasing gibt es verschiedene Voraussetzungen in Bezug auf Güte Q und Modenvolumen V_{Mode} der optischen Moden. Für einen möglichst großen Purcell-Effekt im Regime schwacher Kopplung muss das Verhältnis Q/V_{Mode} (vgl. Abs. 2.1.3) optimiert werden, dagegen ist es für die starke Kopplung das Verhältnis Q^2/V_{Mode} (vgl. Abs. 2.1.4). Zum Erreichen von Lasing ist neben der optischen Verstärkung im Wesentlichen nur der Q -Faktor einer Kavität von Bedeutung.

Im Vergleich von Fabry-Pérot-Resonatoren und photonischen Kristallen gibt es in Bezug auf die quantenmechanische Kopplung zwischen optischer Mode und Emittter keine wirkliche Präferenz. Weisen die Fabry-Pérot-Resonatoren höhere Q -Faktoren auf, so zeichnen sich photonische Kristalle durch ihr sehr geringes Modenvolumen aus. Es gibt allerdings zwei entscheidende Vorteile bei der Verwendung von Fabry-Pérot-Resonatoren gegenüber den photonischen Kristallen. Zum einen können die Resonatoren so gestaltet werden, dass die fundamentale optische Mode sehr definiert in eine kleine numerische Apertur abstrahlt [26], zum anderen befinden sich die optisch aktiven Quantenpunkte nur in einer dünnen Schicht in der eigentlichen Kavität. In photonischen Kristallen sind dagegen durch das zweidimensionale Design in den meisten Fällen Quantenpunkte in der ganzen Struktur zugegen. Die Anzahl absorbierender und emittierender Quantenpunkte außerhalb der Kavität ist dann nicht vernachlässigbar.

Flüstergalerieresonatoren weisen meist ein wesentlich größeres Modenvolumen auf. Insbesondere bei der Herstellung aus Glas können jedoch extrem hohe Q -Faktoren erreicht werden, die das große Modenvolumen durchaus überkompensieren können [86]. Allerdings ist es aufgrund von Absorption und Streuung relativ schwierig, diese hohen Q -Faktoren auch dann noch zu erreichen, wenn optisch aktive Medien in diese Resonatoren eingebaut werden. Diese Art von Resonatoren wurde daher bisher vor allem zur Herstellung von Mikrolasern verwendet [87–89].

In dieser Arbeit sowie im Rahmen begleitender Diplomarbeiten [70, 90, 91] wurden sowohl Fabry-Pérot als auch Flüstergalerieresonatoren erforscht. Hierbei lag der Schwerpunkt bei den Fabry-Pérot-Resonatoren im Wesentlichen auf dem Erreichen starker Kopplung. Zu diesem Zweck wurde der Herstellungsprozess der etablierten GaAs-Säulenresonatoren, basierend auf den Ergebnissen vorangegangener Arbeiten [46, 92, 93], weiter optimiert. Zudem wurde die optische Charakterisierung alternativer Fabry-Pérot-Resonatoren im Gewand dielektrisch verspiegelter Pyramidenstümpfe fortgeführt [94, 95]. Um sich von den tiefen Temperaturen, die bei dem Betrieb von aktiven Ka-

vitäten mit InAs-Quantenpunkten obligatorisch sind, und den hohen Herstellungskosten zu befreien, wurde auch ein alternatives System, bestehend aus polymerischen Kelchresonatoren mit eingebetteten kolloidalen Quantenpunkten, erforscht. Da die Herstellung passiver polymerischer Resonatoren in der Gruppe bereits etabliert war, lag es nahe, dieses System auf seine Tauglichkeit in Bezug auf die Licht–Materie–Wechselwirkung und zur Herstellung von Quantenpunkt–Mikrolasern zu überprüfen. Im Folgenden werden nun die Ergebnisse für diese drei Resonatortypen diskutiert.

5.2 Säulenförmige Resonatoren

Ausgehend von den Ergebnissen vorangegangener Entwicklungen, die besonders im Rahmen der Doktorarbeit von Matthias Karl [46] vorangetrieben wurden, werden nun die Verbesserungen vorgestellt, die an Säulenresonatoren erreicht werden konnten. Hierzu wurde die Herstellung durch molekularstrahlepitaktisches Wachstum und das Ätzen mittels fokussiertem Ionenstrahl im Rahmen der technischen Möglichkeiten optimiert. Nach einer kurzen Einleitung über das Herstellungsprinzip der Säulenresonatoren werden diese Optimierungsschritte diskutiert.

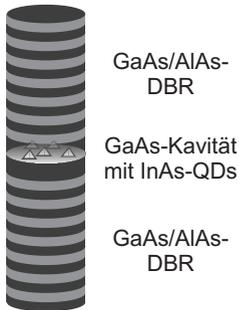


Abbildung 5.1: Schematische Darstellung eines GaAs-Säulenresonators mit eingebetteten Quantenpunkten.

Die in diesem Abschnitt vorgestellten Optimierungen in der Herstellung und die optischen Messungen an den Resonatoren wurden gemeinsam mit Florian Stockmar und Christoph Reinheimer im Rahmen ihrer Diplomarbeiten durchgeführt [70, 90].

Eine schematische Darstellung eines GaAs-basierten Säulenresonators ist in Abb. 5.1 gegeben. Die Struktur wird mittels Molekularstrahlepitaxie (*engl.* MBE \rightarrow *molecular beam epitaxy*) gewachsen. Die hochreflektierenden Braggspiegel (*engl.* DBRs \rightarrow *Distributed Bragg Reflectors*) bestehen aus aufeinanderfolgenden ($\lambda_0/4n$)-Schichten aus GaAs und AlAs, wobei λ_0 die Resonanz- oder Designwellenlänge des Resonators und n den Brechungsindex des jeweiligen Materials beschreiben. Genau auf der Mitte der λ_0 -Kavität werden die Quantenpunkte positioniert. Da die Kavität selbst aus GaAs besteht

und dieses einen höheren Brechungsindex aufweist als jeweils die erste AlAs-Schicht der beiden Braggspiegel, befindet sich dort das Intensitätsmaximum der optischen Mode. Zur besseren Auskopplung des Lichts durch den oberen Braggspiegel wurde dieser in der Regel mit weniger Paaren (meist 32) als der untere (≥ 35) hergestellt. Um auch einen Lichteinschluss senkrecht

zur Wachstumsrichtung zu erhalten, wird dann ein Säulenresonator mittels fokussiertem Ionenstrahl aus dem Schichtsystem herausgeschnitten. So wird die Quantenpunktemission nicht nur durch die Braggspiegel, sondern auch durch den Brechungsindexkontrast an den Seitenwänden des Säulenresonators eingeschlossen.

5.2.1 Optimierung des MBE-Wachstums

Die erste naheliegende Möglichkeit, die Güte der Säulenresonatoren zu optimieren, ist die Anzahl der Spiegelpaare in den Braggspiegeln um die Kavität zu erhöhen. Bereits vorher wurde versucht, die Anzahl der unteren Spiegelpaare von ursprünglich 25 auf 36 und die der oberen von 20 auf 32 zu erhöhen [46]. Dabei stellte sich heraus, dass die spektrale Position der Grundmode nicht zu den angestrebten Schichtdicken passte. Entsprechend fielen auch die Resonatorgüten geringer als erwartet aus. Dies mag zum Teil darin begründet sein, dass sich die Wachstumszeit durch die größere Zahl an Spiegelpaaren um ca. 4 Stunden verlängerte. Es mussten daher Verbesserungen insbesondere hinsichtlich der Bestimmung der Wachstumsraten vorgenommen werden, die im Weiteren erläutert werden sollen.

Ein sehr einfaches Werkzeug zur Bestimmung der Wachstumsrate während des MBE-Wachstums ist die Messung von RHEED-Oszillationen (*engl.* RHEED \rightarrow *Reflection High-Energy Electron Diffraction*). Diese Oszillationen sind Intensitätsschwankungen von Punkten im Beugungsbild der RHEED-Elektronen, die unter geeigneten Bedingungen jeweils bei Vervollständigung einer neuen Monolage ein Maximum aufweisen [96]. Meist können diese Oszillationen jedoch nur am Beginn des Wachstums für einige Monolagen (in unserem Fall ca. 20–30) beobachtet werden. Das bedeutet, dass für 68 Braggspiegelpaare von insgesamt ca. 11 μm Dicke die Wachstumszeiten anhand des anfänglichen Wachstums von nur 7 nm Material extrapoliert werden. Man bestimmt also die Wachstumszeit anhand eines 1500stel der Dicke der gesamten Struktur. Das Fehlerrisiko ist daher entsprechend groß.

Eine weitere Möglichkeit bietet das Messen des Materialflusses aus den Effusionszellen mit Hilfe eines Druckmesskopfes. Der zum Fluss äquivalente Druck (*engl.* BEP \rightarrow *beam equivalent pressure*) kann dann vor dem Wachstum einer Kalibrationsprobe gemessen und die Schichtdicke nachträglich auf anderem Wege bestimmt werden. Vor dem Wachstum der Braggspiegel kann dann der BEP entsprechend eingestellt werden. Diese Methode kann allerdings nur unter absolut identischen Umgebungsbedingungen funktionieren, da z.B. Änderungen der Substrattemperatur oder des Hintergrunddrucks die tatsächliche Wachstumsrate beeinflussen können. Zudem hängt der BEP immer auch von der Materialmischung ab, die sich auf dem Messkopf absetzt. Man bekommt also, wenn man erst den Arsenfluss und dann den Gallium-

fluss misst, häufig leicht unterschiedliche Werte im Vergleich zum umgekehrten Fall. Die Genauigkeit bewegt sich bei dieser Methode auch nur etwa im 5%-Bereich – natürlich abhängig vom Benutzer.

Es stellte sich heraus, dass die reproduzierbarsten Ergebnisse erzielt wurden, wenn nach einigen Braggspiegelpaaren am Anfang des Wachstums immer wieder die Wachstumsrate bestimmt wurde, bis diese einen konstanten Wert annahm. Aus dem Mittel der letzten Wachstumsraten konnte dann ein Wert bestimmt werden, der reproduzierbar die richtige Wachstumsrate lieferte. Alternativ können auch die *Shutter* (Blenden hinter den Effusionszellen) für längere Zeit (ca. 30 min) mit abschließender Bestimmung der Wachstumsrate offengehalten werden, was sich in der Praxis allerdings als schwierig erweist, weil man dadurch zwangsweise Material aufwächst. Die Fehler in der Bestimmung der Wachstumsrate zeigen sich deutlich, wenn der obere und der untere Braggspiegel mit Unterbrechung gewachsen wurden, wobei am Anfang des jeweiligen Wachstums die Rate bestimmt wurde (siehe Abb. 5.2).

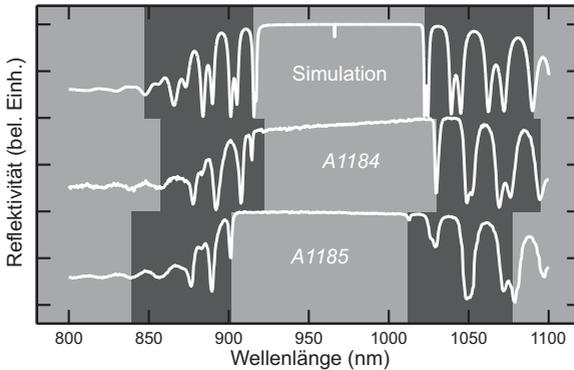


Abbildung 5.2: Reflexionsmessung an zwei Bragg-Kavitäten, die auf dem selben unteren Braggspiegel gewachsen wurden. Einmal wurde direkt mit den selben Parametern Kavität und oberer Braggspiegel aufgewachsen (Probe *A1184*), das andere Mal wurde die Wachstumsrate vor dem Wachstum am ersten Braggspiegelpaar neu bestimmt (Probe *A1185*). Als Vergleich wurde die erwartete Reflexivität mit der Software *Scout* simuliert. Das Augenmerk liegt hierbei besonders auf den Oszillationen in den Seitenbändern des Braggspiegels, die dunkel unterlegt sind. Der letzte Einbruch der Reflexivität vor dem Stoppband im linken Seitenband konnte bei der Probe *A1184* nicht aufgelöst werden, man erkennt aber dennoch deutlich die bessere quantitative und qualitative Übereinstimmung des Reflexionsspektrum zur Simulation im Vergleich zur Probe *A1185*. Der leichte Anstieg im Reflexionsplateau ist messbedingt.

5.2.2 Optimierung der FIB-Strukturierung

Das in Ref. [46] eingeführte Herausfräsen der Säulenresonatoren mittels fokussiertem Ionenstrahl (*engl.* FIB \rightarrow *focussed ion beam*) besteht aus einem ersten groben Fräsen und einigen darauffolgenden Polierschritten, wobei die Säulen in kleiner werdenden Kreisen von außen nach innen gefräst wurden. Um möglichst glatte Außenwände zu erhalten, sollte der finale Polierschritt mit höchstmöglicher räumlicher Auflösung und sehr geringem Ionenstrom vollzogen werden. Hierbei darf allerdings nicht außer Acht gelassen werden, dass die Stabilität des Positioniertisches in der zur Verfügung stehenden Anlage eine Genauigkeit von 100 nm über einen Zeitraum von Stunden nicht gewährleistet. Da das Polieren mit niedrigen Strömen sehr viel Zeit in Anspruch nimmt, musste auch die Schreibzeit optimiert werden.

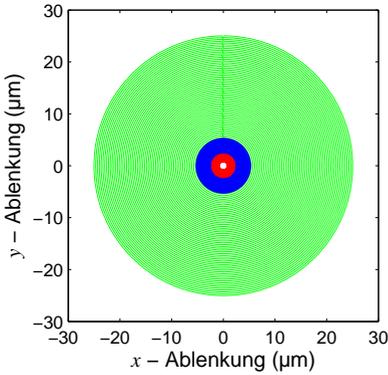
Um die räumliche Auflösung des Ionenstrahls optimal auszunutzen, wurde das Schreibverfahren umgestellt. Anstatt die Kreise über eine bestimmte Anzahl von Punkten zu definieren, die mit Geraden interpoliert werden, wurde direkt Punkt für Punkt geschrieben. Der Abstand zwischen zwei benachbarten Punkten war dabei kleiner als der Ionenstrahldurchmessers (siehe Tab. 5.1). Zudem wurden nur noch zwei Polierschritte durchgeführt und deren Länge auf ein sinnvolles Maß reduziert. Da die Ausrichtung des Ionenstrahls für verschiedene Blenden nicht exakt übereinstimmt, musste bei Wechsel der Blenden, also Änderung des Ionenstroms, immer ein gewisser Überlapp mit einkalkuliert werden. In Abb. 5.3 ist ein entsprechendes Schreibfeld für einen Säulendurchmesser von $1,5 \mu\text{m}$ dargestellt.

Die Qualität der Außenwände nach dem Polierschritt kann anhand der rasterelektronenmikroskopischen Aufnahme in Abb. 5.4 überprüft werden. Die Oberflächen weisen keine erkennbare Rauigkeit auf, was für eine sehr gute räumliche Auflösung des Ionenstrahls als auch ausreichend lange Polierschritte spricht. Die Qualität der Oberfläche in Bezug auf Kristalldefekte kann hier jedoch nicht überprüft werden.

5.2.3 Experimentelle Bestimmung der Resonatorgüte

Zur Bestimmung der Resonatorgüte Q werden Lorentzkurven (vgl. Gl. 2.6) an die Moden eines gemessenen Lumineszenzspektrums angepasst. Der Gütefaktor $Q = \omega_0 / \Delta\omega$ wird dann aus dem Verhältnis der Resonanzfrequenz ω_0 und der Halbwertsbreite $\Delta\omega$ berechnet. In Abb. 5.5 ist das Lumineszenzspektrum eines Säulenresonators mit $6,6 \mu\text{m}$ Durchmesser zu sehen. Die Probe wurde mit den in den vorherigen Abschnitten diskutierten Verbesserungen hergestellt.

Für Moden, deren Halbwertsbreiten nahe am Auflösungsvermögen des Spektrometers liegen, müssen letztere jedoch korrigiert werden. Das Auflösungsver-



Ionenstrom	Schrittweite
5 nA	350 nm
2 nA	120 nm
1 nA	85 nm
500 pA	60 nm
200 pA	40 nm
100 pA	27 nm
50 pA	20 nm

Abbildung 5.3: Darstellung der zu beschreibenden Punkte für verschiedene Ionenströme von 5 nA und einem Radius von 25–27,75 μm (grün), 200 pA mit einem Radius von 5,25–1,25 μm (blau) und 50 pA mit einem Radius von 2,25–0,75 μm (rot) für einen Säulenresonator von 1,5 μm Durchmesser.

Tabelle 5.1: Abstand zwischen zwei benachbarten Punkten in Abhängigkeit der zur Verfügung stehenden Ionenströme.

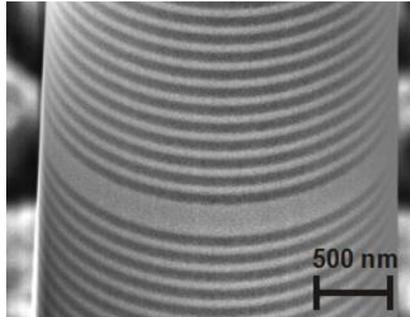


Abbildung 5.4: Rasterelektronenmikroskopische Aufnahme einer säulenförmigen Kavität nach zwei Polierschritten (Probe *A0492a*). Im Rahmen der Auflösung ist keine Oberflächenrauigkeit sichtbar.

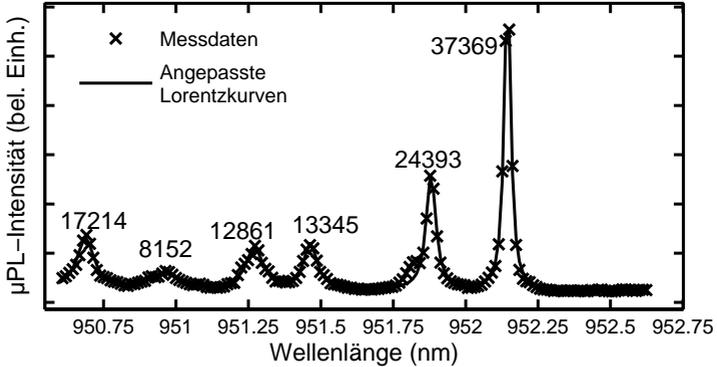


Abbildung 5.5: Lumineszenzspektrum eines Pillars mit $6,6 \mu\text{m}$ Durchmesser bei 9 K (Probe *A1184b-07*). An die einzelnen Moden wurden Lorentzkurven angepasst. Die daraus resultierenden Q -Faktoren sind bei den Peaks vermerkt. Der Q -Faktor der Grundmode ist bereits auflösungslimitiert.

mögen des verwendeten Spektrometers wurde durch die Halbwertsbreite von Neon-Eichlinien im spektralen Bereich der Resonatormoden bestimmt. Da die Eichlinien viel schmäler sind als das Auflösungsvermögen des Spektrometers, kann die IRF (*engl.* IRF \rightarrow *instrument response function*) des Spektrometers bestimmt werden. Im Prinzip kann die IRF benutzt werden, um die anzupassenden Lorentzkurven zu entfalten und so die korrekte Halbwertsbreite der Moden zu erhalten. In der Praxis stellte sich dieses Verfahren jedoch als sehr instabil heraus. Viel reproduzierbarer ist es hingegen, die IRF so wie den spektralen Verlauf der optischen Mode über Gauß-Verteilungen anzunähern, da zwei miteinander gefaltete Gauß-Verteilungen mit den Halbwertszeiten $\Delta\omega_{\text{IRF}}$ und $\Delta\omega_{\text{Mode}}$ wieder eine Gauß-Verteilung mit der Halbwertsbreite $\sqrt{(\Delta\omega_{\text{IRF}})^2 + (\Delta\omega_{\text{Mode}})^2}$ ergeben. Die eigentliche Halbwertsbreite einer Mode ist dann also gegeben durch:

$$\Delta\omega_{\text{Mode}} = \sqrt{(\Delta\omega_{\text{Messung}})^2 - (\Delta\omega_{\text{IRF}})^2}. \quad (5.1)$$

Da die Faltung zweier Lorentzkurven ebenfalls eine Lorentzkurve ergibt, deren Halbwertsbreite der Summe der ursprünglichen Halbwertsbreiten entspricht, kann man als sinnvolle Fehlergrenzen die eigentlich gemessene Halbwertsbreite $\Delta\omega_{\text{Messung}}$ für das obere und die Differenz der beiden Halbwertsbreiten $\Delta\omega_{\text{Messung}} - \Delta\omega_{\text{IRF}}$ für das untere Limit der tatsächlichen Halbwertsbreite $\Delta\omega_{\text{Mode}}$ abschätzen. Für das hier verwendete *DoppelSpex*-Spektrometer wurde bei $\lambda_0 = 950 \text{ nm}$ $\Delta\lambda_{\text{IRF}} \approx \Delta\omega_{\text{IRF}} \lambda_0 / \omega_0 = (21 \pm 4) \text{ pm}$ bestimmt.

5.2.4 Abhängigkeit der Resonanzwellenlänge vom Säulendurchmesser

Die Intensitätsverteilungen der optischen Moden in einem Säulenresonator lassen sich in radialer Richtung analog zum Stufenindexmodell einer Glasfaser beschreiben [46]. Hierbei ist die radiale Intensitätsverteilung durch das Quadrat der Besselfunktion 1. Art $J_0^2(k_T(d_0) r)$ gegeben. Die Intensitätsverteilung $e^{\pm\beta z}$ in z -Richtung (Rotationsachse der Faser) sollte von einer Änderung des Radius nicht beeinflusst sein und ist durch die Propagationskonstante β bestimmt. Überträgt man dieses Modell auf eine Kavität der Dicke λ_{cav} gilt $\beta = 2\pi/\lambda_{\text{cav}}$. Die Resonanzwellenlänge λ_0 einer optischen Mode setzt sich dann aus den beiden Wellenvektoren $k_T(d_0)$ und β zusammen:

$$\lambda_0 = n_{\text{cav}} \left(\beta^2 + k_T(d_0)^2 \right)^{-1/2} \quad (5.2)$$

$k_T(d_0)$ kann mit einer geeigneten Software numerisch berechnet werden. Da $k_T(d_0)$ eine Resonanzbedingung zwischen den Seitenwänden der Kavität beschreibt, ist allerdings davon auszugehen, dass sie für $d_0 > \lambda_{\text{cav}}$ trivial über $k_T(d_0) \propto d_0^{-1}$ mit dem Säulendurchmesser skaliert. In Abb. 5.6 sind die experimentell bestimmten Resonanzwellenlängen $\lambda_0(d_0)$ (Ringe) in Abhängigkeit des Säulendurchmessers d_0 , sowie Simulationsergebnisse (Kreuze), die mit dem Softwarepaket Comsol[®] in Ref. [46] simuliert wurden, aufgetragen. Die durchgehende Linie zeigt eine Kurvenanpassung an die experimentellen Daten, die den Fall einer linearen Abhängigkeit des Wertes $k_T(d_0)$ vom Durchmesser d_0 voraussetzt. Demnach gälte für die Resonanzwellenlänge $\lambda_0(d_0)$:

$$\lambda_0(d_0) = \left(\frac{1}{n_{\text{cav}}^2 \lambda_{\text{cav}}^2} + \frac{\delta_0^2}{d_0^2} \right)^{-\frac{1}{2}} \quad (5.3)$$

$$k_T(d_0) = \frac{2\pi n_{\text{cav}}}{d_0} \delta_0 \quad (5.4)$$

Wie an der entsprechenden Kurvenanpassung in Abb. 5.6 (durchgezogene Linie) zu sehen ist, beschreibt Gl. 5.3 die Abhängigkeit der Resonanzwellenlänge vom Säulendurchmesser perfekt. Insbesondere bedeutet dies auch, dass $k_T(d_0) r_0$, unabhängig vom Durchmesser eines Pillars, eine Konstante ist und damit auch der Funktionswert der Besselfunktion $J_0(k_T(d_0) r)$ am Rand r_0 des Resonators.

5.2.5 Theoretische Modellierung der Resonatorgüte in Abhängigkeit des Säulendurchmessers

In optischen Resonatoren gibt es verschiedene Verlustmechanismen, die je nach Art und Geometrie des Resonators seine Güte limitieren können. Da

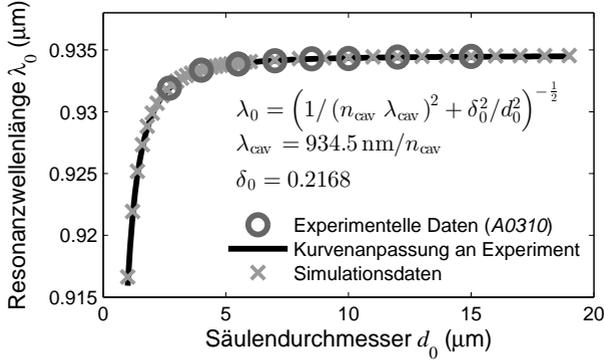


Abbildung 5.6: Abhängigkeit der Resonanzwellenlänge λ_0 vom Durchmesser d_0 eines Resonators. Die Ringe markieren experimentell bestimmte Daten (Probe *A0310*), die Kreuze Simulationsdaten aus [46]. Die durchgezogene Linie zeigt eine Kurvenanpassung gemäß Gl. 5.3 an die experimentell bestimmten Daten. Alle drei Kurven zeigen eine perfekte Übereinstimmung.

für das Erreichen einer starken Kopplung zwischen optischem Resonator und Emittor das Verhältnis Q^2/V_{Mode} optimiert werden muss [16], ist die Abhängigkeit der Resonatorgüte Q vom Modenvolumen V_{Mode} von großer Bedeutung. Im folgenden Abschnitt wird daher ein Modell hergeleitet, das den Q -Faktor eines Säulenresonators in Relation zu seinem Durchmesser setzt.

Bei Säulenresonatoren wird gewöhnlich nur der Radius der Kavität geändert, nicht aber der Abstand zwischen den beiden Braggspiegeln. Dass die Form der Intensitätsverteilung $I(r, \phi, z) = J_0^2(k_T r) I_\phi(\phi) I_z(z)$ direkt mit dem Durchmesser d_0 skaliert, wissen wir gemäß Gl. 5.4, da gilt $k_T \propto d_0^{-1}$. Das Modenvolumen hängt also unter Vernachlässigung des radiativen Anteils durch

$$\begin{aligned}
 V_{\text{Mode}} &:= \frac{1}{I_{\text{max}}} \int_V I(r, \phi, z) dV \\
 V_{\text{Mode}} &= \left(\int_0^{r_0} J_0^2(k_T r) r dr \right) \left(\int_0^{2\pi} \int_0^{z_0} I_\phi(\phi) I_z(z) d\phi dz \right) \\
 &= \frac{r_0^2}{2} (J_0^2(\delta_0/2) + J_1^2(\delta_0/2)) I_{\phi,z} \quad (5.5)
 \end{aligned}$$

vom Radius r_0 eines Resonators ab, mit δ_0 gemäß Gl. 5.4, der Höhe z_0 des Resonators und $I_{\text{max}} = 1$. Folglich skaliert das Modenvolumen, wie das Volumen des Resonators, mit r_0^2 .

Die durchmesserabhängige Resonatorgüte $Q(d_0) = \omega_0(d_0)\tau(d_0)$ kann dann aus dem zeitlichen Abklingen der im Resonator gespeicherten optischen Energie

$$E_{\text{ges}}(t) = E_0 e^{-t/\tau(d_0)} \int_V I(r, \phi, z) dV$$

berechnet werden. Als mögliche Verluste kommen dabei im Wesentlichen die lineare Materialabsorption, Reflexions- und Beugungsverluste an den Braggspiegeln, sowie Reflexions-, Streu- und Absorptionsverluste durch Defekte bzw. Unebenheiten an den Außenwänden der Kavität in Frage. Diesen drei Verlustmechanismen können jeweils die inversen Verlustraten τ_{abs} , τ_{Bragg} und τ_{surf} zugeordnet werden. Der zeitliche Verlauf der gespeicherten Energie lässt sich so durch eine einfache Differentialgleichung beschreiben:

$$\frac{\partial}{\partial t} E_{\text{ges}}(t) = -\frac{1}{\tau_{\text{abs}}} E_{\text{ges}}(t) - \frac{1}{\tau_{\text{Bragg}}} (E_{\text{Bragg},1}(t) + E_{\text{Bragg},2}(t)) - \frac{1}{\tau_{\text{surf}}} E_{\text{surf}}(t) \quad (5.6)$$

$E_{\text{Bragg},1}(t)$ und $E_{\text{Bragg},2}(t)$ stehen hierbei für die Feldenergien an den effektiven Positionen z_1 und z_2 des oberen und unteren Braggspiegels, für die gilt:

$$\begin{aligned} E_{\text{Bragg},i}(t) &= E_0 e^{-t/\tau(d_0)} \int_0^{2\pi} \int_0^{r_0} I(r, \phi, z_i) r dr d\phi \\ &= \frac{I_z(z_i)}{\int_0^{z_0} I_z(z) dz} E_{\text{ges}}(t) \end{aligned} \quad (5.7)$$

$E_{\text{surf}}(t)$ bezieht die Feldenergie in einem effektiven Volumen $2\pi r_0 z_0 \Delta r$ an den Außenwänden des Resonators, in dem oberflächenbedingte Verluste auftreten. Hierfür ergibt sich:

$$\begin{aligned} E_{\text{surf}}(t) &= E_0 e^{-t/\tau(d_0)} \int_0^{2\pi} \int_0^{z_0} \int_{r_0-\Delta r}^{r_0} I(r, \phi, z) r dr dz d\phi \\ &= \frac{\int_{r_0-\Delta r}^{r_0} J_0^2(k_T r) r dr}{\int_0^{r_0} J_0^2(k_T r) r dr} E_{\text{ges}}(t) \end{aligned} \quad (5.8)$$

Damit lässt sich aus Gl. 5.6 die Abhängigkeit der Abklingzeit τ einer Mode vom Durchmesser d_0 einer Kavität berechnen:

$$\begin{aligned} \frac{1}{\tau} &= \frac{1}{\tau_{\text{abs}}} + \frac{1}{\tau_{\text{Bragg}}} \frac{I_z(z_i)}{\int_0^{z_0} I_z(z) dz} + \frac{1}{\tau_{\text{surf}}} \frac{\int_{r_0-\Delta r}^{r_0} J_0^2(k_T r) r dr}{\int_0^{r_0} J_0^2(k_T r) r dr} \\ &= \frac{1}{\tau_{\infty}} + \frac{1}{\tau_{\text{surf}}} \nu_{\text{surf}}(d_0) \end{aligned} \quad (5.9)$$

Für $\Delta r \rightarrow 0$ wird der vom Durchmesser der Kavität abhängige Term $\nu_{\text{surf}}(r_0)$ proportional zu d_0^{-1} . Dies gilt jedoch nur, solange das Argument der Besselfunktion $J_0(k_t r_0) = J_0(\pi n_{\text{cav}} \delta_0)$ nicht zu nahe an einer der Nullstellen $j_{0,i}$ der Besselfunktion liegt. Da aber eigentlich erwartet wird, dass bei gutem Lichteinschluss der Wert $\pi n_{\text{cav}} \delta_0$ zumindest in der Nähe einer Nullstelle liegt, ist es sinnvoll, die radiale Intensitätsverteilung $I_r(r)$ in Abhängigkeit der Differenz $\Delta j_{0,i} = j_{0,i} - \pi n_{\text{cav}} \delta_0$ zu dieser Nullstelle zu beschreiben. Für die radiale Intensität lässt sich dann schreiben:

$$I_r(r) = J_0^2((j_{0,i} - \Delta j_{0,i}) r / r_0)$$

Der durchmesserabhängige Term $\nu_{\text{surf}}(r_0)$ enthält nun also mit Δr und $\Delta j_{0,i}$ zwei mehr oder weniger infinitesimale Größen, nach denen dieser Term entwickelt werden kann. In experimentellen Messungen von Bedeutung ist meist die sog. Grundmode. Sie wird durch eine Besselfunktion beschrieben, deren erste Nullstelle $j_{0,0}$ sich nahe des Randes r_0 der Kavität befindet. Daher liegen für die Abhängigkeit der Resonatorgüte Q dieser Mode vom Säulendurchmesser auch die meisten Daten vor. Entwickelt man nun $\nu_{\text{surf}}(r_0)$ in 2. Ordnung um $\Delta j_{0,0} \rightarrow 0$ und in 3. Ordnung um $\Delta r \rightarrow 0$ erhält man drei Terme die je nach Größe von $\Delta j_{0,0}$ und Δr den Kurvenverlauf dominieren können:

$$\nu_{\text{surf}}(r_0) \rightarrow \frac{2\Delta r (\Delta j_{0,0})^2}{r_0} + \frac{2j_{0,0} (\Delta r)^2 \Delta j_{0,0}}{r_0^2} + \frac{2j_{0,0} (\Delta r)^3}{r_0^3} + \mathcal{O}(\Delta^4) \quad (5.10)$$

Ist die Intensität der Mode an den Außenwänden vernachlässigbar, wenn also $\Delta j_{0,0} \ll \Delta r / r_0$, sollte für nicht allzu kleine Radien der Term proportional zu r_0^{-3} dominieren. Gilt $\Delta j_{0,0} \approx \Delta r / r_0$, sollten alle drei Terme zu $\nu_{\text{surf}}(r_0)$ beitragen. Bei schlechterem Lichteinschluss bzw. $\Delta j_{0,0} \gg \Delta r / r_0$ sollte der Term proportional zu r_0^{-1} dominieren. Welche Terme dominieren, lässt sich nur im Vergleich zum Experiment herausfinden.

Mit den Gleichungen 5.9 und 5.10 lässt sich nun die Abhängigkeit der Resonatorgüte Q vom Säulendurchmesser d_0 berechnen:

$$Q := \omega_0 \tau$$

$$Q(d_0) = \omega(d_0) \left(\frac{1}{\tau_\infty} + \frac{q^{(1)}}{d_0} + \frac{q^{(2)}}{d_0^2} + \frac{q^{(3)}}{d_0^3} \right)^{-1} \quad (5.11)$$

Dabei ist $\omega(d_0)$ die Resonanzwellenlänge der Grundmode einer Kavität mit Durchmesser d_0 , sowie τ_∞ , $q^{(1)}$, $q^{(2)}$ und $q^{(3)}$ resonatorspezifische Konstanten, die sich aus den Gleichungen 5.9 und 5.10 ergeben.

5.2.6 Verbesserung der Resonatorgüten durch optimierte Herstellung

Die im vorherigen Abschnitt hergeleitete Abhängigkeit der Güte Q der Grundmode eines Säulenresonators von seinem Durchmesser d_0 bietet ein hervorragendes Werkzeug, um die Verbesserungen in der Herstellung gegenüber vorherigen Proben zu quantifizieren. In Abb. 5.7 sind die experimentell bestimmten Q -Faktoren über den Durchmesser der Kavitäten für Proben aus Ref. [46] und der Probe *A1184a* aufgetragen, die mit dem in den Abs. 5.2.1 und 5.2.2 beschriebenen optimierten Verfahren hergestellt wurde. Für große Durchmesser ist eine deutliche Verbesserung der Q -Faktoren zu erkennen, die schon über

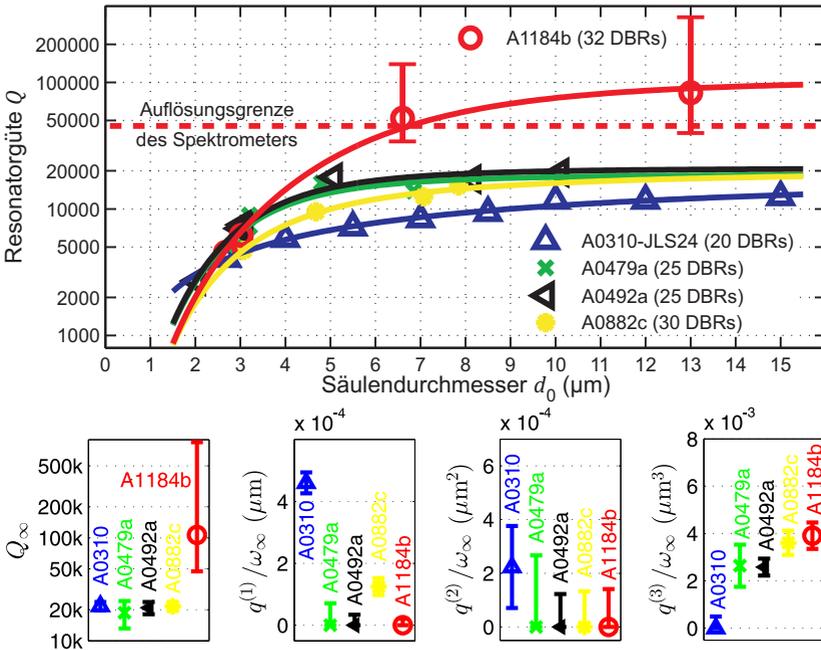


Abbildung 5.7: Abhängigkeit des Gütefaktors Q vom Säulendurchmesser für vier Proben (*A0310*, *A0479a*, *A0492a* und *A0882c*) aus Ref. [46] und die Probe *A1184b*, die gemäß dem optimierten Herstellungsverfahren (vgl. Abs. 5.2.1, 5.2.2) fabriziert wurde. Die durchgezogenen Linien zeigen Kurvenanpassungen von Gl. 5.11 an die Messdaten. Die Balkendiagramme zeigen die angepassten Parameter $Q_\infty = \tau_\infty \omega_\infty$, $q^{(1)}/\omega_\infty$, $q^{(2)}/\omega_\infty$ und $q^{(3)}/\omega_\infty$ in Relation zur Resonanzfrequenz ω_∞ der planaren Kavität.

das Auflösungsvermögen des Spektrometers hinausgehen. Für kleinere Durchmesser ist dagegen keine signifikante Verbesserung zu beobachten.

Diese eher niedrigen Q -Faktoren bei kleineren Durchmessern legen natürlich den Verdacht nahe, dass beim Fräsen der Säulen mittels fokussiertem Ionenstrahl zu viel Schaden an der Oberfläche der Kavität angerichtet wird. Dieser muss nicht unbedingt in mikroskopischen Aufnahmen sichtbar sein, sondern kann sich auch erst durch die optische Absorption an Oberflächendefekten zeigen. Der springende Punkt bei den abschließenden Polierschritten (vgl. Abs. 5.2.2) mit dem fokussierten Ionenstrahl ist nämlich, dass durch geringere Ionenströme die Oberflächenrauigkeit zwar gesenkt werden kann, die Energie der einzelnen Ionen jedoch immer die selbe ist und damit auch die Eindringtiefe in das Material. Das Polieren mit geringen Ionenströmen kann also die teilweise Zerstörung der Oberfläche durch die beschleunigten Ionen nur bedingt verhindern.

Untermauert wird diese These durch die Kurvenanpassungen des theoretischen Modells aus Gl. 5.11 an die experimentell bestimmten Q -Faktoren, die ebenfalls inklusive der angepassten Parameter in Abb. 5.7 dargestellt sind. Der asymptotische Wert $Q_\infty = \omega_\infty \tau_\infty$, der die Güte der planaren Kavität, also $r_0 \rightarrow \infty$, widerspiegelt, demonstriert die Früchte des verbesserten epitaktischen Wachstums. Q_∞ liegt für die Probe *A1184b* gut eine halbe Größenordnung über dem Wert bisheriger Proben. Beim Vergleich der durchmesserabhängigen Terme zeigt sich jedoch ein anderes Bild. Bis auf die älteste Probe *A0310* zeigen alle eine dominierende Abhängigkeit von d_0^{-3} . Dies spricht für einen guten Lichteinschluss an den Außenwänden. Bemerkenswert ist dabei, dass bei der ältesten Probe *A0310* die Außenwände der Kavität noch bedeutend rauer waren, da kaum Polierschritte verwendet wurden. Entsprechend dominiert hier der Term proportional zu d_0^{-1} , was für schlechteren Lichteinschluss an den Außenwänden spricht. Dies könnte durch größere Streuung des Lichts an der Oberfläche oder einen durch die Rauigkeit verursachten geringeren effektiven Brechungsindex an der Oberfläche zustande gekommen sein.

5.2.7 Vergleich der Resonatorgüten mit Literaturwerten

Da auch mit den besten Resonatoren die für starke Kopplung notwendige Marke von einer Resonatorgüte $Q = 7000$ bei einem Durchmesser $d_0 = 1,5 \mu\text{m}$ [16] nicht erreicht werden konnte, wurden zum Vergleich die Daten aus zwei Veröffentlichungen von Rivera *et al.* [97] und Reizenstein *et al.* [98] extrahiert und mit dem Modell aus Gl. 5.11 angepasst (Abb. 5.8). Die Resonatoren in den beiden Veröffentlichungen unterscheiden sich prinzipiell nicht in ihrer Herstellungsmethode. In beiden wird nicht wie in dieser Arbeit ein fokussierter Ionenstrahl, sondern reaktives Ionenätzen verwendet, um die Säulen nach

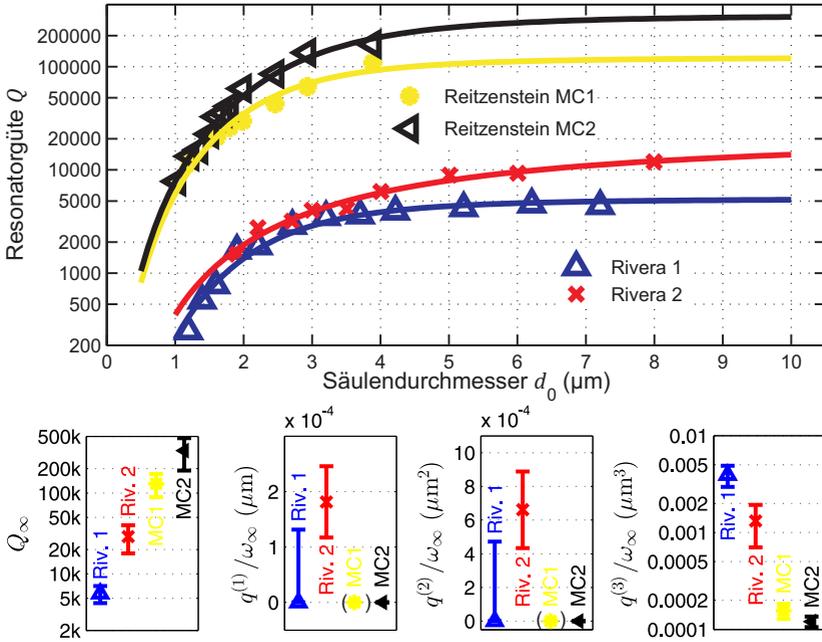


Abbildung 5.8: Abhängigkeit des Gütefaktors Q vom Säulendurchmesser d_0 für je zwei Proben aus Veröffentlichungen von Rivera *et al.* [97] (*Riv. 1, 2*) und Reitzenstein *et al.* [98] (*MC1, MC2*) zum Vergleich zu den in Abb. 5.7 gezeigten Resonatoren. Auch für die Literaturwerte passt das theoretische Modell aus Gl. 5.11 hervorragend. Für die Resonatoren hoher Güte Q , die mit reaktivem Ionenätzen hergestellt wurden, ist der Faktor $q^{(3)}$ des d_0^{-3} -abhängigen Terms aus Gl. 5.11 um mehr als eine Größenordnung kleiner als für die Resonatoren in Abb. 5.7, die mit fokussiertem Ionenstrahl herausgefräst wurden. Ohne die Güte der Kurvenanpassung (vgl. Tab. 5.2) merklich zu beeinflussen, mussten $q^{(1)}$ und $q^{(2)}$ für die Probe *MC1* künstlich auf null gehalten werden, da der Fit-Algorithmus sonst in ein absurdes Minimum fiel.

dem epitaktischen Wachstum herauszuzüchten. Allerdings verwenden Rivera *et al.* weniger Braggspiegelpaare, was sich in der Güte Q_∞ der planaren Kavität niederschlägt. Außerdem ist selbst bei einem der wahrscheinlich besseren elektronenmikroskopischen Aufnahmen (Abb. 5.9) noch immer eine ziemlich inhomogene Oberfläche zu erkennen (vgl. dazu insbesondere Abb. 5.4).

Für die Probe *Riv. 2* und zumindest anhand der Fehlergrenzen auch für die Probe *Riv. 1*, von der ein Pillar von $2,2\ \mu\text{m}$ in Abb. 5.9 gezeigt wird,

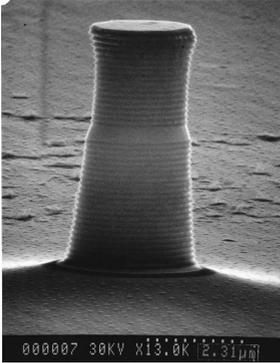


Abbildung 5.9: Elektronenmikroskopische Aufnahme eines Pillars mit nominell $2,2\ \mu\text{m}$ aus Ref. [97]. Die Außenwände sind sehr inhomogen geätzt.

Probe	R^2	Probe	R^2
A0310	0,99	Riv. 1	0,97
A0479a	0,83	Riv. 2	0,97
A0492a	0,98	MC1	0,96
A0882c	0,99	MC2	0,99
A1184b	0,99		

Tabelle 5.2: Güte R^2 für verschiedene Kurvenanpassungen der theoretischen Abhängigkeit (Gl. 5.11) des Q -Faktors vom Durchmesser der Kavität.

ist wieder eine nicht verschwindende Abhängigkeit des Q -Faktors von d_0^{-1} zu erkennen. Für die Resonatoren der Probe *MC2* von Reitzenstein *et al.*, an denen der noch bestehende Rekord Q -Faktor von 165 000 gemessen wurde, ist dahingegen eine klare Abhängigkeit von d_0^{-3} zu erkennen.

In den ursprünglichen Veröffentlichungen wurde ein abweichendes Modell für die Abhängigkeit des Q -Faktors vom Durchmesser d_0 der Kavität verwendet, die von Rivera *et al.* ohne Begründung vorgeschlagen und von Reitzenstein aufgegriffen wurde. Hier wurde der radiusabhängige Term $\nu_{\text{surf}}(r_0)$ aus Gl. 5.9 durch

$$\nu_{\text{surf}}(r_0) \propto J_0^2(k_T r_0)/r_0$$

beschrieben, mit experimentell bestimmten Werten für k_T und r_0 . Im Prinzip beschreibt dieser Term auch die Intensität am Rand des Resonators, es fehlt jedoch die Normierung auf die sich ebenso verändernde Gesamtenergie im Resonator. Zudem sollte das Argument $k_T r_0$ eigentlich konstant sein (vgl. Gl. 5.4 und 5.6), so dass $J_0^2(k_T r_0)$ im Wesentlichen nur durch Messungenauigkeiten variieren sollte. Zur Demonstration der Stichhaltigkeit des hier verwendeten Modells sind in Tab. 5.2 die Güten R^2 für die verschiedenen Kurvenanpassungen und Proben aufgelistet. Ein Wert $R^2 \approx 1$ steht dafür, dass das theoretische Modell die Daten sehr gut beschreibt.

Vergleicht man nun die bisher beste mit fokussiertem Ionenstrahl fabrizierte Probe *A1184b* mit den Rekordpillars von Reitzenstein *et al.*, kristallisiert sich heraus, dass die Güte der planaren Kavität zum Erreichen starker Kopplung ausreichen dürfte. Auch der Lichteinschluss an den Außenwänden der

Kavitäten scheint nach den Polierschritten und der Reduktion der Oberflächenrauigkeit stark verbessert zu sein, so dass sich dieselbe Abhängigkeit von d_0^{-3} ergibt wie für die Rekordresonatoren. Einzig die Stärke der Abhängigkeit von d_0^{-3} , für die der Faktor $q^{(3)}$ ein Maß ist, ist mehr als eine Größenordnung höher. Da also Oberflächenrauigkeit und schlechte Reflektivität der Braggspiegel für die niedrigeren Q -Faktoren bei kleinen Durchmessern ausscheiden, liegt der Schluss nahe, dass diese durch Absorption an den Oberflächen limitiert werden. Wahrscheinlich ist also, dass die Prozessierung mit fokussiertem Ionenstrahl weniger für die Herstellung von Resonatoren hoher Güte geeignet ist als reaktives Ionenätzen, da möglicherweise mehr absorbierende Defekte an der Oberfläche entstehen.

5.3 Überwachsene Pyramidenstümpfe

Im letzten Abschnitt wurden deutlich die Probleme dargestellt, die Absorption und Streuung an den Seitenwänden von Säulenresonatoren darstellen. Zu den Schwierigkeiten in der Herstellung qualitativ hochwertiger Oberflächen kommt noch ein zeitlicher Verfall der Strukturen durch Oxidation insbesondere der ALAs-Schichten. Daher wurde alternativ die Möglichkeit erdacht, Kavitäten mit abfallenden Seitenwänden herzustellen und diese mit einem Braggspiegel zu überwachen. Das hätte den großen Vorteil, die Oberflächen der Kavität zu schützen. Zudem war es möglich, solche Pyramidenstümpfe mit einem nasschemischen Ätzverfahren zu strukturieren, was schonender zu den Oberflächen ist als Trockenätzen.

Basierend auf den Arbeiten von Jaime Lupaca-Schomber, Matthias Karl, Frank M. Weber und Torsten Beck [46, 99–102] zur Herstellung von GaAs-Mikropyramiden wurde das Herstellungsverfahren in einer vorangegangenen Diplomarbeit entwickelt [94]. In der vorliegenden Arbeit wurden dann weitere Messungen in Bezug auf die Qualität des Wachstums mithilfe eines FIB-Schnittes durch das Schichtsystem und optische Messungen an den Kavitäten vorgenommen.

Im Folgenden werden das Herstellungsverfahren und die optischen Messungen an diesen Kavitäten erläutert und diskutiert. Die Herstellung besteht im Wesentlichen aus drei Schritten: (i) Dem anfänglichen Wachstum des Schichtsystems, (ii) dem Herausätzen der Pyramidenstümpfe und (iii) dem Überwachsen der Strukturen mit einem weiteren Braggspiegel [95].

5.3.1 Herstellung der Pyramidenstümpfe

Die Pyramidenstümpfe wurden in mehreren selektiven nasschemischen Ätzschritten hergestellt. Hierzu wurde zuerst ein Schichtsystem gewachsen, das

über dem unteren AlAs/GaAs-Braggspiegel eine 10 nm dicke AlAs-Ätzstoppschicht beinhaltet, die die untere Grenze des späteren Pyramidenstumpfes definiert. Danach wurde eine 2 μm dicke GaAs-Schicht mit zwei eingebetteten In(Ga)As-Quantenpunktschichten gewachsen, aus der die spätere Kavität geätzt wurde. Um definiert Facetten herauszuätzen, war zusätzlich eine 100 nm AlAs-Opferschicht und eine 500 nm GaAs-Deckschicht vonnöten (Abb. 5.10).

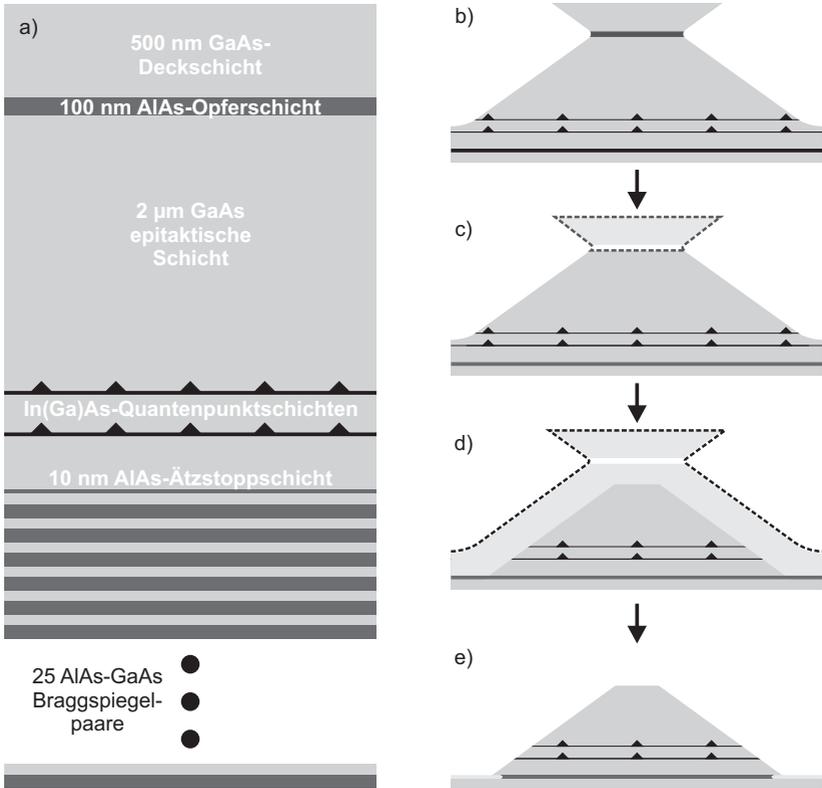


Abbildung 5.10: (a) Schichtsystem zur Herstellung von Pyramidenstümpfen. (b)–(e) Schrittweise Herstellung der Pyramidenstümpfe: (b) Facettenbildung mit der *Phosphorsäure* $1:1:8$, (c) Abtrennen der oberen Pyramide durch selektives Ätzen der AlAs-Opferschicht mit der *Phosphorsäure* $1:0.1:8$, (d) selektives Ätzen des GaAs-Pyramidenstumpfes mit der *Zitronensäure* $5:1$ bis zur AlAs-Stoppschicht und (e) Entfernen der Stoppschicht mit der *Phosphorsäure* $1:0.1:8$. Für die Säurebezeichnungen siehe Anhang A.1.

Ziel des anschließenden Ätzens war es, Pyramidenstümpfe mit $\{114\}$ A-Facetten zu erhalten, da diese mit besonders guter Qualität überwachsen werden konnten [94, 95]. Dazu wurden die Ätzmasken mit Kanten entlang der $\langle 110 \rangle$ - und $\langle 100 \rangle$ -Richtung wie in Abb. 5.11 mittels Elektronenstrahlithographie orientiert. Details zu den im folgenden erwähnten Ätzlösungen sind in Anhang A.1 zu finden.

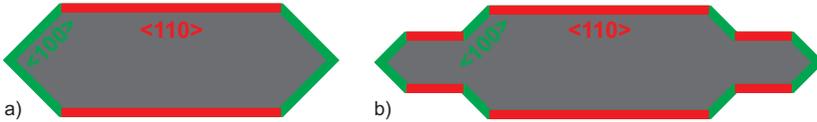


Abbildung 5.11: Masken zum Ätzen von Pyramidenstümpfen mit $\{114\}$ A-Facetten. Mit dem Design in (b) wurde versucht die Verjüngung graduell zu gestalten.

Im ersten Ätzschritt wurde mit der *Phosphorsäureätze 1:1:8* bis wenige 100 nm vor die AlAs-Ätzstoppschicht geätzt. Durch die unterschiedlichen Ätzraten in GaAs und der AlAs-Opferschicht wurden dabei, ausgehend von der Opferschicht, definiert Facetten mit einem Winkel von ca. 35° gebildet (Abb. 5.10b) [95, 101, 103, 104]. Danach wurde selektiv mit der *Phosphorsäureätze 1:0,1:8* die AlAs-Opferschicht durchätzt, so dass die Reste der GaAs-Deckschicht abgetrennt wurden (Abb. 5.10c). Um nun die Oberfläche des unteren Braggspiegels definiert freizulegen, wurde der zurückgebliebene Pyramidenstumpf selektiv mit der *Zitronensäureätze 5:1* bis zur AlAs-Ätzstoppschicht geätzt (Abb. 5.10d). Da die *Zitronensäureätze 5:1* anisotrop ätzt, wurden dabei exakt die fürs Überwachsen bevorzugten $\{114\}$ A-Facetten freigelegt. Diese waren durch das anisotrope Ätzen glatt und perfekt zum Kristall orientiert, was mit isotropem Ätzen so nicht möglich gewesen wäre. Abschließend wurde die AlAs-Stoppschicht selektiv mit der *Phosphorsäureätze 1:0,1:8* entfernt (Abb. 5.10e). Elektronenmikroskopische Aufnahmen von solchen naschemisch geätzten Kavitäten sind in Abb. 5.12 zu sehen.

5.3.2 Qualität der überwachsenen Braggspiegel

Bei den Versuchen, Pyramidenstümpfe verschiedener Kristallorientierung zu überwachsen, stellte sich heraus, dass die Braggspiegel bevorzugt und mit sehr hoher Qualität in $\langle 114 \rangle$ A-Richtung wachsen [94, 95]. Um die Qualität der überwachsenen Braggspiegel zu überprüfen, wurden Kavitäten mit einem fokussierten Ionenstrahl durchschnitten. Der Querschnitt einer solchen Kavität ist in Abb. 5.13 dargestellt. Während der obere Braggspiegel offensichtlich mit hoher Qualität gewachsen war, wurde der planare Teil des Braggspiegels jedoch immer schmaler, so dass die planare Oberfläche auf der Spitze des

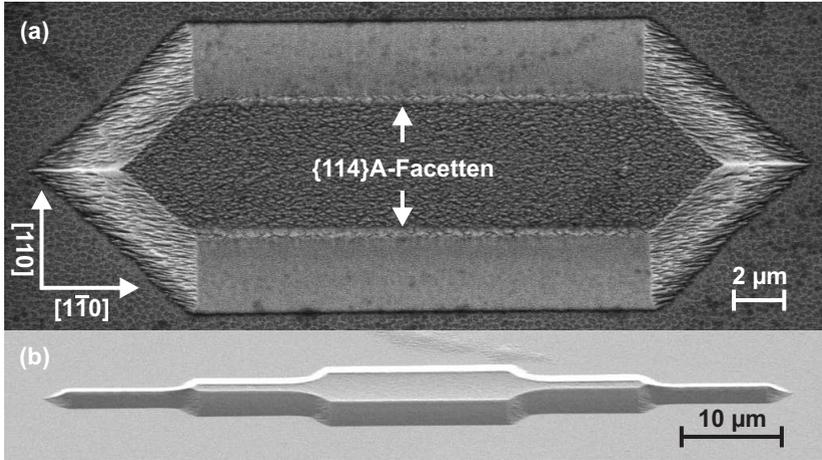


Abbildung 5.12: Elektronenmikroskopische Aufnahmen von nasschemisch geätzten Kavitäten mit $\{114\}A$ -Facetten [95] (Probe *A0793g*). Durch das anisotrope Ätzen mit der *Zitronensäureätze 5:1* (s. Anhang A.1) werden die $\{114\}A$ -Facetten mit perfekter Orientierung zum Kristall herausgeätzt.

Braggspiegels schmaler war als die eigentliche Kavität. Dieses Phänomen lässt sich geometrisch einfach anhand der Wachstumsraten auf den verschiedenen Kristallebenen erklären. Hierbei wird der Winkel Θ (s. Abb. 5.13) betrachtet, unter dem die Kante zwischen oberem Plateau und Facette in Wachstumsrichtung propagiert [105]. Zusammen mit den Winkeln α_1 und α_2 zwischen den Normalen zweier Facetten und der $[001]$ -Richtung kann dann auf die Wachstumsraten r_1 und r_2 in Richtung der Normalen geschlossen werden. Es gilt:

$$\frac{r_1}{r_2} = \frac{\cos(\alpha_1 + \Theta)}{\cos(\alpha_2 - \Theta)} \quad (5.12)$$

Mit $\alpha_{\{114\}A} = 20,5^\circ$, $\alpha_{\{001\}} = 0^\circ$ und dem in den elektronenmikroskopischen Aufnahmen bestimmten Propagationswinkel $\Theta \approx 8^\circ$ ergibt sich daraus im Rahmen der Messgenauigkeit ein Verhältnis $r_{\{114\}}/r_{\{001\}} = 1$. Generell ist es zwar wünschenswert, auf den unterschiedlichen Facetten die gleichen Wachstumsraten zu haben, andererseits kann durch das Schrumpfen des oberen Plateaus die Kavität vor dem Überwachsen nicht beliebig klein gewählt werden. Ansonsten würde der Lichteinschluss in Wachstumsrichtung durch den schrägen Braggspiegel zu sehr in Mitleidenschaft gezogen.

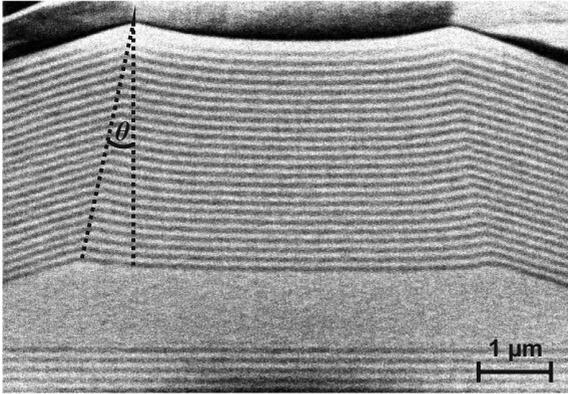


Abbildung 5.13: FIB-Schnitt durch eine überwachsene Kavität [95] (Probe A0793f). Die Kavität konnte mit hoher Qualität überwachsen werden. Der obere Braggspiegel wurde im Verlauf des Wachstums jedoch deutlich schmaler.

5.3.3 Optische Charakterisierung

Zur optischen Charakterisierung der Resonatoren wurden Mikrophotolumineszenzmessungen (μPL) durchgeführt. Hierfür wurde mit einem Titan:Saphir-Laser im Dauerstrichbetrieb knapp oberhalb der GaAs-Bandkante angeregt. Das Modenspektrum ist dann durch die Purcell-Verstärkung der Quantenpunktemission zu erkennen. Abb. 5.14 zeigt zwei μPL -Spektren für Kavitäten, wie sie in Abb. 5.12a und b dargestellt sind. Die spektrale Position der Grundmode, wie die Mode niedrigster Energie meist genannt wird, unterscheidet sich bei diesen Kavitäten kaum. Die Grundmoden haben einen Gütefaktor $Q \approx 3000$, während für Moden höherer Ordnung auch Q -Faktoren bis 8000 gemessen wurden.

Die Ausbeute in Bezug auf die Resonatorgüte war bei dieser Herstellung relativ hoch. Ca. 50% der Resonatoren zeigten vergleichbar hohe Q -Faktoren wie in Abb. 5.14. Jedoch galt dies nur für Kavitäten, deren planare Oberfläche vor dem Überwachsen mindestens eine Breite von ca. $4 \mu\text{m}$ besaßen. Die Verschlechterung der Resonatorgüten kann in diesem Fall auf das Schrumpfen des oberen Plateaus während des Überwachsens, wie in Abs. 5.3.2 beschrieben wurde, zurückgeführt werden. Auch für diese Resonatoren gibt es also wie für die Säulenresonatoren ein herstellungsbedingtes Limit in Bezug auf das Resonatorvolumen. Das Verhältnis aus Modenvolumen V_{Mode} und Güte Q kann daher nicht beliebig eingestellt werden, was zur Folge hat, dass es unwahrscheinlich ist, zwischen den Moden dieser überwachsenen Kavitäten und

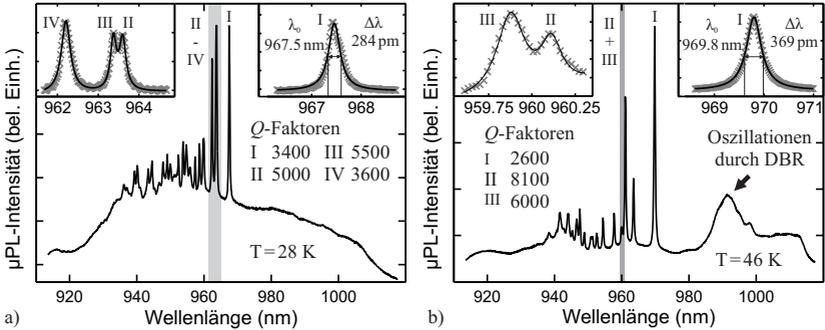


Abbildung 5.14: Mikrophotolumineszenzspektren zweier überwachener Kavitäten (Probe *A0793f*), wie sie in Abb. 5.12a und b dargestellt sind [95]. Die Position der Grundmode (niedrigste Energie) unterscheidet sich für die beiden Kavitäten kaum. Die Güten Q der Moden erreichen Werte von bis zu 8000.

den eingebetteten Quantenpunkten eine starke Kopplung zu beobachten.

5.4 Scheibenresonatoren

In den Abschnitten 5.2 und 5.3 wurden optisch aktive Resonatoren basierend auf den Halbleitern GaAs, AlAs und InAs vorgestellt. Seine hervorragenden optischen und elektrischen Eigenschaften haben dieses Materialsystem zum Paradebeispiel in Bezug auf quantenoptische Bauelemente gemacht. Obwohl es in vielen seiner Eigenschaften den Standardhalbleiter Silizium aussticht, wird es aufgrund der hohen Herstellungskosten und toxischen Eigenschaften bis heute jedoch industriell kaum verwendet. Für quantenoptische Experimente mit InAs-Quantenpunkten ist es außerdem notwendig, die Proben mit flüssigem Helium zu kühlen, da die Ladungsträger wegen der recht niedrigen Energiebarriere sonst aus den Quantenpunkten tunnelt.

Entsprechend wäre es wünschenswert, ein alternatives Materialsystem zur Verfügung zu haben, das sich durch geringere Herstellungs- und Betriebskosten auszeichnet. Daher wurde untersucht, ob sich kelchförmige Kunststoffresonatoren aus PMMA (Polymethylmethacrylat) mit eingebetteten kolloidalen Quantenpunkten zur Erforschung quantenoptischer Effekte eignen. Die Herstellung dieser Resonatoren gestaltet sich vergleichsweise einfach und ist in der Arbeitsgruppe etabliert [82]. Die erreichbaren Resonatorgüten Q von bis zu 10^6 sind dabei außerordentlich hoch. Kolloidale *Core/Shell*¹ Quanten-

¹*Core/Shell* bezieht sich hier auf Quantenpunkte, die einen Kern (*Core*) aus einem Material niedriger Bandlücke und einer Hülle (*Shell*) mit höherer Bandlücke besitzen.

punkte würden zudem eine hohe optische Quantenausbeute auch bei Raumtemperatur bieten und wären kommerziell verfügbar. Im Folgenden werden die Methoden und Ergebnisse zur Herstellung solcher quantenpunktdotierter Kunststoffresonatoren vorgestellt.

Die Herstellung der Resonatoren sowie alle optischen Messungen, die im folgenden Abschnitt vorgestellt werden, wurden von Felix Büchle im Rahmen seiner begleitenden Diplomarbeit durchgeführt [91]. Für die vorliegende Arbeit wurden jedoch genauere Auswertungen der Photolumineszenzspektren der aktiven Resonatoren und der PALM-Messungen an einzelnen Quantenpunkten vorgenommen, die entsprechend zu weiteren Ergebnissen führten. Auch die Herstellung und Charakterisierung der Mikrolaser im letzten Abschnitt ist der Arbeit von Felix Büchle zuzuschreiben, die allerdings in seiner Diplomarbeit nicht festgehalten werden konnten, da sie zeitlich hinter deren Fertigstellung fielen.

5.4.1 Herstellungsmethode

Die übliche Herstellungsmethode von passiven PMMA-Kelchresonatoren, wie sie im Wesentlichen von Tobias Grossmann und Mario Hauser in der Arbeitsgruppe entwickelt wurde [82], ist in Abb. 5.15 skizziert. Die Resonatoren wurden auf Basis eines PMMA-Lackes hergestellt. Der Kunststoff war mit 6% Feststoffgehalt in Anisol gelöst. Zu Beginn wurde der Lack aufgeschleudert, wobei die Viskosität des Lackes und die Drehzahl die Dicke der Lackschicht bestimmten. Damit konnte also auch die Dicke des späteren Resonators eingestellt werden. Da PMMA ein Positivlack ist, wurden dann die Flächen um die Resonatoren herum mit Elektronenstrahlithographie belichtet (Abb. 5.15i). Das hatte den Vorteil, dass der Lack im Bereich des Resonators nicht vom Elektronenstrahl beschädigt werden konnte. Nach dem Entwickeln in einem geeigneten Lösungsmittel (Abb. 5.15ii) wurden die zurückgebliebenen PMMA-Scheiben in XeF_2 -Gas unterätzt (Abb. 5.15iii). Durch Tempern nahe der Glasübergangstemperatur des Kunststoffs konnte die Oberflächenrauigkeit nochmals deutlich verringert werden. Die Verspannungen die beim Ausbacken des Lackes vor der Belichtung entstanden, verursachten zusätzlich, dass sich die Lackscheibe in dem unterätzten Bereich nach oben bog, was zu einem kelchförmigen Resonator führte.

Mit oben beschriebenem Verfahren konnten Kunststoffresonatoren mit hoher Güte reproduzierbar hergestellt werden. Für die Einbettung von Quantenpunkten in die Lackschicht wäre es jedoch von Vorteil, wenn der Lack mehrschichtig aufgetragen werden könnte. So wäre es möglich eine dünne quantenpunktdotierte Lackschicht oder direkt Quantenpunkte zwischen zwei

Quantenpunkte ohne *Shell* haben häufig eine geringere Quantenausbeute aufgrund von Rekombinationen an der Oberfläche.

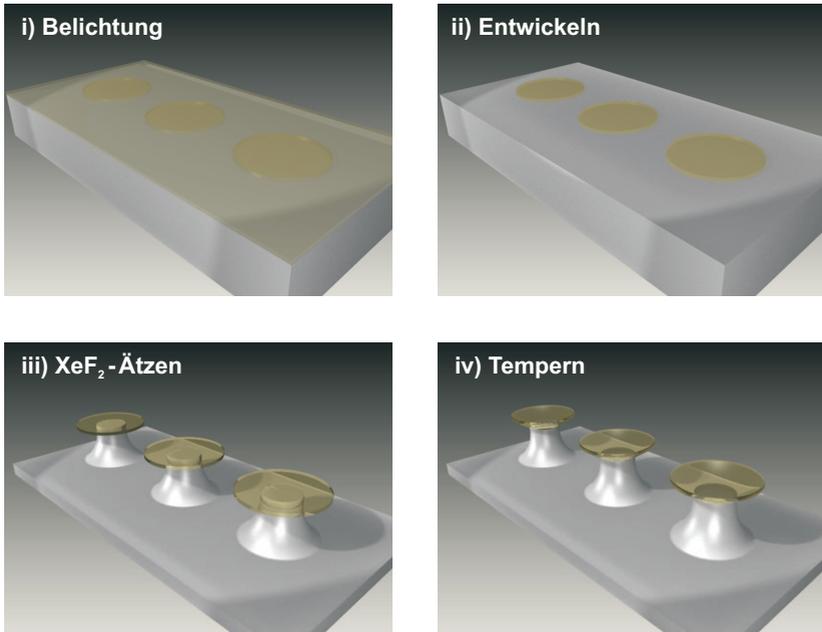


Abbildung 5.15: Die PMMA-Kelchresonatoren werden in vier Schritten hergestellt: (i) Belichtung des PMMA-Lackes, (ii) Entwicklung des Lackes, (iii) Unterätzen mit XeF_2 und (iv) Tempern bei der Glasübergangstemperatur. [82]

dickeren Lackschichten zu positionieren. Dadurch würde der Einfluss der Quantenpunkte auf die Qualität der PMMA-Schicht geringer als bei einer komplett dotierten Schicht. Zudem könnte man die Quantenpunkte so automatisch im Maximum der optischen Moden positionieren. Anisolbasiertes PMMA ist für diese Zwecke allerdings nicht geeignet, da bereits ausgehärteter Lack von dem Lösungsmittel einer weiteren Lackschicht wieder aufgelöst werden würde. Daher wurden Versuche unternommen, ob alternativ dazu ein PMMA/MA-Copolymerlack (AR-P 617.06 von *ALLRESIST*) ebenfalls dazu geeignet ist optisch hochwertige Resonatoren herzustellen. Letzterer wird erst bei 190°C in PMMA umgewandelt und löst sich dann nicht mehr in dem Lösungsmittel des ursprünglichen Lackes. Durch die sehr hohe Temperatur beim Ausbacken ist das PMMA zudem thermisch stabiler. Es zeigte sich jedoch, dass sich die Resonatoren bei Erreichen der Glasübergangstemperatur (bei diesem Kunststoff laut Hersteller ca. 150°C) nicht mehr zu Kelchen aufstellten (vgl. Abb. 5.16). Dies sollte optisch jedoch keine Nachteile bringen.

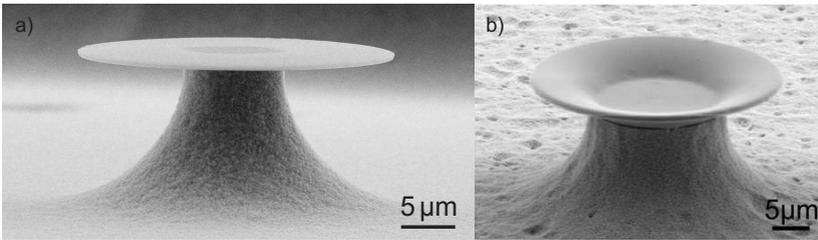


Abbildung 5.16: Scheibenresonatoren nach dem Tempern bei der Glasübergangstemperatur von (a) PMMA/MA (150°C) und (b) anisolbasiertem PMMA [106] (120°C). Nur in (b) ist das Aufstellen der Lackränder zu einem Kelch zu beobachten.

5.4.2 CdSe/ZnS-Quantenpunkte

CdSe/ZnS-Quantenpunkte finden insbesondere als Markerfarbstoff in der Biologie eine breite Anwendung. Daher sind sie kommerziell erhältlich und müssen nicht aufwändig im eigenen Labor synthetisiert werden. Die Quantenpunkte bestehen aus einem CdSe-Kern mit einer Bandlücke von $1,74\text{ eV}$ und einer Hülle aus ZnS mit einer Bandlücke von $3,54\text{--}3,91\text{ eV}$ [107], je nach Kristallsymmetrie. Die ZnS-Hülle dient dem Schutz des eigentlichen Quantenpunktes aus CdSe. Ohne die Hülle könnten leichter nicht-strahlende Rekombinationen an der Oberfläche stattfinden, und das Material wäre chemisch angreifbarer. Dennoch muss der Quantenpunkt zusätzlich mit organischen Liganden umgeben werden. Diese dienen nicht nur der chemischen Isolierung des Halbleitermaterials, sondern können auch auf die Anforderungen der jeweiligen Anwendung angepasst werden. Z.B. können hydrophile oder hydrophobe Liganden verwendet werden. In dieser Arbeit wurden *QDot[®] 600 ITKTM Organic Quantum Dots* von InvitrogenTM verwendet. Sie zeichnen sich durch eine gute Löslichkeit in organischen Lösungsmitteln aus. In Abb. 5.17a ist das Lumineszenzspektrum dieser Quantenpunkte mit einem Maximum um 605 nm zu sehen und die dazu Stokes-verschobene Absorption. Generell können diese Quantenpunkte in einem spektralen Bereich von $525\text{--}655\text{ nm}$ erworben werden (s. Abb. 5.17b 1–6).

Charakteristisch für diese Art von Quantenpunkten ist das Blinken (*engl.* blinking). Damit wird umschrieben, dass die Quantenpunktemission immer wieder über einen, gemessen an der strahlenden Lebensdauer, langen Zeitraum einbricht. Dieses Phänomen wird i.d.R. auf die Erzeugung langlebiger, nicht-strahlender Triplettzustände zurückgeführt, die nur unter Absorption

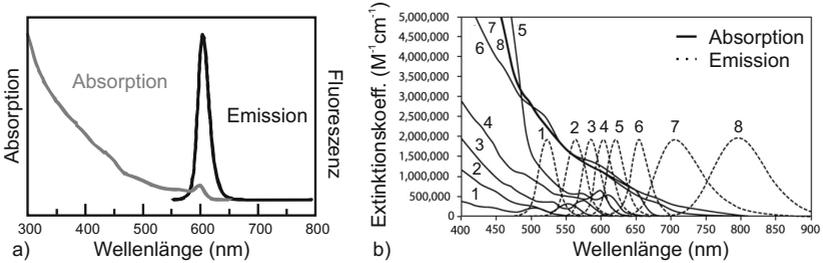


Abbildung 5.17: Herstellerangaben von InvitrogenTM für (a) das Lumineszenz- und Absorptionsspektrum der verwendeten QDot[®] 600 ITKTM Organic Quantum Dots und (b) Spektren für Quantenpunkte verschiedener Größe.

oder Emission eines Phonons strahlend zerfallen können. Absolute Gewissheit für diese Erklärung gibt es jedoch nach wie vor nicht (vgl. [108–110]).

5.4.3 Einbettung von CdSe/ZnS-Quantenpunkten

Zur Einbettung der Quantenpunkte in die PMMA-Resonatoren wurde die Quantenpunktlösung entweder direkt zwischen zwei Lackschichten aufgebracht, oder in den Lack eingerührt und dann in Form einer dünnen Schicht dieses Lackes im Zentrum des Schichtsystems positioniert (für eine ausführliche Beschreibung siehe Ref. [91]). Für quantenoptische Experimente war es hier von Bedeutung, ob die Möglichkeit besteht, einzelne Quantenpunkte im Lack zu isolieren oder ob sie beim Untermischen zu größeren Haufen verklumpen. Um die Verteilung der Quantenpunkte im Lack experimentell zu bestimmen, wurde das Blinkverhalten (s. Abs. 5.4.2) der Emissionszentren orts- und zeitaufgelöst mittels PALM (*engl.* PALM → *Photoactivated Localization Microscopy*) gemessen (Abb. 5.18) [91]. Für isolierte Quantenpunkte oder Haufen von sehr wenigen Quantenpunkten wird ein ausgeprägtes Blinken erwartet, während größere Ansammlungen eine gleichmäßige Emission zeigen sollten.

Das Blinken über die Zeit lässt sich in gedruckter Form natürlich schlecht darstellen. Deshalb wurde in Abb. 5.18b das quadrierte Verhältnis aus Standardabweichung σ_{PALM} und mittlerem Signal \bar{I}_{PALM} der PALM-Messung aufgetragen. Für eine Zeit τ_{an} , die ein Quantenpunkt während der Messung mit

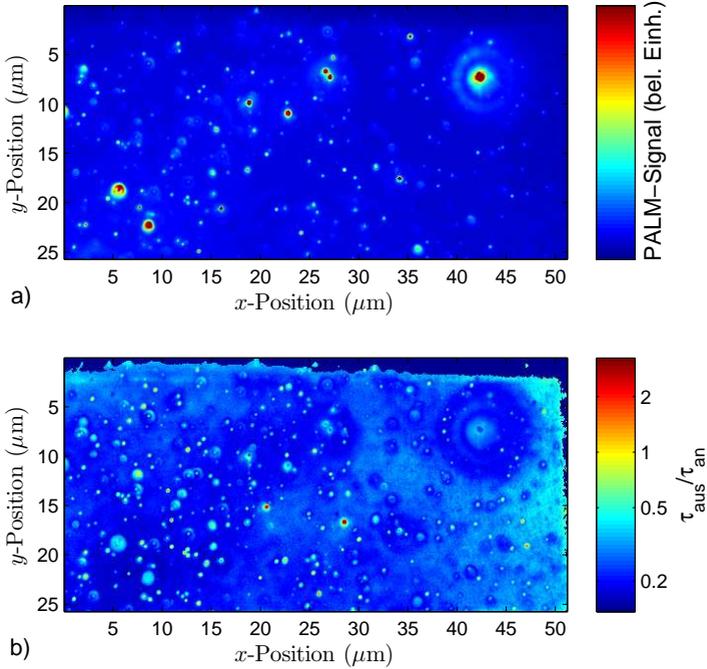


Abbildung 5.18: PALM-Aufnahmen einer Lackschicht mit nominell 2000 QDs/μm² (Probe PQD015). (a) Durchschnittliches PALM-Signal \bar{I}_{PALM} und (b) quadriertes Verhältnis σ^2/\bar{I}^2 aus Standardabweichung σ_{PALM} und Mittelwert \bar{I}_{PALM} des PALM-Signals. Beide Farbskalen sind logarithmisch. Der Wert $\sigma_{\text{PALM}}^2/\bar{I}_{\text{PALM}}^2 = \tau_{\text{aus}}/\tau_{\text{an}}$ gibt wieder, für wie lange ein Quantenpunkt aus ist im Verhältnis zur Zeit, in der er an ist. Da nur einzelne oder sehr kleine Ansammlungen von Quantenpunkten dieses Blinken zeigen können, kann mit diesem Verhältnis abgeschätzt werden, ob sich Quantenpunkthaufen bilden oder nicht. Ein Wert von 0 bedeutet hier sehr viele Quantenpunkte an einer Stelle, Werte um 1 und darüber schon sehr wahrscheinlich einzelne Quantenpunkte.

der Intensität I_0 leuchtet, und der Zeit τ_{aus} , in der er nicht leuchtet, gilt dann:

$$\begin{aligned}
 \bar{I}_{\text{PALM}} &= \frac{\tau_{\text{an}}}{\tau_{\text{an}} + \tau_{\text{aus}}} I_0 \\
 \sigma_{\text{PALM}}^2 &= \frac{\tau_{\text{an}} (I_0 - \bar{I}_{\text{PALM}})^2 + \tau_{\text{aus}} \bar{I}_{\text{PALM}}^2}{\tau_{\text{an}} + \tau_{\text{aus}}} \\
 \Rightarrow \frac{\sigma_{\text{PALM}}^2}{\bar{I}_{\text{PALM}}^2} &= \frac{\tau_{\text{aus}}}{\tau_{\text{an}}} \quad (5.13)
 \end{aligned}$$

Für Werte von $\tau_{\text{aus}}/\tau_{\text{an}}$, die sich stark von 0 unterscheiden, ist es also sehr wahrscheinlich, dass es sich um isolierte Quantenpunkte handelt. In Abb. 5.18 ist gut zu erkennen, dass sich in der Lackschicht viele separierte Quantenpunkte befinden, was erfreulich ist. Andererseits haben sich aber auch große Haufen gebildet, die die einzelnen Quantenpunkte in ihrer Intensität deutlich übertreffen. Entsprechend ist es auch nicht gelungen, einzelne Quantenpunkte spektral aufzulösen. Ein Grund hierfür mag sein, dass die spektrale Intensität einzelner Quantenpunkte durch eine recht große inhomogene Verbreiterung, die selbst bei tiefen Temperaturen nicht unter 1 meV fällt [111], sehr gering ist. Daher konnten die Linien verschiedener Quantenpunkte nicht getrennt werden. Wegen der relativ schwachen Lumineszenz wäre es von Vorteil, einen Photolumineszenzmessplatz mit höherer numerischer Apertur einzurichten.

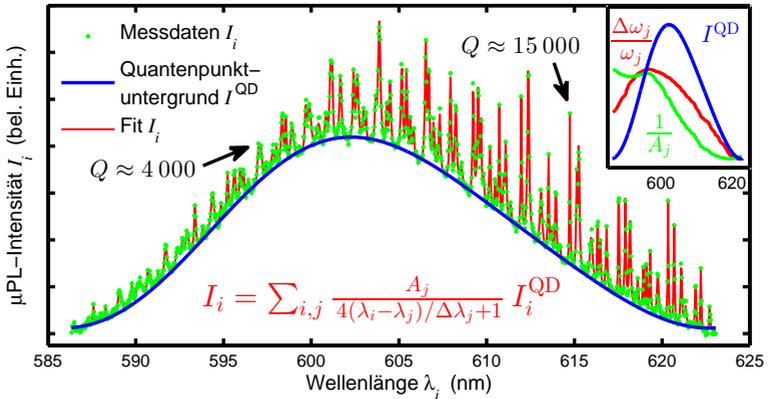


Abbildung 5.19: Photolumineszenzspektrum (grüne Punkte) eines PMMA-Scheibenresonators ($d = 50 \mu\text{m}$, Probe $PQD040$) mit eingebetteten CdSe/ZnS-Quantenpunkten. Die Untergrundemission der Quantenpunkte wurde anhand der Minima und einem Tiefpassfilter nicht-parametrisch angepasst. Die Resonanzen wurden global durch Lorentzkurven, die mit dem Quantenpunktuntergrund multipliziert wurden, angepasst. Der Verlauf der ebenfalls gefilterten reziproken Resonanzamplituden $1/A_j$ und Gütefaktoren $1/Q_j = \Delta\omega_j/\omega_j$ sind im eingebetteten Graph zusammen mit dem Quantenpunktuntergrund aufgetragen. Der Verlauf stimmt qualitativ sehr gut mit den Absorptions- und Emissionsspektren des Herstellers überein (vgl. Abb. 5.17).

Nichtsdestoweniger war es möglich, mit diesen Mehrschichtsystemen aktive Mikroresonatoren hoher Güte herzustellen [91]. Das Lumineszenzspektrum eines Scheibenresonators von etwa $50 \mu\text{m}$ Durchmesser, bei dem eine Quanten-

punktschicht zwischen zwei PMMA-Lackschichten gleicher Dicke eingebracht wurde, ist in Abb. 5.19 zu sehen. Im niederenergetischen Bereich des Spektrums sind die optischen Moden in Bezug auf ihre Intensität deutlich ausgeprägter als im energetisch höher gelegenen Bereich. Dies geht einher mit einer höheren Güte der niederenergetischen Moden. Ein solches Verhalten ist angesichts des Absorptionsspektrums der Quantenpunkte (Abb. 5.17) zu erwarten, da sich die Güte $1/Q = 1/Q_\infty + 1/Q_{\text{Absorption}} + 1/Q_{\text{Streuung}}$ einer optischen Mode anhand der drei Verlustmechanismen durch nichtideale Reflektivität (Q_∞), Absorption ($Q_{\text{Absorption}}$) und Streuung (Q_{Streuung}) beschreiben lässt. Höhere Absorption bedeutet also eine geringere Resonatorgüte und damit einen geringeren Purcell-Effekt. Daher sind Resonanzen im energetisch höher liegenden Bereich schwächer ausgeprägt und spektral breiter. Der eingebettete Graph in Abb. 5.19 zeigt deutlich, dass der spektrale Verlauf der Güten und Amplituden der Resonatormoden mit dem Verlauf des Absorptionsspektrums (Abb. 5.17) qualitativ übereinstimmen.

Am niederenergetischen Ende wurden Gütefaktoren Q von bis zu 15 000 erreicht, zum Vergleich dazu lag die Güte von Resonatoren aus einer einzigen quantenpunkt-dotierten Lackschicht nur um 10^3 . Auch wenn dieser Wert für aktive Resonatoren mit hoher Quantenpunktdichte eine klare Verbesserung darstellt, boten Vergleichsmessungen an passiven Resonatoren gleicher Herstellungsmethode doch die Erkenntnis, dass die Güte durch das Einbringen der Quantenpunkte um etwa eine Größenordnung von $Q_{\text{passiv}} = 1,6 \cdot 10^5$ auf $Q_{\text{aktiv}} = 1,5 \cdot 10^4$ sinkt [91]. Da die Absorptionsabhängigkeit im niederenergetischen Bereich sehr gering sein sollte, kann man davon ausgehen, dass die Resonatorgüte dort durch Streuung limitiert wird. Im Hinblick auf die Herstellung eines Quantenpunktlasers wurden daher Quantenpunkte auch direkt auf schon strukturierte passive Scheibenresonatoren aufgebracht, wie im folgenden Abschnitt beschrieben wird.

5.4.4 Lasing in quantenpunktbenetzten Resonatoren

Wie im letzten Abschnitt beschrieben, konnten durch das Untermischen von Quantenpunkten in den PMMA-Lack zwar aktive Mikroresonatoren hoher Güte hergestellt werden, andererseits lag der Gütefaktor Q eine Größenordnung unter dem passiver Resonatoren. Daher wurden in Hinblick auf die Herstellung eines quantenpunkt-basierten Mikrolasers passive Scheibenresonatoren mit einer hochkonzentrierten Quantenpunktlösung benetzt und anschließend das Lösungsmittel Dekan verdampft.

Unter Anregung mit einem frequenzverdoppelten Nd:YVO₄-Festkörperlaser mit einer Pulslänge von 7 ns, konnte in diesen Resonatoren Lasing beobachtet werden. Eine anregungsenergieabhängige Messung ist in Abb. 5.20 dargestellt. Bei niedrigen Anregungsenergien tritt zunächst eine einzelne Lasermode im

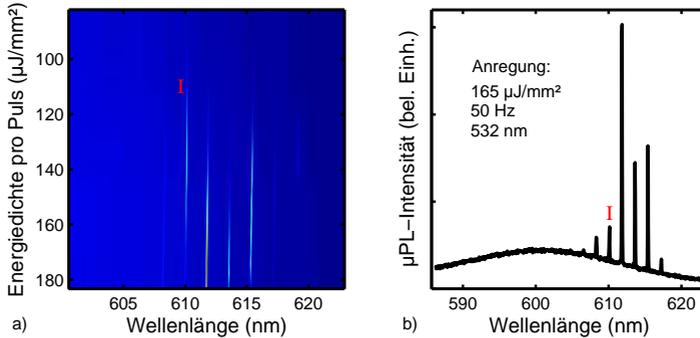


Abbildung 5.20: (a) Intensitätskarte konkurrierender Lasermoden in Abhängigkeit von der Anregungsenergie für einen Scheibenresonator mit einem Durchmesser von $d = 50 \mu\text{m}$, der mit CdSe/ZnS-Quantenpunkten benetzt wurde (Probe *PQD048*). Nach dem Auftreten der ersten Lasermode (I) erscheinen weitere, die um die Lichtverstärkung konkurrieren. (b) Spektrum bei einer Energiedichte von $165 \mu\text{J}/\text{mm}^2$ pro Puls. Die Lasermoden befinden sich am „roten“ Ende der Quantenpunktemission, wo geringe Absorption herrscht (vgl. Abs. 5.4.3).

niederenergetischen Bereich der Quantenpunktemission auf. Hier ist wie in den Abs. 5.4.2 und 5.4.3 diskutiert, die Absorption der Quantenpunkte am niedrigsten. Bei höheren Anregungsenergien erscheinen weitere Moden, die um die Lichtverstärkung durch die Quantenpunkte konkurrieren. Daher verringert sich die Intensität einiger Moden bei höherer Anregungsenergie, während andere stärker leuchten. Insgesamt ist eine leichte Blauverschiebung der Lasermoden bei höherer Anregungsenergien zu beobachten, was auf eine temperaturbedingte Verringerung des Brechungsindex von PMMA zurückgeführt werden kann.

Interessant ist bei der Untersuchung von Mikrolasern immer die sog. Laserschwelle I_{th} , die beschreibt, ab welcher Energiedichte der Anregungspulse Lasing einsetzt. Dieser Wert kann durch die Abhängigkeit der Intensität einer Lasermode von der Anregungsenergie des Pumplasers gemessen werden. An dem Punkt, an dem das Lasing einsetzt, ist ein Knick im Kurvenverlauf erkennbar. Für die erste auftretende Mode (I in Abb. 5.20) ist dies in Abb. 5.21 gezeigt. Die Laserschwelle I_{th} liegt hier bei etwa $97 \mu\text{J}/\text{mm}^2$, was ein guter Wert für diese Art von Resonatoren ist (vgl. dazu Ref. [112]).

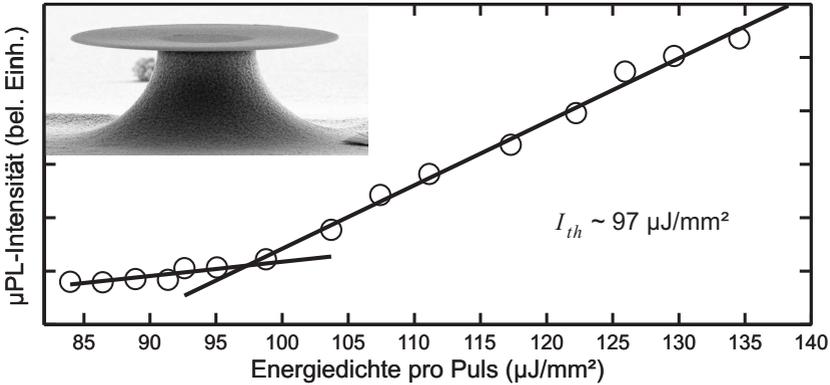


Abbildung 5.21: Abhängigkeit der PL-Intensität der ersten auftretenden Lasermode (Mode I in Abb. 5.20) von der Anregungsenergie. Aus dem Knick im Kurvenverlauf kann eine Laserschwelle I_{th} von ca. $97 \mu\text{J}/\text{mm}^2$ extrahiert werden.

5.5 Zusammenfassung der Ergebnisse

Durch die Optimierung des MBE-Wachstums (Abs. 5.2.1) und die Verwendung von mehr Braggspiegelpaaren bei der Herstellung von Säulenresonatoren konnte die Güte planarer Bragg-Kavitäten um eine halbe Größenordnung im Vergleich zu vorherigen Proben, die in dieser Gruppe gewachsen wurden, auf ca. $1 \cdot 10^5$ gesteigert werden. Auch im Verhältnis zu anderen Gruppen ist dieser aus der Durchmesserabhängigkeit der Q -Faktoren extrapolierte Wert als sehr gut einzuschätzen und sollte für das Erreichen starker Kopplung ausreichen [98]. Gemessene Gütefaktoren für Säulenresonatoren im GaAs/AlAs-Materialsystem reichen in der Literatur nicht über 165 000 hinaus [98]. Um Erklärungen für die dennoch mäßigen Gütefaktoren für Säulen mit kleineren Durchmessern zu erlangen, wurde ein neues Modell für die Abhängigkeit der Resonatorgüte von den Verlusten an den Seitenwänden der Kavität hergeleitet, das in hervorragender Übereinstimmung mit den Messergebnissen dieser Arbeit und Werten aus der Literatur steht. Aus der Abhängigkeit der Resonatorgüte vom Säulendurchmesser konnte abgeleitet werden, dass trotz scheinbar sehr hoher Reflektivität der Außenwände die Resonatorgüte dennoch höchstwahrscheinlich durch absorptionsbedingte Verluste an diesen limitiert ist. Insgesamt muss also davon ausgegangen werden, dass die Herstellung mittels fokussiertem Ionenstrahl nicht konkurrenzfähig zum normalerweise verwendeten reaktivem Ionenätzen ist und es damit nicht möglich ist, das für starke Kopplung benötigte Verhältnis aus Resonatorgüte Q und

Modenvolumen V_{Mode} zu erzielen.

Im Zuge der Herstellung von Kavitäten mit der Form abgestumpfter Pyramiden wurde ein ausgefeiltes nasschemisches Ätzverfahren entwickelt. Durch mehrere selektive Ätzschritte konnten Pyramidenstümpfe auf einem planar freigelegten Braggspiegel hergestellt werden. Zudem konnten durch anisotropes Ätzen Pyramidenstümpfe mit qualitativ hochwertigen $\{114\}$ A-Facetten in perfekter Kristallorientierung geformt werden, die optimale Bedingungen für das spätere Überwachsen mit einem AlAs/GaAs-Braggspiegel boten. Die Qualität des aufgewachsenen Braggspiegels zeigte sich als ausreichend, um Kavitäten mit Güten bis zu $Q = 8000$ herzustellen, sofern die Breite der Kavität an der Oberseite mindestens $4 \mu\text{m}$ betrug.

Durch die Verwendung eines Copolymerlacks (PMMA/MA) konnten thermisch stabile Scheibenresonatoren fabriziert werden. Zudem konnte bei der Herstellung der Resonatoren ein mehrlagiges Schichtsystem verwendet werden. Dies erlaubte das Einbringen von Quantenpunkten ins Zentrum des Schichtsystems. Auf diese Weise fabrizierte Resonatoren wiesen hohe Gütefaktoren Q von bis zu 15 000 auf, im Vergleich zu $Q \approx 10^3$ für Resonatoren aus einer einzelnen quantenpunktdotierten Lackschicht. Mittels PALM konnte nachgewiesen werden, dass sich einzelne CdSe/ZnS-Quantenpunkte in der PMMA-Matrix separieren lassen, was die Möglichkeit eröffnet, dieses Emitter-Resonatorsystem für quantenelektrodynamische Experimente zu verwenden. Es empfiehlt sich allerdings wegen des schwachen Signals für die Einzelquantenpunktspektroskopie eine Verbesserung des optischen Aufbaus in Bezug auf numerische Apertur und Designwellenlänge vorzunehmen.

Durch das Benetzen von passiven Resonatoren mit einer hochkonzentrierten Quantenpunktlösung konnten quantenpunktbasierte Mikrolaser realisiert werden, die bei Raumtemperatur betrieben werden können. Die Laserschwelle lag hier bei etwa $100 \mu\text{J}/\text{mm}^2$, was für diese Art von Resonatoren ein sehr guter Wert ist (vgl. Ref. [112]).

Im Vergleich der drei vorgestellten Resonatortypen kann man also zusammenfassend sagen, dass es mit Säulenresonatoren und überwachsenen Pyramidenstümpfen gelungen ist, Fabry-Pérot-Kavitäten hoher Güte herzustellen, dass jedoch beide aus unterschiedlichen Gründen nicht beliebig verkleinert werden konnten. Daher wird es wahrscheinlich auch zukünftig, insbesondere ohne Umstellung des Ätzprozesses für die Säulenresonatoren, nicht möglich sein, das für starke Kopplung notwendige Verhältnis aus Q -Faktor und Modenvolumen V_{Mode} zu erreichen. Für die polymerischen Flüstergaleriereasonatoren, in denen immerhin schon Lasing nachgewiesen werden konnte, ist dies jedoch durchaus im Rahmen des Vorstellbaren. Im Wesentlichen muss hier ein Weg gefunden werden, nur einzelne oder sehr wenige Quantenpunkte in Resonatoren einzubetten, so dass der Q -Faktor nicht durch Streuung an Quantenpunktansammlungen limitiert wird.

6 Einzelphotonenquellen

Eine Motivation zur Herstellung von Einzelphotonenquellen sollte einem Physiker recht leicht von der Hand gehen. Schließlich bietet eine Quelle, die sequenziell einzelne Photonen emittiert, die Möglichkeit, den Welle-Teilchen-Dualismus auf anschauliche(!) Weise nachzuweisen. So kann mit interferometrischen Methoden wie bei einer klassischen Lichtquelle der Wellencharakter des Lichts nachgewiesen werden (z.B. Michelson-Interferometer oder Spaltexperimente), während es andererseits so scheint, als ob einzelne Photonen räumlich nicht zerteilt werden können (z.B. *Hanbury-Brown & Twiss*-Aufbau). Gerade die vermeintliche räumliche Unteilbarkeit eines Photons ist es, die viel deutlicher veranschaulicht, dass es sinnvoll ist Photonen auch im Teilchenbild zu betrachten, als es eine Quantisierung im Frequenzraum vermag.

Neben dieser Motivation, die eher im Bereich der Grundlagenforschung angesiedelt ist, sollen Einzelphotonenquellen auch in der *Quantum Key Distribution* eine entscheidende Rolle spielen [113]. Zusätzlich können Einzelphotonenquellen in vielen Bereichen der Wissenschaft, je nach Anforderung, von großem Interesse sein. Ein naheliegendes Beispiel wäre die Erzeugung echter Zufallszahlen. Auch die Bestimmung des absoluten Wirkungsquerschnittes eines einzelnen Dipolübergangs, etwa in einem Molekül oder Quantenpunkt, wäre eine mögliche Anwendung, da sich so bei Eintreffen eines Photons der Dipol immer im Grundzustand befinden würde.

In der Natur der Sache liegt es allerdings, dass Einzelphotonenquellen nicht gerade zu den hellsten Lichtquellen zählen. Deswegen wurden viele zum Teil sehr aufwändige Versuche unternommen, möglichst hochfrequente Einzelphotonenquellen herzustellen. Bevor eigene Ergebnisse in Bezug auf die Herstellung effizienter Einzelphotonenquellen vorgestellt werden, wird im nächsten Abschnitt in diesem Zusammenhang ein kurzer Überblick über Realisierungsmöglichkeiten in der aktuellen Forschung geboten.

6.1 Realisierungsmöglichkeiten von Einzelphotonenquellen

In diesem Abschnitt soll ein kurzer Überblick über die Möglichkeiten zur Herstellung von Einzelphotonenquellen gegeben und daran die Verwendung quantenpunktbasierter Emittier motiviert werden. Ein ausführlicher Übersichtsartikel über die bisherige Forschung auf dem Gebiet der Einzelphotonenquellen

und -detektoren wurde 2011 von M. D. Eisaman veröffentlicht [27] und kann zur vertiefenden Lektüre empfohlen werden.

Zur quantitativen Einordnung von Einzelphotonenquellen sind einige Parameter von großer Bedeutung, die kurz erläutert werden sollen:

- Die **Photonenzählrate** n_{ph} , die in der Einheit Hz angegeben wird, tritt an die Stelle der sonst üblichen Intensität oder Leistung. Dies ist der Tatsache geschuldet, dass einzelne Photonen gezählt werden können und gewöhnlich auch gezählt werden sollen.
- Der Wert $\mathbf{g}^{(2)}(\mathbf{0})$, der den Funktionswert der zeitlichen Korrelation zweiter Ordnung $g^{(2)}(\tau)$ bei einer Zeitverzögerung $\tau = 0$ beschreibt. Der Wert gibt die Wahrscheinlichkeit von Multiphotonenereignissen an ($g^{(2)}(0) = 0$ ist wünschenswert). Da es weder im Deutschen noch im Englischen eine prägnante Bezeichnung für diesen Wert gibt, wird er in der Literatur wie im Folgenden schlicht als $g^{(2)}(0)$ bezeichnet.
- Die **homogene Linienbreite** $\Delta\omega_{\text{homogen}}$ beziehungsweise die **Kohärenzzeit** $\tau_{\text{kohärent}}$, die im Idealfall über die Beziehung $\Delta\omega_{\text{homogen}} = 1/\tau_{\text{kohärent}}$ zusammenhängen. Sie entsprechen in ihrer Bedeutung im Experiment in etwa Linienbreite und Kohärenzzeit eines Lasers.
- Die **inhomogene Linienbreite** $\Delta\omega_{\text{inhomogen}}$, die für viele Anwendungen möglichst gering sein sollte, da sie die Ununterscheidbarkeit der erzeugten Photonen verringert.

Ziel ist es, hochfrequent einzelne Photonen ohne Multiphotonenereignisse mit einer möglichst langen Kohärenzzeit und verschwindender inhomogener Verbreiterung zu erzeugen. Dabei sind natürlich Grenzen gesetzt. So ist die Kohärenzzeit durch das Zeitintervall zwischen zwei aufeinanderfolgenden Photonen begrenzt. Zählrate und Kohärenzzeit konkurrieren also. Je nach Art der Quellen kommen weitere Limitierungen hinzu.

Die nächstliegende Möglichkeit, einzelne Photonen zu erzeugen ist offensichtlich, eine vorhandene Lichtquelle so weit abzuschwächen, dass statistisch einzelne Photonen herausgefiltert werden. Es ist allerdings genauso offensichtlich, dass dieses Prinzip eine große Schwäche aufweist, denn die Wahrscheinlichkeit von Multiphotonenereignissen steigt in diesem Fall mit der Zählrate an, d.h. $g^{(2)}(0)$ ändert sich mit der Zählrate n_{ph} . Schwächt man beispielsweise einen Laser ab, ist die Wahrscheinlichkeit $P(N, n_{\text{ph}}, \Delta t)$, dass N Photonen innerhalb eines Zeitintervalls Δt gemessen werden, Poisson-verteilt (vgl. Abs. 2.3.1). Es gilt:

$$P(N, n_{\text{ph}}, \Delta t) = \frac{(n_{\text{ph}} \Delta t)^N}{N!} e^{-n_{\text{ph}} \Delta t} \quad (6.1)$$

Berechnet man nun die Wahrscheinlichkeit, dass N Photonen in einem Zeitintervall Δt gemessen werden, in Relation zur Wahrscheinlichkeit, dass nur ein Photon gemessen wird, ergibt sich:

$$\frac{P(N, n_{\text{ph}}, \Delta t)}{P(1, n_{\text{ph}}, \Delta t)} = \frac{(n_{\text{ph}} \Delta t)^{N-1}}{N!} \quad (6.2)$$

$$\sum_{N=2}^{\infty} \frac{P(N, n_{\text{ph}}, \Delta t)}{P(1, n_{\text{ph}}, \Delta t)} = \frac{1}{n_{\text{ph}} \Delta t} (e^{n_{\text{ph}} \Delta t} - 1) - 1 \quad (6.3)$$

Das Zeitintervall Δt wird in der Praxis entweder durch die Zeitauflösung der Messapparatur oder bei einem gepulsten Laser durch dessen Pulslänge bestimmt. Die Wahrscheinlichkeit für Multiphotonenereignisse in Abhängigkeit von der Photonenzahlrate n_{ph} bei Abschwächung eines Lasers ist in Abb. 6.1 aufgetragen. In Abb. 6.1a sind die Wahrscheinlichkeiten für Multiphotonenereignisse bei einem Laser im Dauerstrichbetrieb und einer typischen Zeitauflösung $\Delta t = 200$ ps dargestellt, in Abb. 6.1b für einen gepulsten Laser. Für eine Reduktion auf 1% Wahrscheinlichkeit für Multiphotonenereignisse, also $g^{(2)}(0) = 0.01$, muss der Laser im Dauerstrichbetrieb auf ca. 100 MHz und im Pulsbetrieb auf 0.02 Photonen pro Laserpuls abgeschwächt werden. Für ein $g^{(2)}(0) = 0.01$ kann also nur bei jedem 50sten Laserpuls ein Photon detektiert werden. Dadurch wird die Verwendung eines gepulsten Lasers nahezu überflüssig.

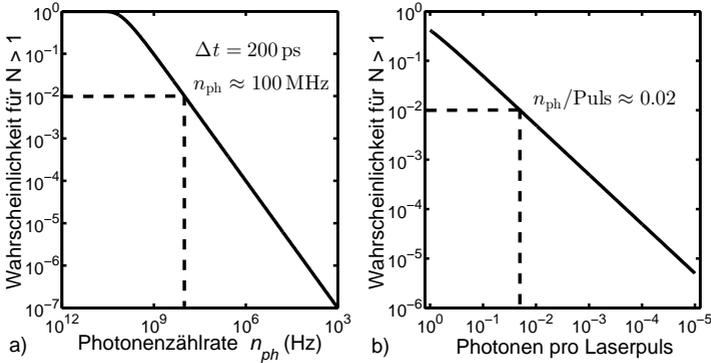


Abbildung 6.1: Wahrscheinlichkeit für Multiphotonenereignisse ($N > 1$) in Abhängigkeit der Photonenzahlrate n_{ph} für einen Laser im Dauerstrichbetrieb (a) und in Abhängigkeit der durchschnittlichen Photonenzahlrate pro Puls für einen gepulsten Laser (b). Bei 1% Wahrscheinlichkeit für Multiphotonenereignisse sind jeweils die Photonenzahlraten eingezeichnet.

Häufig verwendet wird insbesondere die sog. *Parameteric Down Conversion*

[114–116], wobei in einem Material durch einen nichtlinearen $\chi^{(2)}$ -Prozess aus einem ursprünglichen Photon unter festgelegten Austrittswinkeln zwei Photonen anderer Energie entstehen. Durch Messung eines der beiden Photonen kann dann das zweite vorhergesagt werden und man erhält effektiv eine Einzelphotonenquelle. Diese Art von Photonen wird meist als *Heralded Photons* bezeichnet. Die *Parameteric Down Conversion* ist allerdings stark an Materialeigenschaften und Temperatur gebunden, zudem gelten auch hier ähnliche Statistiken wie bei der Abschwächung eines Lasers.

Im Gegensatz zu diesen eher statistischen Einzelphotonenquellen lassen sich nahezu perfekte Einzelphotonenquellen durch diskrete und nicht-entartete Dipolübergänge in Atomen [117, 118], Ionen [119], Molekülen [120–122], Quantenpunkten [28, 123, 124] oder Farbzentren [125, 126] realisieren. Da über einen diskreten Dipolübergang *per se* meist nur einzelne Photonen emittiert werden, fallen die Probleme, wie sie in den vorherigen Absätzen diskutiert wurden, weg. Die Photonenfrequenz ist dann einzig durch die Lebensdauer des angeregten Zustandes limitiert. Homogene und inhomogene Linienbreite des Photons hängen von den entsprechenden Größen des Dipolübergangs ab. Die Herausforderungen liegen hier im Wesentlichen in der Isolierung der Emittierer und effizienten Auskopplung ihrer Emission in die numerische Apertur des Messaufbaus. Zusätzlich müssen im Prinzip alle diese Quellen bei tiefen Temperaturen betrieben werden, teils um eine ausreichende Quanteneffizienz zu erreichen, teils um die Ankopplung an Phononen zu unterdrücken. Auch wenn häufig hervorgehoben wird, dass Farbzentren in Kristallen auch bei Raumtemperatur als Einzelphotonenquellen fungieren, kann man bei ihnen dann eher von einer Emissionsbande als einer Emissionslinie sprechen.

Halbleiterquantenpunkte heben sich besonders durch ihre Integrierbarkeit in elektrische Standardbauelemente und optische Mikroresonatoren (vgl. Abs. 5) hervor. Neben anderen Materialsystemen, vor allem den II–VI- und III–V-Halbleitern, ist wie bei den optisch aktiven Halbleiter-Mikroresonatoren die Kombination aus GaAs, AlAs und InAs das Objekt eines Großteils der Forschung, insbesondere, da es sich durch seine hervorragenden kristallinen und optischen Eigenschaften auszeichnet. So wurde dieses Materialsystem auch in vorliegender Arbeit mit dem Fokus auf eine möglichst einfache und reproduzierbare Herstellung von Einzelphotonenquellen verwendet. Das Prinzip dieser Quellen wird im nächsten Kapitel im Kontext konkurrierender Ansätze vorgestellt.

6.2 Vorteile pyramidaler Einzelphotonenquellen

Wie auch in dieser Arbeit, wurden Einzelphotonenquellen basierend auf InAs-Quantenpunkten meist von Forschergruppen entwickelt, die sich im Vorfeld

ausgiebig mit der Herstellung optisch aktiver Mikroresonatoren beschäftigt hatten. So ist es nicht verwunderlich, dass zum Zwecke einer effizienten Auskopplung der Quantenpunktemission eigentlich immer auf die schwache Kopplung zwischen Quantenpunkten und einer definiert abstrahlenden Kavitätsmode zurückgegriffen wurde. Schlussendlich wurde sie in den Köpfen der Forscher fast schon zur unverzichtbaren Voraussetzung gemacht. Für einen außenstehenden Betrachter mag dies jedoch auf den ersten Blick befremdlich wirken. Schließlich ist das eigentliche Ziel die Emission der Quantenpunkte nur in eine wohldefinierte Richtung zu leiten. Zu diesem Zweck kann die spontane Emission der Quantenpunkte genauso gut durch Reflexionen in die gewünschte Richtung geleitet werden. Insbesondere erlaubt ein Verzicht der Verwendung von Kavitätsmoden die Herstellung breitbandiger optischer Bauteile, so dass es nicht mehr notwendig ist darauf zu hoffen, dass die Emissionswellenlänge eines Quantenpunktes exakt mit der Resonanz einer Kavitätsmode übereinstimmt, da die Möglichkeiten zur Einstellung der Emissionswellenlänge mittels Temperatur [127] und elektrischer (vgl. Abs. 4.2) bzw. magnetischer Felder [9, 69, 128] eher gering sind.

Natürlich hat die schwache Kopplung den zusätzlichen Vorteil, den Exzitonenerfall im Quantenpunkt zu beschleunigen. Da dieser jedoch meist ohnehin im Bereich unter 1 ns stattfindet, ist dies kaum vonnöten. Im Falle einer sequentiellen optischen oder elektrischen Anregung kommt man ohnehin nicht weit über Repetitionsraten von 100 MHz hinaus. Eine verkürzte Lebensdauer der exzitonischen Zustände begünstigt zudem ein erneutes Befüllen der Quantenpunkte während eines Anregungspulses, insbesondere bei elektrischer Anregung, bei der es kaum möglich ist, die Pulslänge unter 200 ps zu drücken. In Bezug auf die Eigenschaften der emittierten Photonen sinkt auch die Kohärenzzeit mit der Lebensdauer des exzitonischen Zustands. Insgesamt gibt es also genug Gründe, zumindest in Frage zu stellen, ob eine schwache Kopplung zwischen dem exzitonischen Zustand und einer Resonatormode für eine Einzelphotonenquelle wirklich erwünscht ist.

Während in dem As-basierten Materialsystem Einzelphotonenquellen standardmäßig in Form von Säulenresonatoren realisiert wurden, verfolgt diese Arbeit einen neuen Ansatz, der nicht auf der schwachen Kopplung zwischen Exzitonen und einer optischen Mode beruht. Die Quantenpunkte werden dabei in der Spitze einer umgedrehten Mikropyramide aus GaAs (Abb. 6.2) positioniert, so dass die Emission durch Totalreflexion an den Facetten der Pyramide gerichtet ausgekoppelt werden kann. Die Form der Pyramide löst dabei noch ein ganz anderes Problem, das bisher in diesem Abschnitt noch gar nicht diskutiert wurde. Die InAs-Quantenpunkte wachsen schließlich normalerweise selbstorganisiert, was bedeutet, dass sie statistisch über die Probe verteilt sind. Dabei erreicht man selten Dichten unter $10 \text{ QDs}/\mu\text{m}^2$, womit es schwierig wird die Emission einzelner Quantenpunkte zu separieren. Positio-

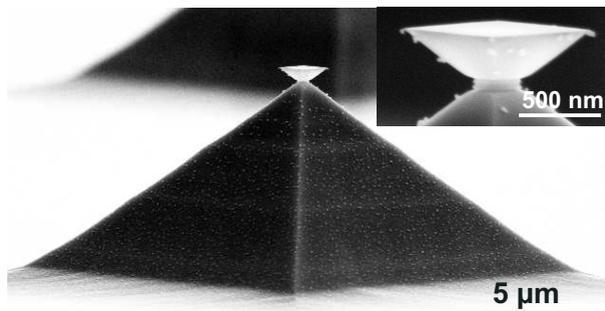


Abbildung 6.2: Elektronenmikroskopische Aufnahme einer umgedrehten Mikropyramide mit Facettenwinkel von ca. 45° und 267 nm Höhe (Pyramide *XLI-J2*, Probe *A1356cVI*).

niiert man die Quantenpunktschicht jedoch an der Spitze der Pyramide, wird ein kleiner Teil dieser Schicht herausgeschnitten, so dass meist ein Bereich von etwa $200 \times 200 \text{ nm}^2$ übrigbleibt. Verglichen mit den Säulenresonatoren, die eine solche Eigenschaft nicht aufweisen können, sind sowohl die Herstellung durch einen einzigen nasschemischen Ätzschritt sowie ein mehr als zehnmal kürzeres molekularstrahlepitaktisches Wachstum hervorzuheben.

Im folgenden Abschnitt werden Simulationsergebnisse vorgestellt, die die Art der Lichtauskopplung durch die GaAs-Mikropyramiden veranschaulichen. Im Anschluss werden dann das nasschemische Ätzverfahren, die Ergebnisse optischer Messungen sowie Methoden zur elektrischen Kontaktierung behandelt.

6.3 Bestimmung der Auskopplungseffizienz durch FDTD- und FEM-Simulationen

Um zu überprüfen, ob sich Mikropyramiden tatsächlich zur effizienten und gerichteten Auskopplung der Quantenpunktemission eignen, wurden 3D-FDTD- und 2D-FEM-Simulationen (vgl. Abs. 3.2) für diese Strukturen durchgeführt. Der Quantenpunkt wurde dabei durch eine monochromatische Punktquelle mit Emissionswellenlänge λ_0 substituiert. Während der Simulation wurde der Leistungsfluss P_i durch die sechs Oberflächen S_i eines Quaders berechnet, der die Pyramide einschloss (rote und grüne Linie in Abb. 6.3a). Die Leistungsflüsse P_i wurden durch das räumliche Integral des Poynting-Vektors

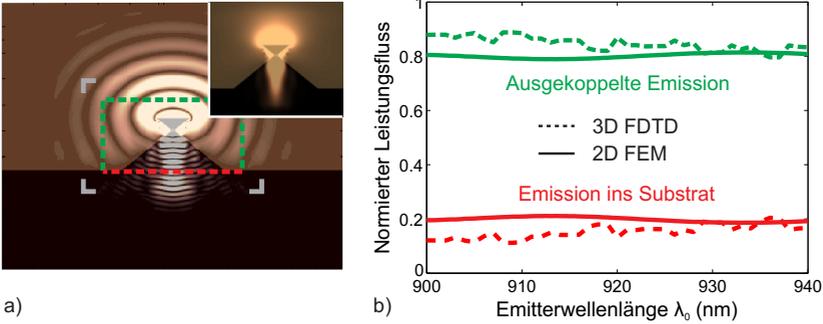


Abbildung 6.3: Simulation des Abstrahlverhaltens einer Pyramide von 267 nm Höhe und 45° Facettenwinkel [129]. (a) Veranschaulichung des Betrags des Poynting-Vektors am Ende der Simulationszeit einer FDTD-Simulation. Das eingebettete Bild zeigt den über die Simulationszeit integrierten Wert. Beide Farbskalen sind logarithmisch gewählt. Die grauen Ecken markieren die Grenzen zu den *Perfectly Matched Layers*, die rote und die grünen gestrichelten Linien die Ebenen, durch die die Leistungsflüsse ins Substrat bzw. ins Vakuum gemessen wurden. (b) Spektraler Verlauf der ausgekoppelten optischen Leistung (grün) und der optischen Leistung die ins Substrat verloren wird (rot), berechnet mit FDTD- (gestrichelte Linie) und FEM-Simulationen (durchgezogene Linie). Beide Simulationsarten sagen Auskopplungseffizienzen von 80–90% über den gesamten simulierten Spektralbereich voraus.

$\vec{S}(\vec{r}, t)$ über die Oberflächen S_i und die Simulationszeit t_e berechnet:

$$P_i = \int_{t_s}^{t_e} \int_{S_i} \vec{S}(\vec{r}, t) \cdot \vec{n}_i \, dS_i \quad (6.4)$$

\vec{n}_i beschreibt hier den Normalenvektor der Ebene S_i . Bei den FDTD-Simulationen wurde die Berechnung des Leistungsflusses erst bei einer Zeit t_s begonnen, nachdem sich das System „eingeschwungen“ hatte. Aus den Leistungsflüssen P_i wurden dann auf den Gesamtfluss normierte Flüsse $p_i = P_i / \sum_j P_j$ berechnet, die angeben, welcher Teil der optischen Leistung durch die jeweilige Fläche fließt. In Abb. 6.3b ist der spektrale Verlauf dieser Werte aufgetragen.

Die Geometrie der Pyramiden wurde mit den FEM-Simulationen bei einer Emitterswellenlänge von 920 nm auf die Auskopplungseffizienz optimiert und dann mit FDTD- und FEM-Simulationen über einen Bereich von 900 bis 940 nm spektral variiert. Die besten Werte ergaben sich für eine Pyramidenhöhe von 267 nm und einen Facettenwinkel von 45°, wobei die Dicke der AlAs-Opferschicht 70 nm und der Abstand der Quantenpunkte zur Opferschicht 60 nm betrug. In Abb. 6.3b ist der spektrale Verlauf der berechneten Auskopplungseffizienz für FDTD- und FEM-Simulationen zu sehen. In

beiden Simulationen gehen nur 10–20% der Gesamtleistung in das Substrat, 80–90% werden ausgekoppelt. Die Abstrahlung ist zudem sehr gerichtet. Bei den FDTD-Simulationen fließen 58–76% der Emission durch die obere Fläche des Quaders, bei den FEM-Simulationen sind es 68–78%.

Beide Simulationsarten zeigen in hervorragender Übereinstimmung, dass GaAs-Mikropyramiden dafür geeignet sind, die Emission von eingebetteten Emittlern gerichtet auszukoppeln. Zudem ist die Effizienz der Auskopplung nicht an eine schmale Resonanzbedingung gekoppelt, sondern bleibt über einen großen spektralen Bereich nahezu konstant, was einen großen Vorteil gegenüber kavitätsbasierten Einzelphotonenquellen darstellt.

6.4 Herstellung von GaAs-Mikropyramiden

Die Herstellung von GaAs-Mikropyramiden zeichnet sich besonders durch ihre Einfachheit aus. Im Wesentlichen besteht sie aus drei Schritten: (i) Dem molekularstrahlepitaktischen (MBE) Wachstum der Halbleiterheterostruktur, (ii) dem Anfertigen der Ätzmaske mittels Elektronenstrahlolithographie und (iii) einem nasschemischen Ätzschritt. Im folgenden werden die jeweiligen Schritte erläutert.

6.4.1 MBE-Wachstum

Zu Beginn des MBE-Wachstums wird auf einem (001)-GaAs-Substrat üblicherweise eine 200–500 nm dicke Pufferschicht abgeschieden, um eine möglichst homogene Probenoberfläche vor dem Wachstum der eigentlichen Struktur zu erhalten. Danach folgt eine 70–150 nm dicke AlAs-Opferschicht und eine 0,25–1,5 μm dicke GaAs-Schicht, aus der später die umgedrehte Mikropyramide entsteht. Je nach Anforderung wird 25–85 nm über der Opferschicht eine InAs-Quantenpunktschicht aufgebracht. An der Position der Opferschicht entsteht im späteren Ätzschritt die Spitze der Pyramide (vgl. Abb. 6.4). Mit dem Abstand zu dieser Opferschicht kann also die Position der Quantenpunkte in der späteren Pyramide festgelegt werden. Die Dicke der letzten GaAs-Schicht bestimmt die Höhe der Pyramide.

6.4.2 Elektronenstrahlolithographie

Für die Elektronenstrahlolithographie wird der Negativlack AR-N 7700.08 des Herstellers *ALLRESIST GmbH* verwendet. Die Schichtdicke des Lackes nach dem Aufschleudern mit 3000 U/min beträgt ca. 100 nm, womit einfach Strukturgrößen kleiner als 1 μm erreicht werden können. Mittels Elektronenstrahlolithographie werden dann Quadrate belichtet, die entlang der [100]-Richtungen des Kristalls, also 45° zur Bruchkante einer Probe, orientiert sind. Dadurch

wird sichergestellt, dass entlang der Maskenränder einigermaßen isotrop geätzt wird [103]. Durch die Größe der Quadrate und die Ätzdauer wird dann die Größe der Pyramidenbasis bestimmt. Da bei dem nasschemischen Ätzschritt immer eine gewisse Unsicherheit in der Ätztiefe besteht, wurde die Quadratgröße über die Probe typischerweise von 6 bis maximal 15 μm variiert. Bei einer exakten Kopie der Herstellungsschritte lag die Varianz in der Breite bei etwa 500 nm.

6.4.3 Ätzverfahren

Die eigentlichen Pyramiden wurden in einem nasschemischen Ätzschritt geformt. Als Ätzlösung wurde die *Phosphorsäureätze 1:x:8* (s. Anh. A.1) verwendet. Durch Variation des Wasserstoffperoxidanteils der Lösung kann die Ätzrate in der AlAs-Opferschicht und im GaAs unterschiedlich beeinflusst werden. Generell wird die AlAs-Opferschicht schneller als das umliegende GaAs geätzt, so dass bei Erreichen der Opferschicht eine Facettenbildung einsetzt. Illustriert wird dies anhand der Ergebnisse einer Ätzsimulation (vgl. Abs. 3.1) in Abb. 6.4. Das Verhältnis der beiden Ätzraten $r_{\text{GaAs}}/r_{\text{AlAs}}$ bestimmt dabei den Facettenwinkel und kann durch den Wasserstoffperoxidanteil in der Ätzlösung zwischen 25° und 60° variiert werden. Durch einfache geometrische Betrachtung des Problems kann der Facettenwinkel α dabei durch $\sin(\alpha) = r_{\text{GaAs}}/r_{\text{AlAs}}$ abgeschätzt werden.

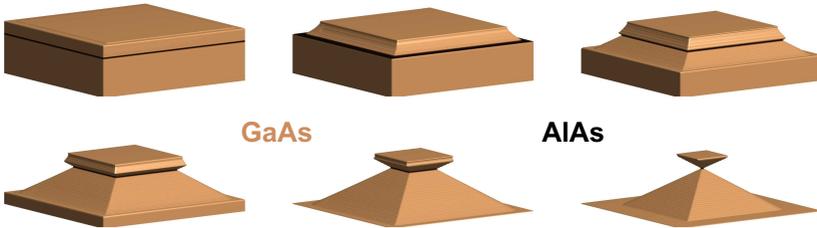


Abbildung 6.4: Simulation des Ätzvorgangs zur Herstellung von GaAs-Mikropyramiden [129]. Bei Erreichen der AlAs-Opferschicht beginnt durch die höhere Ätzrate in der Opferschicht die Facettenbildung.

Da sich das Ätzen von III-V-Halbleitern in der Regel aus einem Oxidations-schritt und dem Ablösen des Oxids durch die Säure zusammensetzt [130–132], scheint es sinnvoll, die Ätzrate anhand des Volumenanteils des Oxidationsmittels Wasserstoffperoxid und der Säure zu beschreiben. Geht man von einer linearen Abhängigkeit sowohl der Oxidationsrate von der Konzentration $[\text{H}_2\text{O}_2]$ des Oxidationsmittels, als auch der Rate, mit der das Oxid gelöst wird, von der Konzentration $[\text{H}_3\text{PO}_4]$ der Säure aus, lässt sich das Verhalten

der Ätzrate r_{GaAs} in GaAs einfach durch die reduzierte Rate aus Oxidation und Ablösen beschreiben:

$$r_{\text{GaAs}} = \left((k_{\text{H}_2\text{O}_2} [\text{H}_2\text{O}_2])^{-1} + k_{\text{H}_3\text{PO}_4} [\text{H}_3\text{PO}_4]^{-1} \right)^{-1} \quad (6.5)$$

Dass Gl. 6.5 das Verhalten der Ätzrate in Bezug auf den Volumenanteil von Wasserstoffperoxid sehr gut beschreibt, ist in Abb. 6.5 zu sehen. Dort wurden die Parameter $k_{\text{H}_2\text{O}_2}$ und $k_{\text{H}_3\text{PO}_4}$ an den Verlauf einer experimentell bestimmten Kurve aus Ref. [102] angepasst.

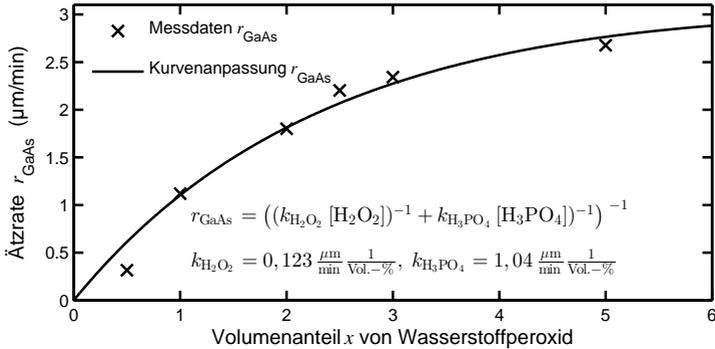


Abbildung 6.5: Kurvenanpassung der Ätzrate r_{GaAs} in Abhängigkeit des Wasserstoffperoxidanteils x einer Ätzlösung aus 1: x :8 H_3PO_4 : H_2O_2 : H_2O . Die experimentellen Daten wurden aus Ref. [102] übernommen. Für die Konzentrationen gilt: $[\text{H}_2\text{O}_2] = x/(x+9) \cdot 100 \text{ Vol.}\%$ und $[\text{H}_3\text{PO}_4] = 1/(x+9) \cdot 100 \text{ Vol.}\%$.

Ein interessanter Nebenaspekt, der in Abs. 6.6 genauer beschrieben wird, ist, dass es mithilfe dieser Ätztechnik auch möglich ist, freistehende Brücken durch geeignete Wahl der Ätzmaske herzustellen. Dies wurde zu elektrischen Kontaktierung einzelner Pyramiden genutzt.

6.5 Zeitliche Korrelationsmessungen an Einzelphotonenquellen

Bei der Charakterisierung von Einzelphotonenquellen muss, auch wenn ein Quantenpunkt *per se* eine Einzelphotonenquelle ist, mithilfe einer zeitlichen Korrelationsmessung 2. Ordnung immer auch nachgewiesen werden, wie rein das Signal tatsächlich ist. Zu diesem Zweck wurde, auch im Rahmen der

begleitenden Diplomarbeiten von Florian Stockmar [70] und Christoph Reinheimer [90], sowie der Doktorarbeit von Pablo Asshoff [133], ein glasfaserbasiertes *Hanbury-Brown & Twiss*-Setup aufgebaut. Im Folgenden werden der Aufbau und sein Funktionsprinzip sowie Messungen an optisch angeregten Einzelphotonenquellen diskutiert.

6.5.1 Hanbury-Brown & Twiss Setup

Ein *Hanbury-Brown & Twiss*-Setup (HBT) besteht im Wesentlichen aus einem Strahlteiler und zwei Einzelphotonenzählern. Dabei wird einer der Einzelphotonenzähler dafür verwendet, die Stoppuhr einer digitalen Messkarte zu starten, während der zweite sie stoppt. Die Messkarte ordnet innerhalb eines Zeitfensters ein Ereignis einem bestimmten Zeitkanal zu, in dem dann die Anzahl der Ereignisse über die Messzeit aufintegriert wird. Erhält die Karte innerhalb des Zeitfensters kein Stoppsignal, erfolgt keine Zuordnung. Ein typisches Zeitfenster wären z.B. 50 ns und 4096 Zeitkanäle. Im ersten Kanal würden dann die Anzahl der Stoppsignale gespeichert werden, die 0–12,2 ps nach Eintreffen des Startsignals registriert wurden. Als Ergebnis erhält man die zeitliche Korrelation der Detektorsignale. Da diese die Intensität der auftreffenden Photonen und nicht ihre Phase widerspiegeln, spricht man von der zeitlichen Korrelation 2. Ordnung $g^{(2)}(\tau)$. Im Gegensatz dazu würde man in einem Michelson-Interferometer die Korrelation der elektrischen Felder messen, was man als zeitliche Korrelation 1. Ordnung bezeichnet. Da man bei der Messung einzelner Photonen daran interessiert ist zu beweisen, dass nie gleichzeitig zwei Photonen die Detektoren erreichen können, möchte man $g^{(2)}(\tau)$ bei einer Zeitverzögerung $\tau = 0$ messen. Dazu wird das Stoppsignal durch ein längeres Koaxialkabel zwischen Detektor und Messkarte verzögert, so dass auch eine negative Zeitverzögerung gemessen werden kann. Die Verzögerung hängt dabei von der Gesamtimpedanz des Kabels ab. Eine Faustregel besagt etwa 5 ns/m bei 50- Ω -Kabeln.

Für die Messung der Autokorrelation zweiter Ordnung wurde ein glasfaserbasierter Aufbau verwendet. Hierzu wurde hinter dem Ausgangsspalt eines Spektrometers das Signal in einen 50:50 Glasfaserteiler eingekoppelt, an dessen Enden das Licht auf zwei *Perkin Elmer AQRH-16* Einzelphotonenzähler fokussiert wurde. Der faserbasierte Aufbau bringt den Vorteil, dass das Signal nicht jedes Mal neu auf die sehr kleinen Dioden (Fläche $< 200 \times 200 \mu\text{m}^2$) der Einzelphotonenzähler fokussiert, sondern nur in die Glasfaser eingekoppelt werden muss. Außerdem konnten dadurch Artefakte beseitigt werden, die durch den sog. *Crosstalk* der Detektoren entstehen.

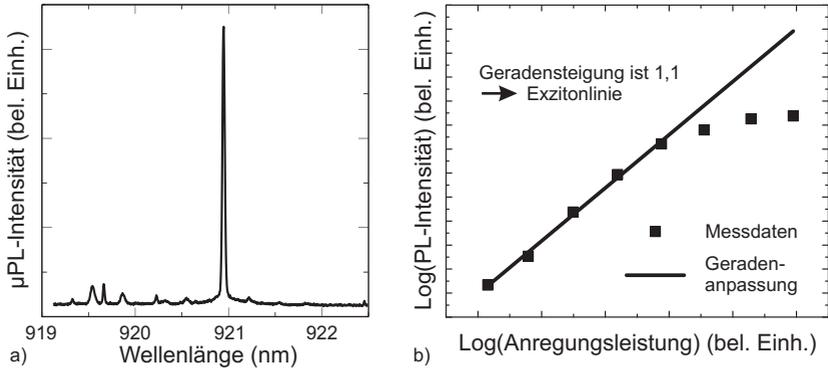


Abbildung 6.6: (a) Emissionsspektrum einer GaAs-Mikropyramide mit eingebetteten Quantenpunkten (Pyramide VI-1K, Probe A1079b). Einzelne Quantenpunktlinien können durch die geringe Zahl an Quantenpunkten in der Pyramide gut separiert werden. (b) Die Abhängigkeit der Lumineszenzintensität von der Anregungsleistung zeigt den exzitonischen Ursprung der Emissionslinie (vgl. Abs. 2.2.2). Die Probe wurde mit einem Ti:Sa-Laser bei 830 nm angeregt.

6.5.2 Nachweis und Charakterisierung der Einzelphotonenemission

Nachdem die Eignung von GaAs-Mikropyramiden mit eingebetteten Quantenpunkten als effiziente Einzelphotonenquellen durch elektromagnetische Simulationen vorhergesagt wurde (Abs. 6.3), werden in diesem Absatz die experimentellen Ergebnisse vorgestellt. Die Messungen wurden in diesem Fall an einer, wie in Abs. 6.4 beschrieben, hergestellten Mikropyramide mit einer Höhe von 500 nm und einem Facettenwinkel von ca. 45° durchgeführt.

Das Spektrum in Abb. 6.6a verdeutlicht, dass eine einzelne Quantenpunktlinie sehr einfach spektral separiert werden kann, da die Anzahl der Quantenpunkte, wie in Abs. 6.2 diskutiert, durch die Positionierung der Quantenpunkte nahe der Pyramidenspitze sehr gering ist. Eine anregungsleistungsabhängige Messung erlaubte es dann, die Emissionslinie auf einen exzitonischen Ursprung zurückzuführen (Abb. 6.6b). Nachdem in einem Spektrum, das am zweiten Ausgang des verwendeten Spektrometers mit einer Silizium-CCD-Kamera aufgenommen wurde, eine geeignete Linie ausgewählt wurde, konnte diese mit den beiden Einzelphotonenzählern des HBT-Setups spektral abgerastert werden (Abb. 6.7a). Dies erlaubte die Einzelphotonenzählrate s der Emissionslinie sowie das Hintergrundsignal b zu bestimmen. Die beiden Werte wurden durch die Höhe und den Offset einer Gauß-Verteilung ermittelt, die an die Messdaten angepasst wurde. Will man nun die Korrelationsfunktion zweiter Ordnung messen, kann ein minimaler zu erwartender

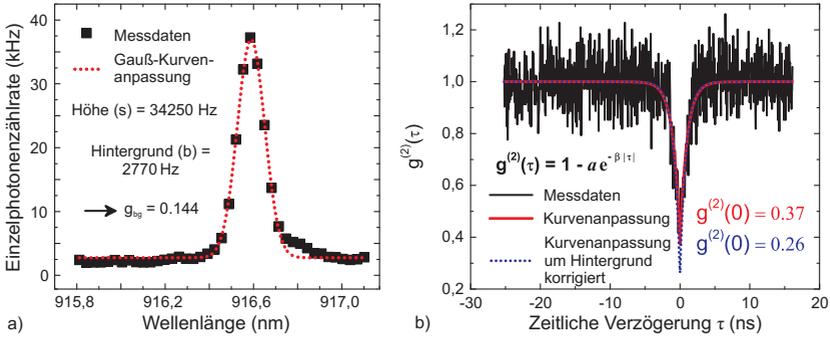


Abbildung 6.7: (a) Spektraler Scan über die Emissionslinie aus Abb. 6.6 mit den beiden Einzelphotonenzählern des HBT-Setups. (b) Zeitliche Korrelationsmessung zweiter Ordnung. Der niedrige Wert von $g^{(2)}(0)$ zeigt den Einzelphotonencharakter der Emission.

der Wert $\min\{g^{(2)}(0)\} = g_{bg} = (2bs + b^2)/(s + b)^2$ vorhergesagt werden, der durch den Hintergrund limitiert wird. Zugrunde liegt hierbei die Rate $\Gamma_{\text{Kanal}} = (s + b)^2 (\Delta t_{\text{Kanal}})$, mit dem in einem Zeitkanal der Messkarte, der die zeitliche Breite Δt_{Kanal} besitzt, Ereignisse gezählt werden.

Für diese Emissionslinie wurde ein Einzelphotonensignal von 34,25 kHz gemessen, bei einem Hintergrund von 2,77 kHz. Der Beweis, dass es sich bei den 34 250 Photonen pro Sekunde tatsächlich um einzelne Photonen handelt, liefert die Messung der zeitlichen Korrelation zweiter Ordnung (Abb. 6.7b). Experimentell wurde direkt ein Wert $g^{(2)}(0) = 0,34$ bestimmt. Da dieser Wert unter 0,5 liegt, beweist er schon, dass tatsächlich eine Einzelphotonenquelle den Großteil des Signals liefert (vgl. Abs. 2.3.3). Korrigiert man die Zählraten der einzelnen Zeitkanäle noch um den gemessenen Hintergrund und berechnet $g^{(2)}(0)$ erneut, ergibt sich ein Wert von 0,26. Dieser Wert entspricht in Anbetracht der Kurvenform schon dem Limit der zeitlichen Auflösung der Einzelphotonenzähler. Legt man einen eigentlichen Wert $g^{(2)}(0) = 0$ zugrunde, müsste die Zeitauflösung des Systems 360 ps betragen und liegt im Rahmen des für diese Art von Messaufbau Erwarteten.

Durch die kontinuierliche Anregung der Probe ist es relativ schwierig die Photonenzählrate quantitativ einzuordnen, da nicht bekannt ist, wie viele Photonen von dem Quantenpunkt tatsächlich emittiert wurden. Ein Hinweis liefert allerdings der Vergleich mit anderen publizierten Photonenzählraten unter gleichen Messbedingungen, also nicht-resonanter optischer Anregung und $g^{(2)}(0) \approx 0,4$. In Ref. [26] wurden Bragg-Kavitäten vorgestellt, die in ihrer Effizienz in Bezug auf die Einzelphotonenemission noch immer den Stand

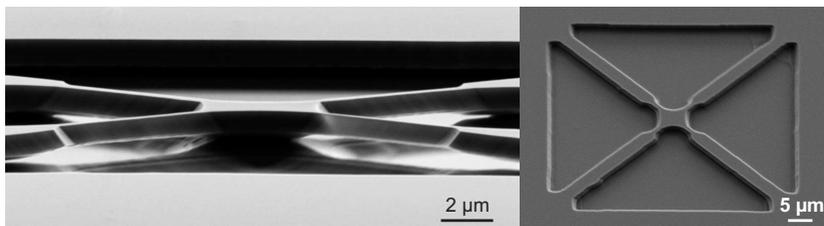


Abbildung 6.8: Elektronenmikroskopische Aufnahmen einer Pyramide mit nasschemisch geätzten Brücken unter verschiedenen Betrachtungswinkeln (Probe *A1355cIII*). Die Brücken entstehen unterhalb von Verjüngungen in der Ätzmaske.

der Technik widerspiegeln. Die Photonenzählraten lagen hier bei gleichen Messbedingungen ungefähr einen Faktor 7 über den an den Pyramiden gemessenen. Es muss allerdings erwähnt werden, dass bei diesen Bragg-Kavitäten die gesamte Emission der Mode in die numerische Apertur von 0,4 des optischen Strahlengangs ausgekoppelt wurde, während dies bei den Pyramiden nicht der Fall ist. Dieser Nachteil sollte jedoch z.B. unter Verwendung von *Solid Immersion Lenses* recht einfach auszugleichen sein. Beachtet man die Komplexität und den Aufwand zur Herstellung der Strukturen aus Ref. [26], ist die Effizienz der Pyramiden jedoch auch in dieser Form schon durchaus konkurrenzfähig.

6.6 Elektrische Kontaktierung über nasschemisch geätzte Brücken

Wie bereits erwähnt, ist es möglich, mit dem in Abs. 6.4 beschriebenen, Ätzverfahren freistehende GaAs-Brücken zu ätzen. Zu diesem Zweck muss die Ätzmaske lediglich an einer Stelle verjüngt werden. Da die AlAs-Opferschicht unterhalb der Verjüngung schneller durchgeätzt wird als unter dem Rest der Maske, bildet sich so an dieser Stelle eine Brücke. Ein Beispiel hierfür ist in Abb. 6.8 zu sehen. Hier wurde eine Ätzmaske in Form der Diagonalen eines Quadrates benutzt, die in der Mitte verjüngt waren. Daraus ließen sich Brücken ätzen, die zur elektrischen Kontaktierung der Pyramiden genutzt wurden. Die Brücken konnten dabei bei einer Breite von etwa $2\ \mu\text{m}$ problemlos Längen von $100\ \mu\text{m}$ erreichen (s. Abb. 6.9).

6.6.1 Kontaktierung der Pyramiden

Zur Kontaktierung der Pyramiden wurden Geometrien mit 1, 2 oder 4 Kontaktarmen verwendet, die zu einem großen Kontaktfeld führten. Für eine

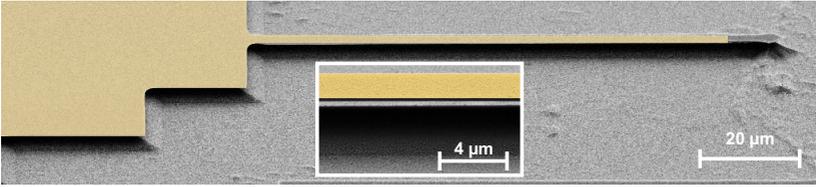


Abbildung 6.9: Elektronenmikroskopische Aufnahmen einer Pyramide mit nasschemisch geätzter Brücke zu einem Kontaktfeld (Probe *A1236b*). Der mit Gold bedampfte Bereich wurde farblich hervorgehoben.

elektrische Anregung der Quantenpunkte mussten natürlich entsprechende Dotierungen in das Schichtsystem eingebracht werden. Dafür wurde ein p-dotiertes GaAs-Substrat verwendet, auf dem eine p-dotierte Pufferschicht ($n_p \approx 5 \cdot 10^{18} \text{cm}^{-3}$) und AlAs-Opferschicht gewachsen wurde. Nach 25 nm i-GaAs wurden dann die Quantenpunkte, gefolgt von weiteren 100 nm i-GaAs, gewachsen. Mit $1,08 \mu\text{m}$ Dicke wurde daraufhin ein Großteil der Pyramide mit einer etwas schwächeren n-Dotierung von etwa $4 \cdot 10^{17} \text{cm}^{-3}$ versehen, da Absorption und Defektlumineszenz der Si-Dotieratome gering gehalten werden sollten. Um die Kontaktierung sowie die laterale Leitfähigkeit der Schicht zu verbessern, wurden zum Schluss weitere 10 nm n-GaAs mit einer Ladungsträgerdichte von ca. $2 \cdot 10^{18} \text{cm}^{-3}$ gewachsen. Die Quantenpunkte wurden auf diese Weise in der intrinsischen Schicht einer pin-Diode positioniert. Das Substrat wurde dann an der Unterseite auf ein leitfähiges Kupferplättchen geklebt und auf den Kontaktfeldern mit Golddrähten kontaktiert.

Vor der tatsächlichen Nutzung der Pyramiden als elektrisch angeregte optische Bauelemente waren allerdings noch ein paar Hürden zu überwinden. Zum einen sollte der Stromfluss durch die $1 \times 1 \text{mm}^2$ großen Kontaktfelder verhindert werden, da dadurch die Probe zu sehr aufgeheizt würde und die Lumineszenz der Kontaktfelder die der Pyramiden höchstwahrscheinlich überstrahlen würde. Zum anderen darf das Gold, welches zur Kontaktierung aufgedampft wird, die Pyramiden nicht bedecken, da sonst kein Licht ausgekoppelt werden kann.

Beides wurde durch die Verwendung eines PMMA/MA-Positivlackes (AR-P 617.06 von *ALLRESIST*) gelöst. Der Vorteil bei der Verwendung eines Positivlackes ist, dass er nach der Entwicklung wieder belichtet werden kann, da die belichteten Abschnitte vom Entwickler gelöst werden. Zudem kann dieser Lack als *Lift-Off Resist* verwendet werden. *Lift-Off* beschreibt eine Technologie in der Mikrostrukturierung, bei der ein Material auf eine vorstrukturierte Lackoberfläche aufgedampft wird und anschließend an den Stellen der Oberfläche, die mit Lack bedeckt sind, zusammen mit diesem entfernt werden kann.

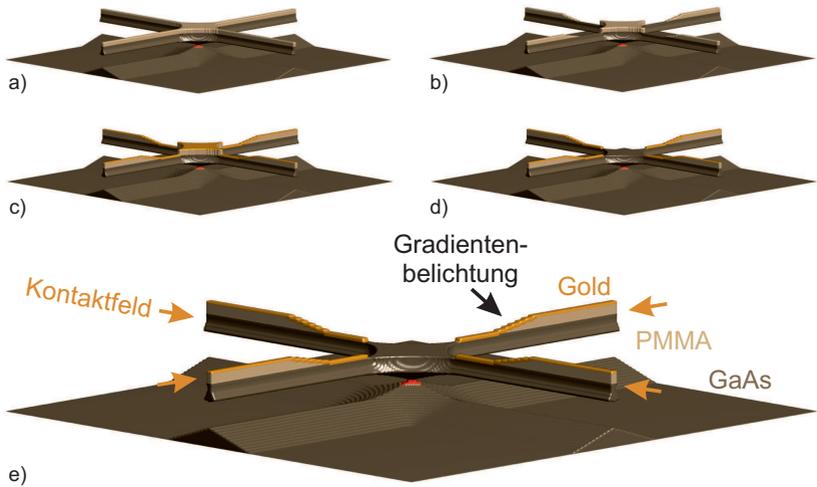


Abbildung 6.10: Schema zur Kontaktierung der Pyramiden über nasschemisch geätzte Brücken. (a) Nach dem Ätzen verbleibt die Ätzmaske aus PMMA auf der Kavität und den Brücken. (b) Durch eine graduelle Belichtung wird nach Entwicklung des Lackes eine Rampe von der PMMA-Schicht auf den Brücken zur GaAs-Oberfläche geschaffen. Danach wird der Lack über der Pyramide belichtet, aber noch nicht entwickelt. (c) Die Probe wird mit Gold bedampft. (d) Durch erneutes Entwickeln des Lackes werden PMMA und Gold von der Pyramide abgehoben, so dass diese freiliegt. (e) Die Pyramide wird über Kontaktfelder, die durch die PMMA-Schicht vom Substrat isoliert sind, sowie durch einen Kontakt auf der Rückseite des Substrats kontaktiert.

Hierzu ist es vonnöten, dass der Lack beim Entwickeln unterschrittene Kanten ausbildet, da sonst das Material den Lack komplett bedecken kann und das Entfernen der Lackschicht unmöglich macht. Für den PMMA/MA-Lack ist dies möglich, wenn er in zwei Schichten aufgetragen wird, wobei die untere Schicht bei 190°C und die obere bei 180°C ausgeheizt wird. Dadurch ist die Ätzrate der unteren Schicht im Entwickler höher als die der oberen. Bei dem hier entwickelten Verfahren sollte die PMMA-Schicht jedoch gleichzeitig als Isolator zum Substrat fungieren, wobei, im Gegensatz zum *Lift-Off*, für die Kontaktierung eine flache Flanke von der Oberfläche des Lackes zum GaAs benötigt wird.

Die einzelnen Schritte bis zur Fertigstellung der elektrisch kontaktierten Pyramiden sind in Abb. 6.10 dargestellt, ausgehend von den Ergebnissen einer Simulation des Ätzvorgangs (vgl. Abs. 3.1). Nach dem Ätzen (Abb. 6.10a) wird der Lack nicht entfernt. Nahe der Pyramiden wird dann auf den geätz-

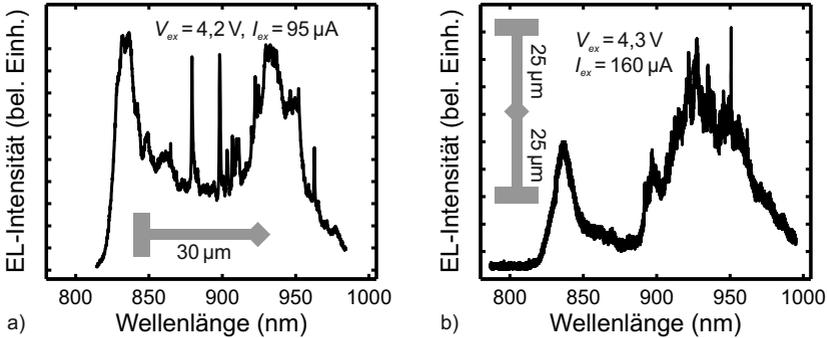


Abbildung 6.11: Elektrolumineszenzspektren zweier kontaktierter Pyramiden mit (a) einer Kontaktbrücke von $30 \mu\text{m}$ (Pyramide *LO-L-14*, Probe *A1355dI*) und (b) zwei Kontaktbrücken von je $25 \mu\text{m}$ Länge (Pyramide *12-5*, Probe *A1355dII*). Die angelegten Spannungen betragen $4,2$ bzw. $4,3 \text{ V}$.

ten Brücken eine graduelle Belichtung durchgeführt, d.h. der Elektronenstrom wird bei der Belichtung langsam von null hochgefahren, so dass nach dem Entwickeln eine flache Rampe zur GaAs-Oberfläche entsteht (Abb. 6.10b). Nach dem Entwickeln wird der Lack auf der Pyramide belichtet, aber noch nicht entwickelt. Er soll später den *Lift-Off* ermöglichen. Daraufhin wird die Probe mit Gold bedampft (Abb. 6.10c) und der Lack erneut entwickelt, so dass Lack und Gold von der Pyramidenoberfläche abgelöst werden (Abb. 6.10d). Die Probe wird dann mit leitfähigem Epoxidharz auf einen Kupferprobenhalter geklebt und so von unten kontaktiert. Von oben werden die Kontaktfelder mit Golddrähten kontaktiert. Das Gold auf den Kontaktfeldern ist durch die darunterliegende PMMA-Schicht zum Substrat hin isoliert, so dass dort kein Strom fließen kann.

6.6.2 Elektrolumineszenz einzelner Pyramiden

In Abb. 6.11 sind die Elektrolumineszenzspektren zweier kontaktierter Pyramiden dargestellt. Eine der Pyramiden wurde über eine Brücke und die andere über zwei Brücken kontaktiert. Die beiden Spektren demonstrieren die erfolgreiche elektrische Kontaktierung der Pyramiden. Gemessen an der Größe des Kontaktfeldes von $1 \times 1 \text{ mm}^2$ und der Anzahl von 88 bzw. 25 kontaktierten Pyramiden sind die Ströme von 95 bzw. $160 \mu\text{A}$ bei angelegten Spannungen von etwa 4 V sehr gering und zeigen, dass die Isolierung durch die PMMA-Lackschicht gut funktioniert. Leider war die Intensität der Lumineszenz, verglichen mit optisch angeregten Einzelphotonenquellen (vgl. 6.5),

recht gering, so dass keine Korrelationsmessungen durchgeführt werden konnten. Möglicherweise waren die optischen Verluste durch die Kontaktbrücken zu groß. Im folgenden Abschnitt werden daher die ersten Ergebnisse einer sehr vielversprechenden, alternativen Methode zur elektrischen Kontaktierung von Pyramidenstümpfen vorgestellt.

6.7 Elektrische Kontaktierung von verspiegelten Pyramidenstümpfen

Da die Intensität der Lumineszenz bei den über Brücken kontaktierten Pyramiden für die Anwendung als elektrisch angeregte Einzelphotonenquellen zu gering ausfiel, wurde ein alternatives Verfahren entwickelt, das auf die Verwendung von Brücken verzichtet. Die ersten Ergebnisse werden im folgenden Abschnitt vorgestellt.

6.7.1 Funktionsprinzip

Die Idee zur Realisierung der im Folgenden behandelten, elektrisch kontaktierten Einzelphotonenquelle unterscheidet sich recht stark von dem bisher diskutierten Verfahren. Sie beruht darauf, einen umgedrehten Pyramidenstumpf von unten mit Gold zum einen zu verspiegeln und zum anderen zu kontaktieren, während ein zweiter Goldkontakt seitlich am oberen Rand angebracht wird. Die beiden Goldschichten werden dabei durch eine Schicht SiO_2 voneinander isoliert (Abb. 6.12).

Bevor auf die Herstellung und Geometrie dieser optischen Bauelemente genauer eingegangen wird, soll das Augenmerk auf die Besonderheiten der hier vorgestellten Fabrikationsmethode gerichtet werden, damit das Wesentliche in den vielen Details nicht verloren geht. Ziel ist es, einen gerade einmal 200 nm hohen, auf dem Kopf stehenden Pyramidenstumpf elektrisch zu kontaktieren. Dabei soll der untere Kontakt gleichzeitig als Spiegel verwendet werden, um die Lumineszenz der eingebetteten Quantenpunkte effizient aufzusammeln. In der gesamten Herstellung wird nur ein einzelner Lithographieschritt benötigt. Insbesondere muss dadurch keine Lithographie auf eine vorher erzeugte Struktur angepasst werden, was eigentlich bei jeder anderen bekannten Methode zur Herstellung elektrisch kontaktierter Einzelphotonenquellen, eingeschlossen der im letzten Abschnitt beschriebenen, benötigt wird [26, 85, 134]. Dieses lithographische *Alignment* ist zeitaufwendig und in der Realisierung meist kritisch. Alle anderen benötigten Herstellungsschritte beruhen auf dem Aufdampfen von Materialien, nasschemischem Ätzen und Polieren der Probe. Die auftauchenden Stolpersteine sind daher auch eher makroskopischer Natur und benötigen nicht die Verwendung noch ausgefeilterer, präziserer und

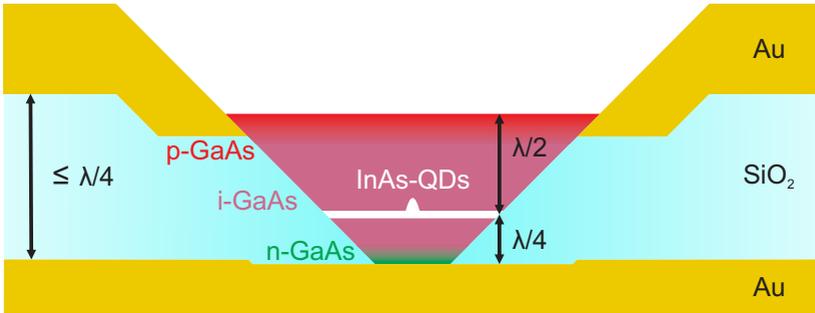


Abbildung 6.12: Schematische Zeichnung eines verspiegelten und elektrisch kontaktierten Pyramidenstumpfes. Die InAs-Quantenpunkte (QDs) werden so im intrinsischen Bereich der pin-Struktur platziert, dass ihre Emission konstruktiv mit den Reflexionen an der Oberfläche und dem Goldspiegel interferieren. Die isolierende Glasschicht wird so dünn gewählt, dass keine optischen Moden geführt werden können. λ bezieht sich auf die Wellenlänge der Quantenpunktemission im jeweiligen Medium.

teurerer nanolithographischer Methoden und Strukturierungen.

Die Herstellung der kontaktierten Pyramidenstümpfe erfolgt dabei im Wesentlichen in zwei Phasen. Zuerst werden die Pyramidenstümpfe strukturiert und kontaktiert. Diese Schritte sind in Abb. 6.13 skizziert. In Abb. 6.14 sind elektronenmikroskopische Aufnahmen einer Pyramide nach den jeweiligen Prozessierungsschritten dargestellt. In der zweiten Phase muss das Substrat wegpoliert und durch nasschemisches Ätzen definiert freigelegt werden (Abb. 6.15).

6.7.2 Herstellung und Kontaktierung der Pyramidenstümpfe

Vor der Strukturierung erfolgt jedoch wie gewöhnlich das Wachstum eines Schichtsystems. Zu Beginn des Wachstums wurden zwei AlAs-Ätzstoppschichten mit 100 bzw. 50 nm Dicke gewachsen, die von einer 500 nm GaAs-Schicht getrennt wurden. Die Bedeutung dieser Schichten wird sich im Fortlauf des Herstellungsprozesses klären. Daraufhin wurde die Diodenstruktur für das spätere Bauelement gewachsen, beginnend mit 40 nm p-GaAs und 92,3 nm i-GaAs, gefolgt von der InAs-Quantenpunktschicht, die mit weiteren 40 nm i-GaAs und 26,19 nm n-GaAs überwachsen wurden. Die Gesamtdicke der pin-Diode beträgt also nur etwa 200 nm. Die Schichtdicken wurden so gewählt, dass sich die Quantenpunkte in einem Abstand $\lambda_0/(4n_{\text{GaAs}})$ zum oberen Ende der Diodenstruktur (der Position des späteren Goldspiegels) und $\lambda_0/(2n_{\text{GaAs}})$

zum unteren Ende befanden, mit $\lambda_0 = 920 \text{ nm}$ (Abb. 6.12). Für das spätere Herausätzen der Pyramiden wurden dann eine 100 nm AlAs-Opferschicht und eine 170 nm GaAs-Deckschicht aufgebracht, die etwas dünner war als die pin-Struktur, was bei der späteren Beschichtung mittels Elektronenstrahlverdampfer eine entscheidende Rolle spielte.

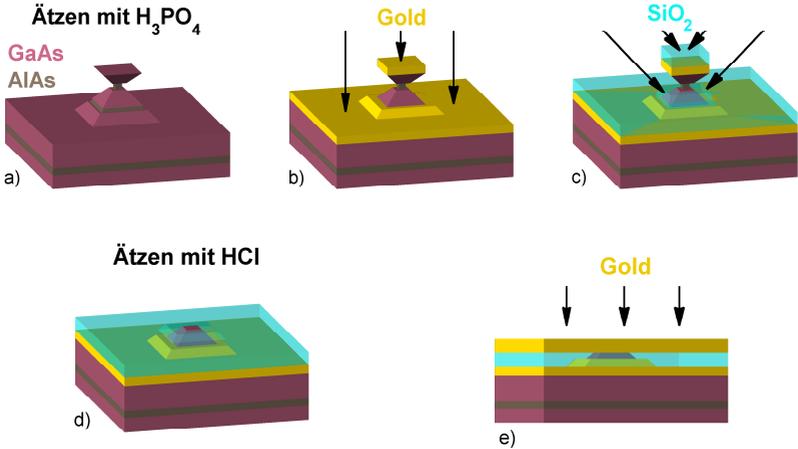


Abbildung 6.13: Erste Phase der Herstellung von verspiegelten und elektrisch kontaktierten Pyramidenstümpfen. (a) Übliche Herstellung der Nanopyramiden mittels Elektronenstrahlolithographie und nasschemischem Ätzen (vgl. Abs. 6.4.3). (b) Bedampfen der Probe mit 120 nm Gold. Die etwas schmalere obere Pyramide wirft einen Schatten auf die untere Pyramide, wodurch nur der Rand der unteren Pyramide kontaktiert wird. (c) Durch Kippen und Rotieren der Probe, während 180 nm SiO_2 aufgedampft werden, kann die ganze untere Pyramide beschichtet und so die untere Goldschicht nach oben hin isoliert werden. (d) Abtrennen der oberen Pyramide durch fünfminütiges selektives Ätzen der AlAs-Opferschicht in konzentrierter Salzsäure im Ultraschallbad. (e) Aufdampfen von 200 nm Gold als elektrischer Kontakt und Spiegel.

Nach dem Wachstum wurde die Probe, wie in Abs. 6.4.3, beschrieben mit Negativlack beschichtet. Mittels Elektronenstrahlolithographie erfolgte anschließend die Belichtung von Quadraten. Die Kantenlänge der Quadrate lag zwischen $0,6$ und $3,0 \mu\text{m}$. Nach dem Entwickeln wurde die Probe für ca. 13 s in der *Phosphorsäureätze 1:3:8* geätzt, um einen Facettenwinkel von ca. 45° zu erhalten (Abb. 6.13a, 6.14a). Dabei wurde bis knapp unter die obere, 50 nm dicke AlAs-Ätzstoppschicht geätzt, die den unteren Rand der pin-Struktur markierte. Der Ätzschritt wurde nicht nach einer vorher festgelegten Zeit beendet, sondern wenn optisch sichtbar wurde, dass die AlAs-

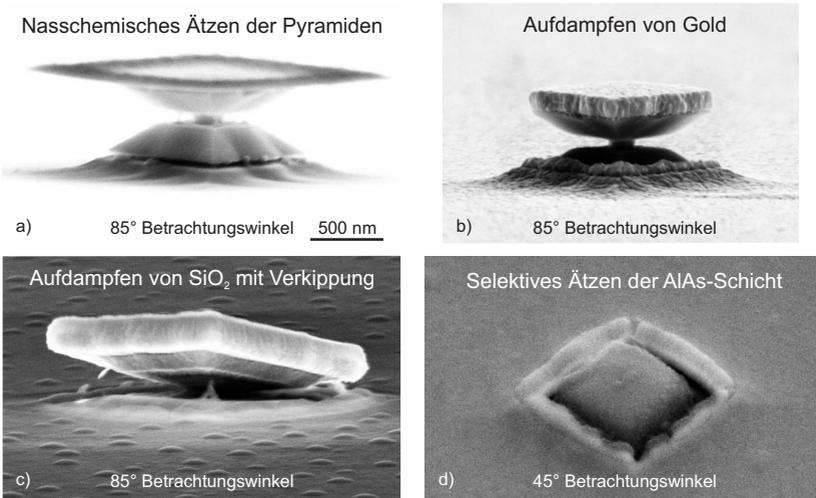


Abbildung 6.14: Elektronenmikroskopische Aufnahmen von Nanopyramiden (Probe *A1452a*), die wie in Abb. 6.13a–d skizziert und im Text beschrieben prozessiert wurden. In (a) ist noch die Ätzmaske auf der oberen Pyramide zu sehen.

Schicht erreicht war. Letzteres war möglich, da sich im oberen Teil der Probe nur sehr dünne Schichten befanden, die durch Interferenzen abhängig von der Schichtdicke ihre Farbe änderten. Die GaAs-Schicht zwischen den beiden AlAs-Ätzstoppschichten wurde mit 500 nm absichtlich zu dick gewählt um solche Interferenzen zu zeigen. Dadurch war es möglich, den richtigen Zeitpunkt zum Stoppen des Ätzprozesses durch das Verschwinden der Interferenzen festzulegen. Die Ätztiefe konnte also *in situ* mit bloßem Auge überwacht werden.

Nach dem Ätzen wurde die Lackmaske entfernt und daraufhin im Elektronenstrahlverdampfer eine 120 nm dicke Goldschicht aufgedampft (Abb. 6.13b, 6.14b). Dabei warf die obere Pyramide einen Schatten auf die untere, so dass letztere nicht komplett mit Gold bedampft wurde. Da die obere Pyramide jedoch durch die geringere Schichtdicke etwas schmaler war als die untere, wurde noch der Rand der unteren Pyramide mit Gold bedeckt und so ein Kontakt zur p-dotierten Schicht der pin-Diode geschaffen. Daraufhin wurde die Probe mit 164 nm SiO₂ bedampft, wobei sie jedoch gekippt und rotiert wurde, so dass die Facetten der unteren Pyramide nicht mehr im Schatten der oberen lagen. Dadurch wurde der untere Pyramidenstumpf bis zum oberen Rand mit SiO₂ bedeckt und gleichzeitig die Goldschicht nach oben hin komplett isoliert. Die Dicke der SiO₂-Schicht war mit $\lambda_0/(4n_{\text{SiO}_2})$ so gewählt,

dass bei einer Wellenlänge von $\lambda_0 = 920 \text{ nm}$ keine optische Mode zwischen den beiden Goldschichten geführt werden kann. Um die n-dotierte Schicht der pin-Diode, also die Oberfläche des Pyramidenstumpfes, freizulegen, wurde die AlAs-Opferschicht 5 min lang im Ultraschallbad mit konzentrierter Salzsäure geätzt (Abb. 6.13c, 6.14c). Die Salzsäure wies in vorherigen Tests eine nahezu absolute Selektivität beim Ätzen von AlAs gegenüber GaAs aus. Allerdings wurde das Gold von der Salzsäure im Ultraschallbad an den Rändern der Probe angegriffen. Daher wurden beim Aufdampfen des Goldes die Ränder der Probe mit einem Rahmen bedeckt, der vor dem Aufdampfen von SiO_2 entfernt wurde. Auf diese Weise gab es keinen Kontaktpunkt zwischen der Säure und dem Gold. Auch wenn ein fünfminütiges Ultraschallbad in konzentrierter Salzsäure äußerst brachial anmutet, nahmen die Schichten dabei nicht den geringsten erkennbaren Schaden. Zu guter Letzt wurden dann 200 nm Gold als Spiegel und Kontakt zur n-dotierten GaAs-Schicht aufgedampft. Zuvor wurden allerdings noch einmal 5 nm SiO_2 aufgebracht, um die Diffusion von Gold ins GaAs oder Gallium ins Gold [135, 136] so nahe der Quantenpunktschicht zu verhindern.

6.7.3 Entfernen des Substrats

Die Kontaktierung des Pyramidenstumpfes durch die Goldschichten ist damit im Prinzip abgeschlossen. Allerdings hat man weder Zugang zur unteren Goldschicht noch Zugriff auf die Quantenpunktlumineszenz. Deswegen muss nun das Substrat unter dem Pyramidenstumpf entfernt werden. Dazu wird die Probe zunächst mit der Oberseite durch leitfähiges Epoxidharz auf ein Siliziumsubstrat geklebt und auf etwa $20 \mu\text{m}$ Dicke geschliffen. Danach hätte eigentlich mit der *Zitronensäureätze 5:1* (s. Anh. A.1) bis auf die untere AlAs-Schicht geätzt werden sollen, da diese Säure GaAs von AlAs nahezu perfekt selektiv ätzt. Dies war jedoch nicht möglich. Bei dem Ätzen mit der Zitronensäureätze als auch bei der Verwendung der Phosphorsäureätze bildeten sich tiefe Gräben von über $10 \mu\text{m}$ Tiefe, die durch die Fokusverschiebung eines einfachen Lichtmikroskops erkennbar waren. An den Seiten der Gräben haben sich wahrscheinlich $\{111\}$ A-Facetten ausgebildet, die kaum noch geätzt wurden. Sogar nach 6 Stunden Ätzen in der Zitronensäureätze war keine Veränderung zu erkennen. Daher wurde auf die etwas exotischere *Iod-Kaliumiodid-Ätzlösung* (s. Anh. A.1) zurückgegriffen [137]. Letztere ist zwar nicht so selektiv wie die Zitronensäureätze, dafür wurde die Probe absolut homogen geätzt. Sobald ersichtlich wurde, dass die erste AlAs-Schicht an einem Rand der Probe erreicht war, wurde dann der Rest mit der *Zitronensäureätze 5:1* geätzt, so dass die AlAs-Stoppschicht perfekt freigelegt wurde (Abb. 6.15b). Die 500 nm GaAs dienten dabei als Puffer, um nicht versehentlich mit der Iodlösung das Gold anzuätzen. Danach wurde mit konzentrierter

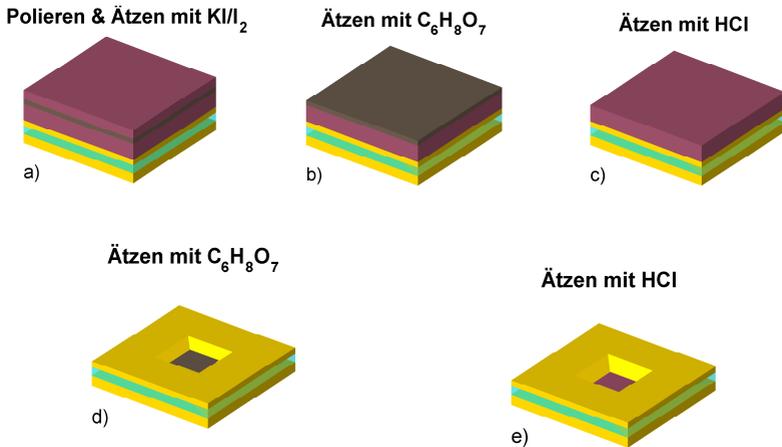


Abbildung 6.15: Zweite Phase der Herstellung von verspiegelten und elektrisch kontaktierten Pyramidenstümpfen. (a) Nachdem die Probe mit leitfähigem Epoxidharz mit der Oberseite auf ein Siliziumsubstrat geklebt wurde, wird die Unterseite bis auf ca. $20\ \mu\text{m}$ herabgeschliffen und mit einer Iod-Kaliumiodid-Lösung bis kurz vor die erste AlAs-Ätzstoppschicht geätzt. (b–e) Danach folgen selektive Ätzschritte, in denen das restliche GaAs mit der Zitronensäureätzte und AlAs mit konzentrierter Salzsäure weggeätzt werden, so dass die Unterseiten der Goldschicht und der Pyramidenstümpfe freigelegt werden.

Salzsäure selektiv die AlAs-Stoppschicht weggeätzt (Abb. 6.15c), mit der Zitronensäureätzte 5:1 die 500 nm GaAs-Pufferschicht (Abb. 6.15d) und wieder mit konzentrierter Salzsäure die zweite AlAs-Stoppschicht (Abb. 6.15e). Auf diese Weise wurden die Unterseiten der ersten Goldschicht und der Pyramidenstümpfe freigelegt.

6.7.4 Optische Charakterisierung

Die soeben beschriebene Methode zur elektrischen Kontaktierung von nanoskopischen Pyramidenstümpfen ist noch sehr jung. Bis auf einige wenige Lektionen, die im Umgang mit den Proben in den verschiedenen Herstellungsschritten gelernt werden mussten, hat diese Methode auf Anhieb zu den gewünschten Strukturen geführt. Dies unterstreicht noch einmal, wie unkritisch dieser Herstellungsprozess ist. Allerdings gab es nach Fertigstellung der Proben Probleme mit dem verwendeten Epoxidharzkleber, der bei Temperaturänderungen im Kryostat dazu neigt, die Probe abzusprengen. Wahrscheinlich wäre es aufgrund seiner geringeren thermischen Ausdehnung besser, die Proben mit

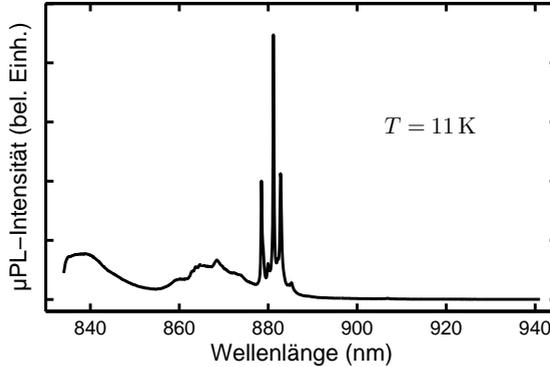


Abbildung 6.16: Lumineszenzspektrum eines verspiegelten Pyramidenstumpfes (Pyramide *XLIX-NE-02-08*, Probe *A1461a*) bei einer Temperatur von 11 K und Anregung mit einem Ti:Sa-Laser bei 811 nm. Die geringe Zahl an Emissionslinien zeigt, dass sich nur sehr wenige Quantenpunkte in der Mesa befinden.

Indium anzukleben und evtl. zusätzlich einen Haftvermittler wie Chrom oder Titan zwischen den Gold- und SiO_2 -Schichten zu verwenden.

Wenn es auch aufgrund der mangelnden Haftung der Probe am Si-Substrat bisher nicht möglich war, Elektrolumineszenzmessungen durchzuführen, so konnten doch die optischen Eigenschaften der verspiegelten Pyramidenstümpfe unter optischer Anregung dokumentiert werden. Es zeigte sich, dass in den Pyramidenstümpfen sehr gut einzelne Quantenpunkte separiert werden konnten. In Abb. 6.16 ist das gesamte Emissionsspektren der Quantenpunkte eines solchen Pyramidenstumpfes zu sehen. Es sind nur einige wenige Linien sichtbar, die wahrscheinlich von nicht mehr als zwei oder drei Quantenpunkten stammen. Die Quantenpunkte wurden mit langsamer Rate gewachsen, vgl. hierzu Abs. 4.1.2. Dass die Emissionslinien mit höherer spektraler Auflösung hervorragend getrennt werden konnten, ist in Abb. 6.17a zu sehen. Durch eine leistungsabhängige Messung an der markierten Emissionslinie konnte dieser ein biexzitoner Ursprung zugeordnet werden (Abb. 6.17b).

Bei einem spektralen Scan mit den beiden Einzelphotonenzählern eines *Hanbury-Brown & Twiss*-Setups wurde für die biexzitoner Emissionslinie aus Abb. 6.17 eine Einzelphotonenzählrate von ca. 160 kHz erreicht. Wird dieser Wert um die bei 900 nm gemessene Transmittivität des μPL -Aufbaus von $4,6 \pm 0,3\%$ und die spezifizierte Detektoreffizienz von 30% korrigiert, entspricht dies einer Photonenemission von 11,5 MHz in die erste Linse (Abb.

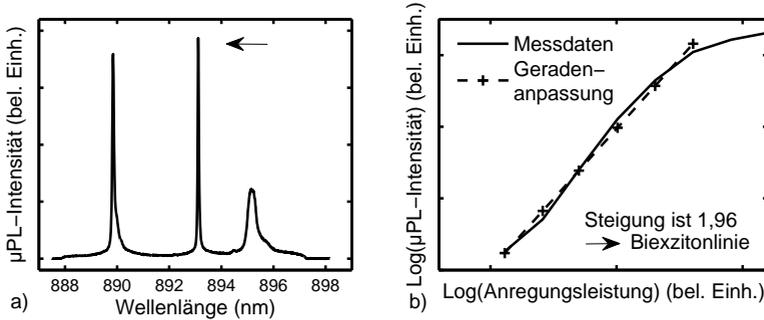


Abbildung 6.17: (a) Ausschnitt aus dem Lumineszenzspektrum eines verspiegelten Pyramidenstumpfes (Pyramide *XLIX-NE-01-09*, Probe *A1461a*) bei 11 K und Anregung mit einem Ti:Sa-Laser bei 811 nm. Die einzelnen Emissionslinien können spektral hervorragend getrennt werden. Die leistungsabhängige Messung in (b) zeigt den biexzitonischen Ursprung der markierten Emissionslinie (vgl. Abs. 2.2.2).

6.18a). Dies ist ein Wert, der im Rahmen dieser Arbeit in dieser Höhe bisher nicht erreicht wurde. Umso verwunderlicher ist es, dass es nicht möglich war, in einer zeitlichen Korrelationsmessung das erwartete Anti-Bunching zu beobachten, das die Einzelphotonenemission nachweisen würde. Eine Erklärung hierfür wäre ein außerordentlich schnelles Wiederbefüllen der Quantenpunkte, das im Rahmen der Zeitauflösung der Einzelphotonenzähler nicht mehr aufgelöst werden konnte. Andererseits müsste diese Rate bei niedriger Anregungsleistung sinken, doch auch in diesem Fall konnte kein Anti-Bunching beobachtet werden. Auffallend war auch die Verbreiterung der Emissionslinie in Abhängigkeit von der Anregungsleistung (Abb. 6.18b), was auf die Wechselwirkung der Exzitonen mit einer größeren Menge erzeugter Ladungsträger hinweisen könnte. Eine temperaturbedingte Verbreiterung der Emissionslinie ist jedoch in dieser Größenordnung anhand der recht geringen spektralen Verschiebung des Emissionsmaximums auszuschließen. In eine Temperaturänderung umgerechnet, entspricht die Verschiebung von 0,11 nm nicht mehr als 3 K.

6.8 Zusammenfassung der Ergebnisse

In der Form umgedrehter GaAs-Mikropyramiden konnten Einzelphotonenquellen realisiert werden, die trotz wesentlich einfacherer Herstellungsmethode konkurrenzfähig gegenüber etablierten Bragg-Kavitäten sind. Durch den Verzicht auf dielektrische Spiegel beschränkt sich das Wachstum auf einen Bruchteil der Dicke, die für Bragg-Kavitäten vonnöten sind. Zudem werden

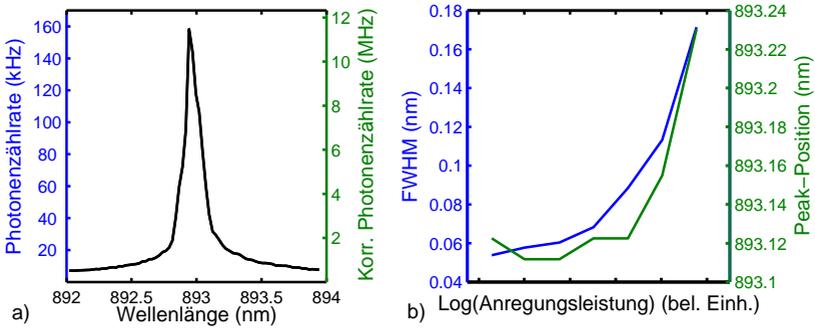


Abbildung 6.18: (a) Spektraler Scan über die biexzitonische Emissionslinie aus Abb. 6.17 mit den beiden Einzelphotonenzählern eines *Hanbury-Brown & Twiss*-Setups. Es wird eine Photonenzählrate von ca. 160 kHz erreicht, was einer Emissionsrate von 11,5 MHz in die erste Linse des μ PL-Aufbaus entspricht. (b) Abhängigkeit der spektralen Position der Emissionslinie und ihrer Halbwertsbreite von der Anregungsleistung.

geringere Anforderungen an die exakte Kontrolle über die Schichtdicken gestellt. Da die Quantenpunkte nahe der Pyramidenspitze positioniert wurden, konnte die Anzahl der Quantenpunkte in der Pyramide deutlich verringert und so einzelne Quantenpunkte spektral sehr gut separiert werden. Die Auskopplung der Quantenpunktemission geschieht dabei durch Reflexion an den Facetten der Pyramide, was die Bandbreite im Vergleich zu Bragg-Kavitäten mit sehr schmalen Resonanzbedingungen von etwa 0,1 nm auf mindestens 40 nm und damit den gesamten Bereich der Quantenemission verbreitert. Quantenpunkte müssen also nicht mehr zufällig in Resonanz mit einer Kavitätsmode liegen, sondern jeder Quantenpunkt in einer solchen Pyramide kann als Einzelphotonenquelle verwendet werden. Zusammenfassend ist es also gelungen, ein sehr einfaches Herstellungsverfahren zu entwickeln, das es erlaubt, reproduzierbar in einem breiten Frequenzband effiziente Einzelphotonenquellen herzustellen.

Es wurde weiter gezeigt, dass es möglich ist, einzelne dieser Pyramiden elektrisch zu kontaktieren. Hierfür wurden zwei Verfahren entwickelt, wobei eines auf einer Kontaktierung über nasschemisch geätzte Brücken beruht, das andere auf der Verspiegelung eines nanoskopischen Pyramidenstumpfes durch einen Goldkontakt. Für Pyramiden, die über Brücken kontaktiert wurden, war es möglich, Quantenpunkte elektrisch anzuregen. Da die Effizienzen der Bauteile jedoch nicht den Erwartungen entsprachen, wurde ein zweites Verfahren entwickelt, das es zum Ziel hat, Pyramidenstümpfe von nicht mehr als 200 nm Dicke einseitig durch eine Goldschicht zu verspiegeln. Diese Schicht dient ne-

ben einer weiteren Goldschicht am Rand der Kavität zudem als elektrischer Kontakt. Für die Herstellung dieser Strukturen wird neben dem Wachstum, nasschemischem Ätzen, Polieren und Bedampfen der Probe nur ein einziger Lithographieschritt benötigt. Der Erfolg dieser Herstellungsmethode konnte experimentell bestätigt werden. Da die finale Prozessierung jedoch noch in den Kinderschuhen steckt, konnten die Proben bisher nur unter optischer Anregung betrieben werden. Dabei wurden Zählraten für die Photonenemission einzelner Quantenpunkte unter kontinuierlicher Anregung erreicht, die sogar die Zählraten von Quantenpunkten in umgedrehten Mikropyramiden um ein Vierfaches übertrafen.

Da mit Blick auf die in Simulationen vorhergesagten Auskopplungseffizienzen von 80–90% im Experiment noch Spielraum nach oben sein dürfte, empfiehlt es sich, weitere Optimierungen vorzunehmen, um die Lumineszenz der Quantenpunkte gezielter aufzusammeln. An erster Stelle steht hier eine Verkleinerung der numerischen Apertur der Strahlung. Am einfachsten kann dies durch Verwendung einer *Solid Immersion Lens* erreicht werden, die bei angepasster Probenstruktur über den umgedrehten Mikropyramiden oder verspiegelten Pyramidenstümpfen positioniert werden kann. Denkbar ist auch eine $\lambda/4$ -Antireflexschicht, z.B. aus Yttriumoxid. Allerdings ist nicht klar, ob sich die Auskopplungseffizienz tatsächlich dadurch erhöhen lässt, da die Schichtdicken in den Pyramiden selbst schon entsprechend angepasst sind.

7 Zusammenfassung und Ausblick

Abschließend sollen noch einmal die Eckpunkte dieser Arbeit zusammengefasst und das Potential für weitere Entwicklungen auf diesem Gebiet diskutiert werden. Die Zusammenfassung ist gemäß der Zielsetzungen in zwei Abschnitte unterteilt. Im ersten Teil wird noch einmal auf die wichtigsten Ergebnisse in Bezug auf die Herstellung quantenpunktbasierter Mikroresonatoren eingegangen. Im zweiten Teil wird dann die Methodik vorgestellt, die zur Herstellung effizienter Einzelphotonenquellen führte.

7.1 Herstellung quantenpunktbasierter Mikroresonatoren hoher Güte

Zu Beginn der Herstellung aktiver Mikroresonatoren stand die Kontrolle über die Emissionsenergie, Dichte und Position der Quantenpunktemitter im Vordergrund. Eine definierte Emissionswellenlänge und Position der Quantenpunkte sind wichtig, um sie möglichst effizient an optische Resonatormoden anzukoppeln. Eine geringe Dichte von Quantenpunkten in einem Resonator ist dagegen von Bedeutung, um einzelne Emissionslinien im Spektrum voneinander zu trennen. Durch das sog. Flushing-Verfahren war es möglich die sonst breite spektrale Verteilung der Emission des Quantpunktensembles von ca. 150 nm auf unter 50 nm zu drücken und damit die Emissionswellenlänge der Quantenpunkte auf einen kleineren Bereich einzuzugrenzen. Durch Tempern und Variation der Wachstumsraten war es zudem möglich, die Dichte der Quantenpunkte in der gewachsenen Schicht zu beeinflussen. Um auch nach dem Wachstum noch Kontrolle über die Emissionswellenlänge der Quantenpunkte zu erhalten, wurde unter lateral angelegtem elektrischen Feld die Verschiebung der Emissionslinien durch den *Quantum-Confined Stark Effect* überprüft. Hierbei stellte sich heraus, dass mögliche Temperatureffekte durch einen nicht zu vermeidenden Photostrom in der Literatur nicht ausreichend diskutiert wurden. Durch die Verwendung oszillierender elektrischer Felder konnte dieser Effekt erstmals ausgeschlossen werden. Dadurch musste allerdings die mögliche Verschiebung durch den *Quantum-Confined Stark Effect* um einen Faktor drei nach unten korrigiert werden. Zudem tauchte dieser Effekt aber nur bei vereinzelt Linien auf, was seinen Nutzen in der Anwendung zumindest fraglich macht. Die gezielte Positionierung der Quantenpunkte war nicht Teil dieser Arbeit, jedoch wurden Proben aus der Nachwuchsgruppe

von Prof. Dr. D. M. Schaadt in diesem Kontext optisch charakterisiert. Hierzu wurde ein neues Verfahren zur orts aufgelösten hochauflösenden Spektroskopie mithilfe eines bildrotierenden Dove-Prismas entwickelt. Die Messoptik lässt sich dabei in nahezu jeden Photolumineszenzmessplatz integrieren, ohne Einfluss auf den Strahlengang oder die optische Auflösung zu nehmen. Leider konnte durch die optische Charakterisierung nur gezeigt werden, dass die Positionierung der Quantenpunkte auf den untersuchten Proben nicht von Erfolg war.

Bei der Herstellung optischer Resonatoren hoher Güte war das Ziel zunächst das für starke Kopplung notwendige Verhältnis Q^2/V_{Mode} aus Gütefaktor Q und Modenvolumen V_{Mode} zu erreichen. Hierzu wurde, basierend auf den Ergebnissen vorheriger Arbeiten, das Herstellungsverfahren von säulenförmigen Bragg-Kavitäten weiter optimiert. Es zeigte sich dabei, dass das Wachstum von Kavität und dielektrischen Spiegeln deutlich verbessert werden konnte, so dass aus diesem Schichtsystem auf jeden Fall Resonatoren strukturiert werden könnten, die den Anforderungen für starke Kopplung gerecht würden. Andererseits wurde deutlich, dass das Ausfräsen der Resonatorsäulen mittels des zur Verfügung stehenden fokussierten Ionenstrahls offensichtlich nicht konkurrenzfähig zu dem sonst verwendeten reaktiven Ionenätzen ist. Obwohl die Oberflächen augenscheinlich keine Rauigkeiten aufwiesen, sank die Güte der Resonatoren für kleinere Durchmesser zu stark, um starke Kopplung zu beobachten. Zum quantitativen Vergleich verschiedener Proben auch aus der Literatur wurde ein theoretisches Modell hergeleitet, das die Abhängigkeit der Q -Faktoren vom Durchmesser der Kavitäten hervorragend beschreibt und die Vermutungen über zu hohe Verluste an den Außenwänden der Kavität bestätigte. Als Alternative wurde daher die Verwendung von Kavitäten mit abfallenden Seitenwänden angedacht, die wie die eigentliche Kavität mit einem Braggspiegel überwachsen werden. Dies hat den Vorteil, dass die Kavität keine freiliegenden Oberflächen aufweist, an denen absorbierende Defekte entstehen können. Durch ein ausgefeiltes nasschemisches Ätzverfahren ist es gelungen, solche Kavitäten in der Form von Pyramidenstümpfen mit wohldefinierten Facetten herzustellen und mit einem Braggspiegel zu überwachsen. Allerdings stellte sich auch hier wachstumsbedingt eine Limitierung der Resonatorgüte in Abhängigkeit der Größe der Kavität ein.

Vor allem um sich von den recht teuren Herstellungsverfahren und tiefen Betriebstemperaturen eines GaAs-basierten Materialsystems freizumachen, wurden polymerische Scheibenresonatoren mit eingebetteten kolloidalen CdSe/ZnS-Quantenpunkten untersucht. Das bereits etablierte Herstellungsverfahren wurde dabei so modifiziert, dass es möglich war, Quantenpunkte im Zentrum des Schichtsystems zu positionieren. Dabei konnte nachgewiesen werden, dass einzelne Quantenpunkte in dem verwendeten Polymerlack separiert und aktive Resonatoren mit Gütefaktoren $Q \geq 10^4$ hergestellt werden

konnten, die vergleichbar mit den oben beschriebenen Säulenresonatoren sind. Ferner konnte so ein bei Raumtemperatur operierender Mikrolaser realisiert werden.

7.2 Herstellung effizienter und breitbandiger Einzelphotonenquellen

Bei der Realisierung quantenpunktbasierter Einzelphotonenquellen gibt es einige Anforderungen, die das spätere Bauelement erfüllen muss. Im Vordergrund steht eine effiziente Auskopplung der Quantenpunktemission. Da die Quantenpunkte jedoch in aller Regel in einer selbstorganisierten Schicht zufällig verteilt gewachsen werden, gibt es einige weitere Unwägbarkeiten, die möglichst alle mit einem Ansatz erschlagen werden sollten. Aufgrund der zufälligen Form und Position der Quantenpunkte sollte es möglich sein, einen kleinen Teil der Quantenpunkte aus dem Ensemble zu separieren. Zudem sollte die Emission der Quantenpunkte in einem breiten spektralen Bereich effizient ausgekoppelt werden, da die Emissionswellenlänge der Quantenpunkte nicht beliebig genau vorausbestimmt werden kann. Bisher wurden zur Herstellung von Einzelphotonenquellen meist Bragg-Kavitäten verwendet, die jedoch nur eine der oben beschriebenen Anforderungen erfüllen, nämlich die effiziente Auskopplung der Emission.

In dieser Arbeit wurde ein neuer Ansatz verfolgt, der auf der Verwendung umgedrehter Mikropyramiden beruht. In verschiedenen elektromagnetischen Simulationen konnte gezeigt werden, dass mit diesen Kavitäten die Emission der Quantenpunkte über den gesamten Bereich der Ensembleemission mit einer Effizienz von 80–90% ausgekoppelt werden kann. Zudem kann durch Positionierung der Quantenpunktschicht nahe der Pyramidenspitze eine geringe Anzahl an Quantenpunkten aus dem Ensemble separiert werden. Ein weiterer nicht zu verachtender Vorzug dieses Ansatzes ist der sehr einfache Herstellungsprozess der Mikropyramiden. Müssen für das Wachstum von Bragg-Kavitäten je nach Dicke der dielektrischen Spiegel 7–10 μm Material aufgewachsen werden, sind es für die Mikropyramiden standardmäßig nur etwa 350 nm. Außerdem ist es, verglichen mit dem Wachstum von Braggspiegeln, viel unkritischer, ob die Schichten in ihrer Dicke leicht variieren. Für die Herstellung der Pyramiden wird dann nur ein nasschemischer Ätzschritt benötigt, bei dem eine AlAs-Opferschicht zur Bildung der Pyramidenfacetten verwendet wird. Sozusagen als Nebenprodukt bei der Optimierung der Geometrie und Herstellungsmethode der Mikropyramiden, wurden zwei Simulationsalgorithmen entwickelt, die das Ätzverhalten und optische Eigenschaften simulieren können.

Mithilfe von Messungen der zeitlichen Korrelationsfunktion zweiter Ord-

nung $g^{(2)}(0)$ wurde nachgewiesen, dass es durch die Einbettung von Quantenpunkten in Mikropyramiden tatsächlich möglich ist Einzelphotonenquellen herzustellen. Die Photonen-zählrate lag dabei um etwa einen Faktor sieben unterhalb der Rekordwerte, die in der Literatur für Bragg-Kavitäten veröffentlicht wurden. Man muss allerdings berücksichtigen, dass dafür Bragg-Kavitäten hoher Güte verwendet wurden, deren Mode komplett in die numerische Apertur von 0,4 des optischen Aufbaus abstrahlt. Dies war bei den Mikropyramiden nicht der Fall. Gemessen an den Vorteilen, die die Mikropyramiden jedoch in Herstellung und Anwendung mit sich bringen, demonstriert dieses Ergebnis, wie konkurrenzfähig dieser Ansatz gegenüber den konventionellen Bragg-Kavitäten ist. Durch die breitbandig hohe Effizienz in Bezug auf die Auskopplung kann im Prinzip jeder Quantenpunkt, der sich nicht zu nahe am Rand einer Pyramide befindet, als Einzelphotonenquelle verwendet werden. Nutzt man Kavitäten hoher Güte, muss die Emissionswellenlänge eines Quantenpunktes zufällig mit der sehr schmalen Resonanz der Kavität übereinstimmen oder die Kavität aufwändig um einen geeigneten Quantenpunkt strukturiert werden.

Neben den optisch angeregten Quellen wurden zudem zwei Strategien zur elektrischen Kontaktierung verfolgt. Dabei wurden die Mikropyramiden zum einen über nasschemisch geätzte Brücken kontaktiert, wodurch es gelungen ist, einzelne Pyramiden elektrisch anzuregen. Da jedoch die Effizienz bei der Auskopplung der Quantenpunktemission hinter den Erwartungen zurückblieb, wurde ein neues Verfahren entwickelt, in dem nur etwa 200 nm hohe Pyramidenstümpfe mit Gold verspiegelt und kontaktiert wurden. Die Besonderheit dieses Herstellungsprozesses liegt darin, dass nur ein einziger Lithographieschritt benötigt wird. Die restliche Prozessierung erfolgt mit nasschemischen Ätzen, Elektronenstrahlverdampfung und Polieren der Probe. Hinsichtlich der Effizienz in der Auskopplung der Quantenpunktemission konnten hier schon erste Erfolge im Vergleich zur Kontaktierung mit Brücken verbucht werden.

7.3 Ausblick

Für die weitere Entwicklung aktiver Mikroresonatoren, die die Möglichkeit aufweisen, stark gekoppelte Systeme aus Emittter und optischer Mode zu erforschen, haben sicherlich die polymerischen Mikroresonatoren großes Potential. Es ist allerdings nicht sicher, ob die kolloidalen Quantenpunkte tatsächlich für diesen Zweck geeignet sind. Da der Emittter aber im Prinzip beliebig durch andere substituiert werden kann, stehen hier viele Möglichkeiten offen. Denkbar wäre beispielsweise die Verwendung von Stickstofffehlstellen in kleinen Diamantkristallen. Diese weisen auch bei Raumtemperatur noch definierte Emissionslinien auf.

Durch die Verwendung auf dem Kopf stehender Mikropyramiden wurde demonstriert, dass es auch mit deutlich einfacheren Systemen als Bragg-Kavitäten möglich ist, effiziente Einzelphotonenquellen herzustellen. Im Zentrum der Weiterentwicklung dieser pyramidalen Kavitäten muss jedoch eine Verkleinerung der numerischen Apertur der abgestrahlten Emission liegen. Eine besonders einfache Lösung würde die Verwendung einer *Solid Immersion Lens* darstellen, die bei angepasster Probengeometrie über einer Mikropyramide positioniert werden kann. Auch in Bezug auf die Herstellung elektrisch angeregter Einzelphotonenquellen weisen die Ergebnisse diese Arbeit eine gute Perspektive auf. Durch einige Verbesserungen in der Prozessierung elektrisch kontaktierter, verspiegelter Pyramidenstümpfe in Bezug auf die Langzeitigkeit der Proben sollte dieses Verfahren einen guten Ausgangspunkt für die Herstellung effizienter elektrisch angeregter Quellen bieten.

A Anhang

A.1 Verwendete Säuren

A.1.1 Zitronensäureätzte 5:1

Zuerst wurde eine Lösung im Verhältnis 100 g:100 ml $C_6H_8O_7:H_2O$ angerührt. Man sollte hierbei die Gewichtsprozent anpassen, wenn die Zitronensäure als Monohydrat vorliegt. Zum Ätzen wird dann eine Mischung aus fünf Teilen der Zitronensäurelösung und einem Teil Wasserstoffperoxid (31% H_2O_2) verwendet. Die Ätzrate ist nicht besonders konstant und liegt etwa bei 200–500 nm/min.

A.1.2 Phosphorsäureätzte 1:x:8

Die Ätze wurde aus H_3PO_4 (85%): H_2O_2 (31%): H_2O im Verhältnis 1:x:8 hergestellt. Die Säure mit der Mischung 1:0,1:8 wurde zum selektiven Ätzen von AlAs verwendet. Beim Ätzen von Pyramiden ergeben sich für den Facettenwinkel und die Ätzraten für GaAs in Abhängigkeit des Wasserstoffperoxidanteils x gemäß Ref. [102] folgende Werte:

H_2O_2 -Anteil x	Facettenwinkel ($^\circ$)	Ätzrate GaAs ($\mu\text{m}/\text{min}$)
0,5	22	1,1
1	35	2,7
2	44	3,7
2,5	50	4,1
3	52	4,2
5	58	4,3

A.1.3 Iod-Kaliumiodid-Ätzlösung

Die Ätze wurde mit 0,04 mol/l (10 g/l) I_2 und 0,1 mol/l (50 g/l) KI angesetzt. Der pH-Wert wurde mit einem Ammoniumchlorid/HCl-Puffer auf 9,4 eingestellt [137]. Dabei wurden etwa 3 mol/l Ammoniumchlorid verwendet.

A.2 Probenverzeichnis

A.2.1 Probennomenklatur

- **Axxxx** ist generell eine Probe, die an der III–V-MBE gewachsen wurde. Eine angehängte Kombination aus Buchstabe und Zahl, wie **A1033b** oder **A0978dIII**, bezeichnet immer ein Teilstück einer solchen Probe. Alles, was hinter einem Bindestrich steht, bezieht sich auf spezielle Mesas oder Felder von Mesas auf dieser Probe, wie z.B. **A0783b-XXI-3I**.
- **PQDxxx** (PMMMA with Quantum-Dots) ist eine Probe, bei der Quantenpunkte in PMMA zur Herstellung von Scheibenresonatoren eingebettet wurden.
- **WTExx** (Wafer Test Etching) ist eine Probe aus einem GaAs-Substrat, an der das Ätzverhalten von Säuren getestet wurde.

A.2.2 Proben zur Herstellung von Säulenresonatoren

A0978

35(30) AlAs/GaAs-DBRs unter(über) der Kavität.
Dicke der Kavität: 273,4 nm.
DBR-Schichten: 81,62 nm AlAs, 68,35 nm GaAs.
Quantenpunkte in der Mitte der Kavität mit langsamer Wachstumsrate gewachsen.

Teil	Bemerkung
------	-----------

- | | |
|---|--------------------------------------|
| a | Gekoppelte und einzelne Resonatoren. |
| c | Nasschemisch geätzte Resonatoren. |
-

A1022

35(30) AlAs/GaAs-DBRs unter(über) der Kavität.
Dicke der Kavität: 273,4 nm.
DBR-Schichten: 81,62 nm AlAs, 68,35 nm GaAs.
3 Quantentröge im Zentrum der Kavität.

Teil	Bemerkung
------	-----------

- | | |
|---|-----------------------------------|
| a | Unstrukturierte Probe. |
| b | Nasschemisch geätzte Resonatoren. |
| c | Nasschemisch geätzte Resonatoren. |
-

A1081

35(30) AlAs/GaAs-DBRs unter(über) der Kavität.
Dicke der Kavität: 257,8 nm.
DBR-Schichten: 76,89 nm AlAs, 64,39 nm GaAs.
1 Quantentrog im Zentrum der Kavität.

A1137

35 AlAs/GaAs-DBRs.
DBR-Schichten: 81,62 nm AlAs, 68,35 nm GaAs.
Wafer wurde geviertelt und später überwachsen.
→ Proben A1143, A1146, A1156

A1143

35(32) AlAs/GaAs-DBRs unter(über) der Kavität.
Dicke der Kavität: 273,4 nm.
DBR-Schichten: 81,62 nm AlAs, 68,35 nm GaAs.
Getemperte Quantenpunkte in der Mitte der Kavität.

Teil Bemerkung

a Zum Schreiben von Resonatoren vorstrukturiert.

A1146

35(32) AlAs/GaAs-DBRs unter(über) der Kavität.
Dicke der Kavität: 273,4 nm.
DBR-Schichten: 81,62 nm AlAs, 68,35 nm GaAs.
Quantenpunkte (flushed) in der Mitte der Kavität.

Teil Bemerkung

a Mit Säulenresonatoren strukturiert.

A1156

35(32) AlAs/GaAs-DBRs unter(über) der Kavität.
Dicke der Kavität: 273,4 nm.
DBR-Schichten: 81,62 nm AlAs, 68,35 nm GaAs.
Quantenpunkte (flushed) in der Mitte der Kavität.

Teil Bemerkung

- a Mit Säulenresonatoren strukturiert.
-

A1183

39 AlAs/GaAs-DBRs gewachsen.
DBR-Schichten: 81,62 nm AlAs, 68,35 nm GaAs.
Wafer wurde zum späteren Überwachsen geviertelt.
→ Proben A1184, A1185

A1184

39(32) AlAs/GaAs-DBRs unter(über) der Kavität.
Dicke der Kavität: 273,4 nm.
DBR-Schichten: 81,62 nm AlAs, 68,35 nm GaAs.
Quantenpunkte (flushed) in der Mitte der Kavität.

Teil Bemerkung

- a Zum Schreiben von Resonatoren vorstrukturiert.
b Mit Säulenresonatoren strukturiert.
-

A1185

39(32) AlAs/GaAs-DBRs unter(über) der Kavität.
Dicke der Kavität: 273,4 nm.
DBR-Schichten: 81,62 nm AlAs, 68,35 nm GaAs.
Quantenpunkte (flushed) in der Mitte der Kavität.

A.2.3 Proben zur Herstellung überwachsener Pyramidenstümpfe

WTE01-06

Proben zur Untersuchung des anisotropen Ätzverhaltens von GaAs.

A0792

Proben zum Testen der Ätzschritte für die Herstellung von Pyramidenstümpfen.

Teil	Bemerkung
a	Pyramidenstümpfe nasschemisch poliert.
b	Versuch durch digitales Ätzen die Oberfläche zu reinigen.
c	Pyramidenstümpfe.
d	Versuch AlAs mit verdünnter Phosphorsäure zu ätzen.

A0793

Probe zur Herstellung von Pyramidenstümpfen zum späteren Überwachsen.

25 DBRs aus 81,62 nm AlAs und 68,35 nm GaAs.

Zwei Quantenpunktschichten (mit langsamer Wachstumsrate gewachsen).

Teil	Bemerkung
a	Vor Überwachsen mit O ₂ -Plasmaverascher gereinigt. Dann mit 25 DBRs überwachsen → A0814.
b	Mit 25 DBRs überwachsen → A0841.
f	Mit 25 DBRs überwachsen → A0881. Erstes erfolgreiches Überwachsen. Schnitt mit fokussiertem Ionenstrahl.
g	Pyramidenstümpfe mit Aluminium verspiegelt → A0883.

A.2.4 Proben zur Messung des „Quantum-Confined Stark Effect“

A0996

Schichtsystem zur Herstellung umgedrehter Pyramiden.
Eine Quantenpunktschicht mit langsamer Wachstumsrate gewachsen.

Teil	Bemerkung
------	-----------

b	Pyramiden zwischen Elektroden strukturiert.
---	---

c	Mit Fingerelektroden strukturiert.
---	------------------------------------

A1022

Schichtsystem zur Herstellung umgedrehter Pyramiden.
Eine getemperte Quantenpunktschicht.

Teil	Bemerkung
------	-----------

a	Mit Fingerelektroden strukturiert.
---	------------------------------------

A.2.5 Proben zur Herstellung optisch angeregter Einzelphotonenquellen

A1079

Proben zur Herstellung von umgedrehten Pyramiden. Eine Quantenpunktschicht mit Flushing-Verfahren gewachsen.
Höhe der Pyramiden: 500 nm.

Teil	Bemerkung
------	-----------

a	Pyramiden mit <i>Phosphorsäureätze 1:3:8</i> hergestellt.
---	---

b	Pyramiden mit <i>Phosphorsäureätze 1:3:8</i> hergestellt. Korrelationsmessungen an einzelnen Quantenpunkten.
---	---

A1297

Proben zur Herstellung von umgedrehten Pyramiden. Eine Quantenpunktschicht mit Flushing-Verfahren gewachsen.

Höhe der Pyramiden: 267 nm.

Teil	Bemerkung
------	-----------

- | | |
|---|---|
| a | Pyramiden mit <i>Phosphorsäureätze 1:2:8</i> hergestellt.
Korrelationsmessungen an einzelnen Quantenpunkten. |
|---|---|
-

A.2.6 Proben zur Herstellung elektrisch angeregter Einzelphotonenquellen

A1084

Proben für die Kontaktierung über Brücken.

$\text{Al}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{As}/\text{GaAs}/\text{Al}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{As}$ -Heterostruktur in der Pyramide. Höhe der Pyramiden: 1 μm .

Teil	Bemerkung
------	-----------

- | | |
|---|--|
| a | Ätzversuche mit <i>Phosphorsäureätze 1:1:8</i> . |
| b | Ätzen mit <i>Phosphorsäureätze 1:1:8</i> .
Probe mit Gold bedampft, anschließend Lift-Off von den Pyramiden. Gold hat keinen durchgehenden Kontakt zu den Kavitäten – Schichtsystem ist ungeeignet. |
-

A1197

Proben für die Kontaktierung über Brücken.

Höhe der Pyramiden: 500 nm.

Teil	Bemerkung
------	-----------

- | | |
|---|--|
| a | Mit <i>Phosphorsäureätze 1:1:8</i> geätzt.
Probe mit Gold bedampft. Schichtdicke von 500 nm ist zu wenig – Gold lappt über. |
|---|--|
-

A1236

Proben für die Kontaktierung über Brücken.

Höhe der Pyramiden: 1 μm .

Teil Bemerkung

- a Mit *Phosphorsäure* 1:2:8 geätzt.
Probe mit Gold bedampft und Lift-off von den Pyramiden. Zu viele Kurzschlüsse.
 - b Mit *Phosphorsäure* 1:1:8 geätzt.
Probe mit Gold bedampft und Lift-off von den Pyramiden. Zu viele Kurzschlüsse.
-

A1277

Proben für die Kontaktierung über Brücken.

Höhe der Pyramiden: 2,28 μm .

Teil Bemerkung

- a Mit *Phosphorsäure* 1:1:8 geätzt.
Opferschicht wurde weggeätzt. Probe mit Gold bedampft und Lift-off von den Pyramiden. Die Lücke, die die Opferschicht hinterlassen hatte, sollte bei Anlegen einer Spannung durch die elektrostatischen Kräfte geschlossen werden und dann Strom fließen. Das hat aber nicht funktioniert.
-

A1355

Proben für die Kontaktierung über Brücken.

Höhe der Pyramiden: 1,22 μm .

Teil Bemerkung

- dI Mit *Phosphorsäure* 1:2:8 geätzt.
Gradientenbelichtung, mit Gold bedampft und Lift-Off.
Kontakt über einen Steg.
Probe zeigt Elektrolumineszenz.
 - dII Mit *Phosphorsäure* 1:2:8 geätzt.
Gradientenbelichtung, mit Gold bedampft und Lift-Off.
Kontakt über zwei Stege.
Probe zeigt Elektrolumineszenz.
-

A1452

Proben für die Kontaktierung verspiegelter Pyramidenstümpfe. Nur Prozessoptimierung.

A1461

Proben für die Kontaktierung verspiegelter Pyramidenstümpfe. Teile b, c zur Prozessoptimierung.

Teil	Bemerkung
------	-----------

- | | |
|---|---|
| a | Erfolgreiche Prozessierung bis vor die Kontaktierung mit Golddrähten.
Photolumineszenzmessungen an Struktur.
Probe beim Aufwärmen im Kryostaten zerstört. |
|---|---|
-

A.2.7 Proben zur Herstellung von PMMA-Scheibenresonatoren mit eingebetteten CdSe/ZnS-Quantenpunkten**PQD015**

Untersuchung der Quantenpunktverteilung in PMMA.
Verwendung von anisolbasiertem PMMA.
Einzelne Quantenpunkte in PALM-Aufnahmen sichtbar.

PQD040

Quantenpunktschicht zwischen zwei PMMA/MA-Schichten.
Resonatoren mit Durchmessern von 50 μm strukturiert.

PQD048

Resonatoren aus zwei PMMA/MA-Schichten mit Quantenpunkten besetzt.
Resonatoren mit Durchmessern von 50 μm strukturiert.
Lasing an Resonatoren beobachtet.

Details zu weiteren Proben sind der Diplomarbeit von Felix Büchle [91] zu entnehmen.

Publikationen

Reguläre Artikel

1. **Efficient single-photon extraction from quantum-dots embedded in GaAs micro-pyramids**
D. Rülke, D. M. Schaadt, H. Kalt und M. Hetterich. *Applied Physics Letters*, **100**(25), 251101 (2012).
Ausgewählt für *Virtual Journal of Nanoscale Science & Technology*, **26**(1) (2012).
2. **Optical microcavities fabricated by DBR overgrowth of pyramidal-shaped GaAs mesas**
D. Rülke, M. Karl, D. Z. Hu, D. M. Schaadt, H. Kalt und M. Hetterich. *Journal of Crystal Growth*, **324**(1), 259-262 (2011).
3. **Growth and annealing of InAs quantum dots on pre-structured GaAs substrates**
M. Helfrich, D. Z. Hu, J. Hendrickson, M. Gehl, D. Rülke, R. Groger, D. Litvinov, S. Linden, M. Wegener, D. Gerthsen, T. Schimmel, M. Hetterich, H. Kalt, G. Khitrova, H. M. Gibbs und D. M. Schaadt. *Journal of Crystal Growth*, **323**(1), 187-190 (2011).
4. **Reversed pyramids as novel optical micro-cavities**
M. Karl, D. Rülke, T. Beck, D.Z. Hu, D.M. Schaadt, H. Kalt und M. Hetterich. *Superlattices and Microstructures*, **47**(1), 83-86 (2010).

Beiträge zu internationalen Konferenzen

1. **A pyramidal single-photon “Micro-Torch”**
D. Rülke, D. M. Schaadt, H. Kalt und M. Hetterich. *11th International Workshop on Nonlinear Optics and Excitation Kinetics in Semiconductors (NOEKS 11)*, Stuttgart (2012).

2. **Single-photon generation by pyramidal quantum-dot microcavities**
D. Rülke, D. M. Schaadt, H. Kalt und M. Hetterich. *International Conference on Quantum Dots (QD 2012)*, Santa Fe, USA (2012).
3. **Pyramidal microcavities for improved optically and electrically driven single-photon sources**
D. Rülke, D. M. Schaadt, H. Kalt und M. Hetterich. *CLEO 2012*, San Jose, USA (2012).
4. **Fabrication of single-photon sources with pyramidal quantum-dot microcavities**
D. Rülke, C. Reinheimer, F. Stockmar, D.M. Schaadt, H. Kalt und M. Hetterich. *11th International conference on Physics of Light-Matter Coupling in Nanostructures (PLMCN 11)*, Berlin (2011).
5. **Growth and annealing of InAs quantum dots on pre-structured GaAs substrates**
M. Helfrich, D. Z. Hu, J. Hendrickson, M. Gehl, D. Rülke, R. Groger, D. Litvinov, S. Linden, M. Wegener, D. Gerthsen, T. Schimmel, M. Hetterich, H. Kalt, G. Khitrova, H. M. Gibbs und D. M. Schaadt. *16th International Conference on Molecular Beam Epitaxy (MBE 2010)*, Berlin (2010).
6. **Annealing effects on site-selective InAs quantum dots**
M. Helfrich, J. Hendrickson, M. Gehl, D. Rülke, D. Z. Hu, M. Hetterich, S. Linden, M. Wegener, H. Kalt, G. Khitrova, H. M. Gibbs und D. M. Schaadt. *Euro-MBE 2011*, Alpe d'Huez, Frankreich (2011).
7. **Thermal annealing of InAs quantum dots on patterned GaAs substrates**
M. Helfrich, J. Hendrickson, D. Rülke, H. Kalt, M. Hetterich, G. Khitrova, H. Gibbs, S. Linden, M. Wegener, D. Z. Hu und D. M. Schaadt. *30th International Conference on the Physics of Semiconductors (ICPS 2010)*, Seoul, Korea (2010).
8. **Optical microcavities in various pyramidal shapes**
D. Rülke, M. Karl, T. Beck, D. Z. Hu, D. M. Schaadt, H. Kalt und M. Hetterich. *European Conference on Lasers and Electro-Optics and the XIth European Quantum Electronics Conference (CLEO®/Europe-EQEC)*, München (2009).

9. Reversed micro-pyramids as novel optical cavities

M. Karl, D. Rülke, T. Beck, D. Z. Hu, D. M. Schaadt, H. Kalt und M. Hetterich. *9th International conference on Physics of Light-Matter Coupling in Nanostructures (PLMCN 9)*, Lecce, Italien (2009).

Nationale Konferenzen, Seminare und Summerschools

1. Quantum-dot microcavities and single-photon sources

D. Rülke, F. Büchle, C. Reinheimer, F. Stockmar, M. Karl, D. M. Schaadt, H. Kalt und M. Hetterich. *Institutsseminar der Angewandten Physik, Karlsruher Institut für Technologie (KIT)*, Karlsruhe (2012).

2. Electrical contacting of pyramidal microcavities for single-photon applications

D. Rülke, D. M. Schaadt, H. Kalt und M. Hetterich. *DPG-Frühjahrstagung, Beitrag HL 43.17*, Berlin (2012).

3. Semiconductor colloidal nanocrystals in PMMA microresonators

F. Büchle, D. Rülke, T. Grossmann, M. Hetterich und H. Kalt. *DPG-Frühjahrstagung, Beitrag 93.13*, Berlin (2012).

4. Time-resolved spectroscopy of a three-terminal semiconductor structure for electrical spin-storage and read-out

H. Wurst, A. Merz, J. Zeller, R. Schittny, B. Wolter, C. Krämmer, D. Rülke, H. Kalt und M. Hetterich. *DPG-Frühjahrstagung, Beitrag HL 91.2*, Berlin (2012).

5. Fabrication of single-photon sources by use of pyramidal quantum-dot microcavities

D. Rülke, C. Reinheimer, D. M. Schaadt, H. Kalt und M. Hetterich. *Erice 2011 Nano-Optics School*, Erice, Italien (2011).

6. Quantum-dots in optical microcavities – Cavity quantum-electrodynamics and non-classical light

D. Rülke. *Karlsruhe Days of Optics and Photonics (KDOP)*, Karlsruhe (2011).

7. Quantum-dot pyramidal microcavities as candidates for electrically pumped efficient single-photon sources

D. Rülke, C. Reinheimer, F. Stockmar, D. M. Schaadt, H. Kalt und M. Hetterich. *DPG-Frühjahrstagung, Beitrag ISS 3.5/Q 16.5/HL 34.5*, Dresden (2011).

8. **Time-dependent measurements of single In(Ga)As quantum dots embedded in GaAs reversed pyramidal cavities**
C. Reinheimer, D. Rülke, D. Schaadt, H. Kalt und M. Hetterich. *DPG-Frühjahrstagung, Beitrag HL 85.85*, Dresden (2011).
9. **Effects of in-situ annealing on site-selective InAs quantum dots grown on pre-structured GaAs substrates**
M. Helfrich, D. Rülke, J. Hendrickson, M. Gehl, D. Z. Hu, M. Hetterich, S. Linden, M. Wegener, G. Khitrova, H. M. Gibbs, H. Kalt und D. M. Schaadt. *DPG-Frühjahrstagung, Beitrag HL 86.1*, Dresden (2011).
10. **GaAs-based quantum-dot microcavities**
D. Rülke. *CFN Summer School on Nano-Photonics*, Bad Herrenalb (2010).
11. **Electric field and excitation-power dependent micro-photoluminescence spectroscopy of single In(Ga)As quantum dots**
F. Stockmar, D. Rülke, D. M. Schaadt, H. Kalt, and M. Hetterich. *DPG-Frühjahrstagung, Beitrag HL 31.40*, Regensburg (2010).
12. **Site-selective molecular beam epitaxial growth of InAs quantum dots on pre-patterned GaAs substrates**
M. Helfrich, D. Z. Hu, J. Hendrickson, D. Rülke, P. Aßhoff, H. Kalt, M. Hetterich, G. Khitrova, H. M. Gibbs und D. M. Schaadt. *DPG-Frühjahrstagung, Beitrag HL 52.10*, Regensburg (2010).
13. **Optical microresonators fabricated by epitaxial DBR overgrowth of pyramidal GaAs cavities**
D. Rülke, M. Karl, D. Z. Hu, D. M. Schaadt, H. Kalt und M. Hetterich. *DPG-Frühjahrstagung, Beitrag HL 58.4*, Regensburg (2010).
14. **GaAs microresonators for quantum optical and cavity quantum electrodynamic applications**
D. Rülke. *Matheon Workshop Zuse-Institut*, Berlin (2009).
15. **Semiconductor microresonators – Controlled coupling of quantum dot states to optical cavity modes**
D. Rülke. *Karlsruhe Days of Optics and Photonics (KDOP)*, Karlsruhe (2009).
16. **Reversed GaAs pyramids as new optical micro-cavities based on total internal reflection**
D. Rülke, M. Karl, D. Z. Hu, D. M. Schaadt, B. Kettner, S. Burger, F. Schmidt, H. Kalt, and M. Hetterich. *DPG-Frühjahrstagung, Beitrag HL 51.7*, Dresden (2009).

Literaturverzeichnis

- [1] R. Feynman. „Simulating physics with computers“. *International Journal of Theoretical Physics*, **21**, 467–488 (1982). 10.1007/BF02650179.
- [2] D. Deutsch. „Quantum Theory, the Church-Turing Principle and the Universal Quantum Computer“. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences*, **400**(1818), pp. 97–117 (1985).
- [3] D. Deutsch und R. Jozsa. „Rapid Solution of Problems by Quantum Computation“. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A: Mathematical and Physical Sciences*, **439**(1907), 553–558 (1992).
- [4] D. Simon. „On the Power of Quantum Computation“. *SIAM Journal on Computing*, **26**(5), 1474–1483 (1997).
- [5] P. W. Shor. „Polynomial-Time Algorithms for Prime Factorization and Discrete Logarithms on a Quantum Computer.“ *SIAM Journal on Computing*, **26**(5), 1484 (1997).
- [6] D. P. DiVincenzo und P. W. Shor. „Fault-Tolerant Error Correction with Efficient Quantum Codes“. *Phys. Rev. Lett.*, **77**, 3260–3263 (1996).
- [7] A. Imamoglu, D. D. Awschalom, G. Burkard, D. P. DiVincenzo, D. Loss, M. Sherwin und A. Small. „Quantum Information Processing Using Quantum Dot Spins and Cavity QED“. *Phys. Rev. Lett.*, **83**, 4204–4207 (1999).
- [8] M. Kroutvar, Y. Ducommun, D. Heiss, M. Bichler, D. Schuh, G. Abstreiter und J. J. Finley. „Optically programmable electron spin memory using semiconductor quantum dots“. *Nature*, **432**(7013), 81–84 (2004). 10.1038/nature03008.
- [9] W. Löffler, M. Hetterich, C. Mauser, S. Li, T. Passow und H. Kalt. „Parallel preparation of highly spin-polarized electrons in single InAs/GaAs quantum dots“. *Applied Physics Letters*, **90**(23), 232105 (2007).

- [10] B. D. Gerardot, D. Brunner, P. A. Dalgarno, P. Ohberg, S. Seidl, M. Kroner, K. Karrai, N. G. Stoltz, P. M. Petroff und R. J. Warburton. „Optical pumping of a single hole spin in a quantum dot“. *Nature*, **451**(7177), 441–444 (2008). 10.1038/nature06472.
- [11] D. Press, T. D. Ladd, B. Zhang und Y. Yamamoto. „Complete quantum control of a single quantum dot spin using ultrafast optical pulses“. *Nature*, **456**(7219), 218–221 (2008). 10.1038/nature07530.
- [12] A. Greilich, S. E. Economou, S. Spatzek, D. R. Yakovlev, D. Reuter, A. D. Wieck, T. L. Reinecke und M. Bayer. „Ultrafast optical rotations of electron spins in quantum dots“. *Nature Physics*, **5**(4), 262–266 (2009). 10.1038/nphys1226.
- [13] D. Press, K. De Greve, P. L. McMahon, T. D. Ladd, B. Friess, C. Schneider, M. Kamp, S. Hofling, A. Forchel und Y. Yamamoto. „Ultrafast optical spin echo in a single quantum dot“. *Nature Photonics*, **4**(6), 367–370 (2010). 10.1038/nphoton.2010.83.
- [14] K. J. Vahala. „Optical microcavities“. *Nature*, **424**(6950), 839–846 (2003). 10.1038/nature01939.
- [15] A. Badolato, K. Hennessy, M. Atatüre, J. Dreiser, E. Hu, P. M. Petroff und A. Imamoglu. „Deterministic Coupling of Single Quantum Dots to Single Nanocavity Modes“. *Science*, **308**(5725), 1158–1161 (2005).
- [16] J. Reithmaier, G. Sek, A. Löffler, C. Hofmann, S. Kuhn, S. Reitzenstein, L. Keldysh, V. Kulakovskii, T. Reinecke und A. Forchel. „Strong coupling in a single quantum dot-semiconductor microcavity system“. *Nature*, **432**(7014), 197–200 (2004).
- [17] T. Yoshie, A. Scherer, J. Hendrickson, G. Khitrova, H. M. Gibbs, G. Rupper, C. Ell, O. B. Shchekin und D. G. Deppe. „Vacuum Rabi splitting with a single quantum dot in a photonic crystal nanocavity“. *Nature*, **432**(7014), 200–203 (2004). 10.1038/nature03119.
- [18] G. Khitrova, H. M. Gibbs, M. Kira, S. W. Koch und A. Scherer. „Vacuum Rabi splitting in semiconductors“. *Nature Physics*, **2**(2), 81–90 (2006). 10.1038/nphys227.
- [19] K. Hennessy, A. Badolato, M. Winger, D. Gerace, M. Atatüre, S. Gulde, S. Falt, E. L. Hu und A. Imamoglu. „Quantum nature of a strongly coupled single quantum dot-cavity system“. *Nature*, **445**(7130), 896–899 (2007). 10.1038/nature05586.

-
- [20] C. H. Bennett, G. Brassard, C. Crépeau, R. Jozsa, A. Peres und W. K. Wootters. „Teleporting an unknown quantum state via dual classical and Einstein-Podolsky-Rosen channels“. *Phys. Rev. Lett.*, **70**, 1895–1899 (1993).
- [21] D. Deutsch, A. Ekert, R. Jozsa, C. Macchiavello, S. Popescu und A. Sanpera. „Quantum Privacy Amplification and the Security of Quantum Cryptography over Noisy Channels“. *Phys. Rev. Lett.*, **77**, 2818–2821 (1996).
- [22] H.-K. Lo und H. F. Chau. „Unconditional Security of Quantum Key Distribution over Arbitrarily Long Distances“. *Science*, **283**(5410), 2050–2056 (1999).
- [23] A. Ulhaq, S. Weiler, S. M. Ulrich, R. Roszbach, M. Jetter und P. Michler. „Cascaded single-photon emission from the Mollow triplet sidebands of a quantum dot“. *Nature Photonics*, **6**(4), 238–242 (2012). 10.1038/nphoton.2012.23.
- [24] M. Nomura, N. Kumagai, S. Iwamoto, Y. Ota und Y. Arakawa. „Laser oscillation in a strongly coupled single-quantum-dot-nanocavity system“. *Nature Physics*, **6**(4), 279–283 (2010). 10.1038/nphys1518.
- [25] P. Asshoff, A. Merz, H. Kalt und M. Hetterich. „A spintronic source of circularly polarized single photons“. *Applied Physics Letters*, **98**(11), 112106 (2011).
- [26] S. Strauf, N. G. Stoltz, M. T. Rakher, L. A. Coldren, P. M. Petroff und D. Bouwmeester. „High-frequency single-photon source with polarization control“. *Nature Photonics*, **1**(12), 704–708 (2007). 10.1038/nphoton.2007.227.
- [27] M. D. Eisaman, J. Fan, A. Migdall und S. V. Polyakov. „Invited Review Article: Single-photon sources and detectors“. *Review of Scientific Instruments*, **82**(7), 071101 (2011).
- [28] P. Michler, A. Kiraz, C. Becher, W. V. Schoenfeld, P. M. Petroff, L. Zhang, E. Hu und A. Imamoglu. „A Quantum Dot Single-Photon Turnstile Device“. *Science*, **290**(5500), 2282–2285 (2000).
- [29] O. Benson, C. Santori, M. Pelton und Y. Yamamoto. „Regulated and Entangled Photons from a Single Quantum Dot“. *Phys. Rev. Lett.*, **84**, 2513–2516 (2000).

- [30] R. M. Stevenson, R. J. Young, P. Atkinson, K. Cooper, D. A. Ritchie und A. J. Shields. „A semiconductor source of triggered entangled photon pairs“. *Nature*, **439**(7073), 179–182 (2006). 10.1038/nature04446.
- [31] N. Akopian, N. H. Lindner, E. Poem, Y. Berlatzky, J. Avron, D. Gershoni, B. D. Gerardot und P. M. Petroff. „Entangled Photon Pairs from Semiconductor Quantum Dots“. *Phys. Rev. Lett.*, **96**, 130 501 (2006).
- [32] A. Dousse, J. Suffczynski, A. Beveratos, O. Krebs, A. Lemaitre, I. Sagnes, J. Bloch, P. Voisin und P. Senellart. „Ultrabright source of entangled photon pairs“. *Nature*, **466**(7303), 217–220 (2010). 10.1038/nature09148.
- [33] B. E. Saleh und M. C. Teich. *Fundamentals of photonics*, Kapitel 10, Seite 356 ff. Wiley series in pure and applied optics. Wiley, Hoboken, N.J., 2. Auflage (2007).
- [34] J.-M. Gérard und B. Gayral. „Strong Purcell effect for InAs quantum boxes in three-dimensional solid-state microcavities“. *Journal of Light-wave Technology*, **17**(11), 2089–2095 (1999).
- [35] F. Schwabl (Hrsg.). *Quantenmechanik (QM I): Eine Einführung*, Kapitel 16, Seite 299 ff. Springer Berlin Heidelberg, 7. Auflage (2007).
- [36] E. M. Purcell. „Spontaneous emission probabilities at radio frequencies“. *Phys. Rev.*, **96**, 681 (1946).
- [37] C. Kittel. *Einführung in die Festkörperphysik*. Oldenbourg Wissenschaftsverlag GmbH (2006).
- [38] E. Jaynes und F. Cummings. „Comparison of quantum and semiclassical radiation theories with application to the beam maser“. *Proceedings of the IEEE*, **51**(1), 89 – 109 (1963).
- [39] L. C. Andreani, G. Panzarini und J.-M. Gérard. „Strong-coupling regime for quantum boxes in pillar microcavities: Theory“. *Phys. Rev. B*, **60**, 13 276–13 279 (1999).
- [40] J. J. Finley, P. W. Fry, A. D. Ashmore, A. Lemaître, A. I. Tartakovskii, R. Oulton, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, M. Hopkinson, P. D. Buckle und P. A. Maksym. „Observation of multicharged excitons and biexcitons in a single InGaAs quantum dot“. *Phys. Rev. B*, **63**, 161 305 (2001).

- [41] A. D. Yoffe. „Semiconductor quantum dots and related systems: Electronic, optical, luminescence and related properties of low dimensional systems“. *Advances in Physics*, **50**(1), 1–208 (2001).
- [42] K. Brunner, G. Abstreiter, G. Böhm, G. Tränkle und G. Weimann. „Sharp-Line Photoluminescence and Two-Photon Absorption of Zero-Dimensional Biexcitons in a GaAs/AlGaAs Structure“. *Phys. Rev. Lett.*, **73**, 1138–1141 (1994).
- [43] P. Michler. „Quantum Dot Single-Photon Sources“. In: P. Michler, P. Avouris, B. Bhushan, D. Bimberg, K. v. Klitzing, H. Sakaki und R. Wiesendanger (Hrsg.), „Single Semiconductor Quantum Dots“, NanoScience and Technology, Seiten 185–225. Springer Berlin Heidelberg (2009).
- [44] R. Loudon. *The Quantum Theory of Light*. Springer, Berlin, 3 Auflage (1999).
- [45] R. J. Glauber. „Photon Correlations“. *Phys. Rev. Lett.*, **10**, 84–86 (1963).
- [46] M. Karl. *Lichteinschluss in pyramidalen und säulenförmigen Mikroresonatoren*. Doktorarbeit, Universität Karlsruhe (TH) (2009).
- [47] S. Iida und K. Ito. „Selective Etching of Gallium Arsenide Crystals in $\text{H}_2\text{SO}_4\text{-H}_2\text{O}_2\text{-H}_2\text{O}$ System“. *J. Electrochem. Soc.*, **118**(5) (1971).
- [48] J. C. Dymant und G. A. Rozgonyi. „Evaluation of a New Polish for Gallium Arsenide Using a Peroxide Alkaline Solution“. *J. Electrochem. Soc.*, **118**(8) (1971).
- [49] J. J. Gannon und C. J. Nuese. „A Chemical Etchant for the Selective Removal of GaAs Through SiO_2 Masks“. *J. Electrochem. Soc.*, **121**(9) (1974).
- [50] S. Adachi und K. Oe. „Chemical Etching Characteristics of (001)GaAs“. *J. Electrochem. Soc.*, **130**(12) (1983).
- [51] A. Bondeson, T. Rylander und P. Ingelström. *Computational electromagnetics*. Springer, New York (2005).
- [52] U. S. Inan und R. A. Marshall. *Numerical Electromagnetics: The FDTD Method*. Cambridge University Press (2011).

- [53] S. D. Gedney. *Introduction to the Finite-Difference Time-Domain (FDTD) Method for Electromagnetics (Synthesis Lectures on Computational Electromagnetics)*. Morgan & Claypool Publishers (2011).
- [54] The FDTD Wiki Community. „The FDTD Wiki“. <http://fdtd.wikispaces.com>.
- [55] K. Yee. „Numerical solution of initial boundary value problems involving Maxwell’s equations in isotropic media“. *IEEE Transactions on Antennas and Propagation*, **14**(3), 302–307 (1966).
- [56] J.-P. Berenger. „A perfectly matched layer for the absorption of electromagnetic waves“. *Journal of Computational Physics*, **114**(2), 185–200 (1994).
- [57] M. Okoniewski und E. Okoniewska. „Drude dispersion in ADE FDTD revisited.“ *Electronics Letters*, **42**(9), 503–504 (2006).
- [58] B. A. Joyce und D. D. Vvedensky. „Self-organized growth on GaAs surfaces“. *Material Science and Engineering*, **R 46**, 127–176 (2004).
- [59] T. Passow, S. Li, P. Feinäugle, T. Vallaitis, J. Leuthold, D. Litvinov, D. Gerthsen und M. Hetterich. „Systematic investigation into the influence of growth conditions on InAs/GaAs quantum dot properties“. *Journal of Applied Physics*, **102**(7), 073511 (2007).
- [60] A. O. Kosogov, P. Werner, U. Gösele, N. N. Ledentsov, D. Bimberg, V. M. Ustinov, A. Y. Egorov, A. E. Zhukov, P. S. Kop’ev, N. A. Bert und Z. I. Alferov. „Structural and optical properties of InAs–GaAs quantum dots subjected to high temperature annealing“. *Applied Physics Letters*, **69**(20), 3072–3074 (1996).
- [61] S. Fafard, Z. R. Wasilewski, C. N. Allen, D. Picard, M. Spanner, J. P. McCaffrey und P. G. Piva. „Manipulating the energy levels of semiconductor quantum dots“. *Phys. Rev. B*, **59**, 15 368–15 373 (1999).
- [62] D. Hu, A. Trampert und D. Schaadt. „Morphology and stress evolution of InAs QD grown and annealed in-situ at high temperature“. *Journal of Crystal Growth*, **312**(3), 447–451 (2010).
- [63] G. D. Lian, J. Yuan, L. M. Brown, G. H. Kim und D. A. Ritchie. „Modification of InAs quantum dot structure by the growth of the capping layer“. *Applied Physics Letters*, **73**(1), 49–51 (1998).

- [64] Z. Wasilewski, S. Fafard und J. McCaffrey. „Size and shape engineering of vertically stacked self-assembled quantum dots“. *Journal of Crystal Growth*, **201-202**(0), 1131 – 1135 (1999).
- [65] A. Ludwig, R. Roescu, A. Rai, K. Trunov, F. Stromberg, M. Li, H. Soldat, A. Ebbing, N. Gerhardt, M. Hofmann, H. Wende, W. Keune, D. Reuter und A. Wieck. „Electrical spin injection in InAs quantum dots at room temperature and adjustment of the emission wavelength for spintronic applications“. *Journal of Crystal Growth*, **323**(1), 376 – 379 (2011). Proceedings of the 16th International Conference on Molecular Beam Epitaxy (ICMBE).
- [66] N. N. Ledentsov, M. V. Maximov, D. Bimberg, T. Maka, C. M. S. Torres, I. V. Kochnev, I. L. Krestnikov, V. M. Lantratov, N. A. Cherkashin, Y. M. Musikhin und Z. I. Alferov. „1.3 μm luminescence and gain from defect-free InGaAs-GaAs quantum dots grown by metal-organic chemical vapour deposition“. *Semiconductor Science and Technology*, **15**(6), 604 (2000).
- [67] B. D. Gerardot, S. Seidl, P. A. Dalgarno, R. J. Warburton, D. Granados, J. M. Garcia, K. Kowalik, O. Krebs, K. Karrai, A. Badolato und P. M. Petroff. „Manipulating exciton fine structure in quantum dots with a lateral electric field“. *Applied Physics Letters*, **90**(4), 041101 (2007).
- [68] W. Heller, U. Bockelmann und G. Abstreiter. „Electric-field effects on excitons in quantum dots“. *Phys. Rev. B*, **57**, 6270–6273 (1998).
- [69] M. M. Vogel, S. M. Ulrich, R. Hafenbrak, P. Michler, L. Wang, A. Rastelli und O. G. Schmidt. „Influence of lateral electric fields on multiexcitonic transitions and fine structure of single quantum dots“. *Applied Physics Letters*, **91**(5), 051904 (2007).
- [70] F. Stockmar. *Einzelquantenpunktspektroskopie – zeitaufgelöst und unter lateralem elektrischen Feld*. Diplomarbeit, Karlsruher Institut für Technologie (KIT) (2010).
- [71] P. Atkinson, S. Kiravittaya, M. Benyoucef, A. Rastelli und O. G. Schmidt. „Site-controlled growth and luminescence of InAs quantum dots using in situ Ga-assisted deoxidation of patterned substrates“. *Applied Physics Letters*, **93**(10), 101908 (2008).
- [72] C. Schneider, A. Huggenberger, T. Sünner, T. Heindel, M. Strauß, S. Göpfert, P. Weinmann, S. Reitzenstein, L. Worschech, M. Kamp,

- S. Höfling und A. Forchel. „Single site-controlled In(Ga)As/GaAs quantum dots: growth, properties and device integration“. *Nanotechnology*, **20**(43), 434 012 (2009).
- [73] F. Albert, S. Stobbe, C. Schneider, T. Heindel, S. Reitzenstein, S. Höfling, P. Lodahl, L. Worschech und A. Forchel. „Quantum efficiency and oscillator strength of site-controlled InAs quantum dots“. *Applied Physics Letters*, **96**(15), 151102 (2010).
- [74] M. Helfrich, D. Hu, J. Hendrickson, M. Gehl, D. Rülke, R. Gröger, D. Litvinov, S. Linden, M. Wegener, D. Gerthsen, T. Schimmel, M. Hetterich, H. Kalt, G. Khitrova, H. Gibbs und D. Schaadt. „Growth and annealing of InAs quantum dots on pre-structured GaAs substrates“. *Journal of Crystal Growth*, **323**(1), 187 – 190 (2011). Proceedings of the 16th International Conference on Molecular Beam Epitaxy (ICMBE).
- [75] D. Bajoni, P. Senellart, E. Wertz, I. Sagnes, A. Miard, A. Lemaitre und J. Bloch. „Polariton laser using single micropillar GaAs-GaAlAs semiconductor cavities“. *Phys. Rev. Lett.*, **100**(4) (2008).
- [76] S. Reitzenstein und A. Forchel. „Quantum dot micropillars“. *Journal of Physics D: Applied Physics*, **43**(3), 033 001 (2010).
- [77] H. Lohmeyer, K. Sebald, C. Kruse, R. Kröger, J. Gutowski, D. Hommel, J. Wiersig, N. Baer und F. Jahnke. „Confined optical modes in monolithic II-VI pillar microcavities“. *Applied Physics Letters*, **88**(5), 051101 (2006).
- [78] J. D. Joannopoulos, P. R. Villeneuve und S. Fan. „Photonic crystals: putting a new twist on light“. *Nature*, **386**(6621), 143–149 (1997). 10.1038/386143a0.
- [79] Y. Akahane, T. Asano, B.-S. Song und S. Noda. „High-Q photonic nanocavity in a two-dimensional photonic crystal“. *Nature*, **425**(6961), 944–947 (2003). 10.1038/nature02063.
- [80] A. Kiraz, P. Michler, C. Becher, B. Gayral, A. Imamoglu, L. Zhang, E. Hu, W. V. Schoenfeld und P. M. Petroff. „Cavity-quantum electrodynamics using a single InAs quantum dot in a microdisk structure“. *Applied Physics Letters*, **78**(25), 3932–3934 (2001).
- [81] D. K. Armani, T. J. Kippenberg, S. M. Spillane und K. J. Vahala. „Ultra-high-Q toroid microcavity on a chip.“ *Nature*, **421**(6926), 925 (2003).

- [82] T. Grossmann, M. Hauser, T. Beck, C. Gohn-Kreuz, M. Karl, H. Kalt, C. Vannahme und T. Mappes. „High-Q conical polymeric microcavities“. *Applied Physics Letters*, **96**(1), 013303 (2010).
- [83] T. Aoki, B. Dayan, E. Wilcut, W. P. Bowen, A. S. Parkins, T. J. Kippenberg, K. J. Vahala und H. J. Kimble. „Observation of strong coupling between one atom and a monolithic microresonator“. *Nature*, **443**(7112), 671–674 (2006). 10.1038/nature05147.
- [84] C. Böckler, S. Reitzenstein, C. Kistner, R. Debusmann, A. Löffler, T. Kida, S. Höfling, A. Forchel, L. Grenouillet, J. Claudon und J. M. Gérard. „Electrically driven high-Q quantum dot-micropillar cavities“. *Applied Physics Letters*, **92**(9), 091107 (2008).
- [85] T. Heindel, C. Schneider, M. Lermer, S. H. Kwon, T. Braun, S. Reitzenstein, S. Höfling, M. Kamp und A. Forchel. „Electrically driven quantum dot-micropillar single photon source with 34% overall efficiency“. *Applied Physics Letters*, **96**(1), 011107 (2010).
- [86] S. Spillane, T. Kippenberg, K. Vahala, K. Goh, E. Wilcut und H. Kimble. „Ultrahigh-Q toroidal microresonators for cavity quantum electrodynamics“. *Phys. Rev. A*, **71**(1) (2005).
- [87] P. Michler, A. Kiraz, L. Zhang, C. Becher, E. Hu und A. Imamoglu. „Laser emission from quantum dots in microdisk structures“. *Applied Physics Letters*, **77**(2), 184–186 (2000).
- [88] B. Min, T. Kippenberg, L. Yang, K. Vahala, J. Kalkman und A. Polman. „Erbium-implanted high-Q silica toroidal microcavity laser on a silicon chip“. *Phys. Rev. A*, **70**(3) (2004).
- [89] T. Grossmann, S. Klinkhammer, M. Hauser, D. Floess, T. Beck, C. Vannahme, T. Mappes, U. Lemmer und H. Kalt. „Strongly confined, low-threshold laser modes in organic semiconductor microgloblets“. *Opt. Express*, **19**(10), 10009–10016 (2011).
- [90] C. Reinheimer. *Einzelquantenpunktspektroskopie, Korrelationsmessungen und Simulation von GaAs-basierten Mikroresonatoren*. Diplomarbeit, Karlsruher Institut für Technologie (KIT) (2011).
- [91] F. Büchle. *Kolloidale Halbleiterquantenpunkte in optischen Mikroresonatoren*. Diplomarbeit, Karlsruher Institut für Technologie (KIT) (2012).

- [92] M. Karl, S. Li, T. Passow, W. Löffler, H. Kalt und M. Hetterich. „Localized and delocalized modes in coupled optical micropillar cavities“. *Opt. Express*, **15**(13), 8191–8196 (2007).
- [93] M. Karl, B. Kettner, S. Burger, F. Schmidt, H. Kalt und M. Hetterich. „Dependencies of micro-pillar cavity quality factors calculated with finite element methods“. *Opt. Express*, **17**(2), 1144–1158 (2009).
- [94] D. Rülke. *Methoden zur Verbesserung des Lichteinschlusses in pyramidalen optischen Mikroresonatoren aus GaAs*. Diplomarbeit, Universität Karlsruhe (TH) (2009).
- [95] D. Rülke, M. Karl, D. Z. Hu, D. M. Schaadt, H. Kalt und M. Hetterich. „Optical microcavities fabricated by DBR overgrowth of pyramidal-shaped GaAs mesas“. *Journal of Crystal Growth*, **324**(1), 259 – 262 (2011).
- [96] C. Foxon. „Control of MBE, MOMBE and CBE growth using RHEED“. *Applied Surface Science*, **50**(1-4), 28–33 (1991).
- [97] T. Rivera, J.-P. Debray, J. M. Gérard, B. Legrand, L. Manin-Ferlazzo und J. L. Oudar. „Optical losses in plasma-etched AlGaAs microresonators using reflection spectroscopy“. *Applied Physics Letters*, **74**(7), 911–913 (1999).
- [98] S. Reitzenstein, C. Hofmann, A. Gorbunov, M. Strauß, S. H. Kwon, C. Schneider, A. Löffler, S. Höfling, M. Kamp und A. Forchel. „AlAs/GaAs micropillar cavities with quality factors exceeding 150.000“. *Applied Physics Letters*, **90**(25), 251109 (2007).
- [99] J. Lupaca-Schomber. *Anwendung und Optimierung verschiedener Verfahren zur Herstellung von 3D-Resonatoren aus III-V- und II-VI-Halbleitern*. Doktorarbeit, Universität Karlsruhe (TH) (2006).
- [100] M. Karl. *Herstellung und Untersuchung GaAs-basierter Halbleiter-Mikroresonatoren*. Diplomarbeit, Universität Karlsruhe (TH) (2006).
- [101] F. M. Weber. *Optische Resonatormoden in GaAs-Mikropyramiden*. Diplomarbeit, Universität Karlsruhe (TH) (2007).
- [102] T. Beck. *Herstellung und Charakterisierung optischer Galliumarsenid-Mikroresonatoren mit pyramidalen Geometrien*. Diplomarbeit, Universität Karlsruhe (TH) (2008).

- [103] V. Cambel, D. Gregušová und R. Kúdela. „Formation of GaAs three-dimensional objects using AlAs “facet-forming” sacrificial layer and H_3PO_4 , H_2O_2 , H_2O based solution“. *J. Appl. Phys.*, **94**(7) (2003).
- [104] M. Karl, T. Beck, S. Li, H. Kalt und M. Hetterich. „Q-factor and density of optical modes in pyramidal and cone-shaped GaAs microcavities“. *Applied Physics Letters*, **92**(231105) (2008).
- [105] J. S. Smith, P. L. Derry, S. Margalit und A. Yariv. „High quality molecular beam epitaxial growth on patterned GaAs substrates“. *Applied Physics Letters*, **47**(7), 712–715 (1985).
- [106] M. Hauser. *Mikroresonatoren aus Glas und Polymeren als optische Flüglergalerien*. Doktorarbeit, Karlsruher Institut für Technologie (KIT) (2011).
- [107] S. O. Kasap und P. Capper. *Springer handbook of electronic and photonic materials*. Springer (2006).
- [108] P. A. Frantsuzov und R. A. Marcus. „Explanation of quantum dot blinking without the long-lived trap hypothesis“. *Phys. Rev. B*, **72**, 155 321 (2005).
- [109] M. Kuno, D. P. Fromm, H. F. Hamann, A. Gallagher und D. J. Nesbitt. „Nonexponential “blinking” kinetics of single CdSe quantum dots: A universal power law behavior“. *The Journal of Chemical Physics*, **112**(7), 3117–3120 (2000).
- [110] M. Kuno, D. P. Fromm, S. T. Johnson, A. Gallagher und D. J. Nesbitt. „Modeling distributed kinetics in isolated semiconductor quantum dots“. *Phys. Rev. B*, **67**, 125 304 (2003).
- [111] L. Coolen, X. Brokmann, P. Spinicelli und J.-P. Hermier. „Emission Characterization of a Single CdSe-ZnS Nanocrystal with High Temporal and Spectral Resolution by Photon-Correlation Fourier Spectroscopy“. *Phys. Rev. Lett.*, **100**, 027 403 (2008).
- [112] T. Grossmann, S. Schleede, M. Hauser, M. B. Christiansen, C. Vanname, C. Eschenbaum, S. Klinkhammer, T. Beck, J. Fuchs, G. U. Nienhaus, U. Lemmer, A. Kristensen, T. Mappes und H. Kalt. „Low-threshold conical microcavity dye lasers“. *Applied Physics Letters*, **97**(6), 063304 (2010).
- [113] N. Gisin, G. Ribordy, W. Tittel und H. Zbinden. „Quantum cryptography“. *Rev. Mod. Phys.*, **74**, 145–195 (2002).

- [114] P. G. Kwiat und R. Y. Chiao. „Observation of a nonclassical Berry’s phase for the photon“. *Phys. Rev. Lett.*, **66**, 588–591 (1991).
- [115] S. Fasel, O. Alibart, S. Tanzilli, P. Baldi, A. Beveratos, N. Gisin und H. Zbinden. „High-quality asynchronous heralded single-photon source at telecom wavelength“. *New Journal of Physics*, **6**(1), 163 (2004).
- [116] Q. Wang, W. Chen, G. Xavier, M. Swillo, T. Zhang, S. Sauge, M. Tengner, Z.-F. Han, G.-C. Guo und A. Karlsson. „Experimental Decoy-State Quantum Key Distribution with a Sub-Poissonian Heralded Single-Photon Source“. *Phys. Rev. Lett.*, **100**, 090 501 (2008).
- [117] C. W. Chou, S. V. Polyakov, A. Kuzmich und H. J. Kimble. „Single-Photon Generation from Stored Excitation in an Atomic Ensemble“. *Phys. Rev. Lett.*, **92**, 213 601 (2004).
- [118] M. Hijlkema, B. Weber, H. P. Specht, S. C. Webster, A. Kuhn und G. Rempe. „A single-photon server with just one atom“. *Nature Physics*, **3**(4), 253–255 (2007). 10.1038/nphys569.
- [119] M. Keller, B. Lange, K. Hayasaka, W. Lange und H. Walther. „Continuous generation of single photons with controlled waveform in an ion-trap cavity system“. *Nature*, **431**(7012), 1075–1078 (2004). 10.1038/nature02961.
- [120] T. Basché, W. E. Moerner, M. Orrit und H. Talon. „Photon antibunching in the fluorescence of a single dye molecule trapped in a solid“. *Phys. Rev. Lett.*, **69**, 1516–1519 (1992).
- [121] S. G. Lukishova, A. W. Schmid, A. J. McNamara, R. Boyd und C. R. Stroud, Jr. „Room temperature single-photon Source:Single-dye molecule fluorescence in Liquid Crystal host“. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, **9**(6), 1512 – 1518 (2003).
- [122] R. Alléaume, F. Treussart, J.-M. Courty und J.-F. Roch. „Photon statistics characterization of a single-photon source“. *New Journal of Physics*, **6**(1), 85 (2004).
- [123] X. Brokmann, E. Giacobino, M. Dahan und J. P. Hermier. „Highly efficient triggered emission of single photons by colloidal CdSe/ZnS nanocrystals“. *Applied Physics Letters*, **85**(5), 712–714 (2004).
- [124] S. Kako, C. Santori, K. Hoshino, S. Gotzinger, Y. Yamamoto und Y. Arakawa. „A gallium nitride single-photon source operating at 200 K“. *Nature Materials*, **5**(11), 887–892 (2006). 10.1038/nmat1763.

- [125] A. Beveratos, R. Brouri, T. Gacoin, J. Poizat und P. Grangier. „Non-classical radiation from diamond nanocrystals“. *Phys. Rev. A*, **64**(6) (2001).
- [126] A. Beveratos, R. Brouri, T. Gacoin, A. Villing, J. Poizat und P. Grangier. „Single photon quantum cryptography“. *Phys. Rev. Lett.*, **89**(18) (2002).
- [127] G. Ortner, M. Schwab, M. Bayer, R. Pässler, S. Fafard, Z. Wasilewski, P. Hawrylak und A. Forchel. „Temperature dependence of the excitonic band gap in $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ –GaAs self-assembled quantum dots“. *Phys. Rev. B*, **72**, 085328 (2005).
- [128] J. Beetz, C. Kistner, M. Lermer, C. Schneider, S. Reitzenstein, S. Höfling, M. Kamp und A. Forchel. „In-plane manipulation of quantum dots in high quality laterally contacted micropillar cavities“. *Applied Physics Letters*, **98**(19), 191111 (2011).
- [129] D. Rülke, D. M. Schaadt, H. Kalt und M. Hetterich. „Efficient single-photon extraction from quantum-dots embedded in GaAs micro-pyramids“. *Applied Physics Letters*, **100**(25), 251101 (2012).
- [130] Y. Mori und N. Watanabe. „A New Etching Solution System, $\text{H}_3\text{PO}_4 - \text{H}_2\text{O}_2 - \text{H}_2\text{O}$, for GaAs and Its Kinetics“. *J. Electrochem. Soc.*, **125**(9) (1978).
- [131] H. F. Hsieh und H. C. Shih. „The Electrochemical Nature of GaAs in Acids: A Comparison with InP“. *J. Electrochem. Soc.*, **138**(7) (1991).
- [132] 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. Peitlord, T. K. Quach, J. S. Sewell und G. D. Via. „Wet Chemical Digital Etching of GaAs at Room Temperature“. *J. Electrochem. Soc.*, **143**(11) (1996).
- [133] P. Asshoff. *Spin-based Optoelectronics with Semiconductor Quantum Dots*. Doktorarbeit, Karlsruher Institut für Technologie (KIT) (2011).
- [134] P. Bhattacharya, A. Das, D. Basu, W. Guo und J. Heo. „An electrically injected quantum dot spin polarized single photon source“. *Applied Physics Letters*, **96**(10), 101105 (2010).
- [135] C. Madams, D. Morgan und M. Howes. „Outmigration of gallium from Au-GaAs interfaces“. *Electronics Letters*, **11**(24), 574–575 (1975).

- [136] A. A. Talin, D. A. A. Ohlberg, R. S. Williams, P. Sullivan, I. Koutselas, B. Williams und K. L. Kavanagh. „Time dependent ballistic electron emission microscopy studies of a Au/(100)GaAs interface with a native oxide diffusion barrier“. *Applied Physics Letters*, **62**(23), 2965–2967 (1993).
- [137] R. P. Tijburg und T. van Dongen. „Selective Etching of III-V Compounds with Redox Systems“. *Journal of The Electrochemical Society*, **123**(5), 687–691 (1976).

Danksagung

Abschließend möchte ich mich bei all denen bedanken, die direkt oder indirekt einen wesentlichen Anteil am Gelingen dieser Arbeit hatten. Insbesondere danke ich

- Priv.-Doz. Dr. Michael Hetterich für die sympathische Betreuung, die intensiven fachlichen Diskussionen, sowie die akribischen Korrekturen schriftlicher Dokumente.
- Prof. Dr. Heinz Kalt für die Möglichkeit zur Durchführung dieser Arbeit, seine hilfreichen fachlichen Ratschläge und sein Vertrauen, den Freiraum für eigenständiges Arbeiten zu lassen.
- Prof. Dr. Daniel M. Schaadt für seine hilfreiche Beratung und Betreuung in Bezug auf das Wachstum an der III-V-MBE.
- Dipl.-Phys. Felix Büchle für seine Arbeiten rund um die Integration von CdSe/ZnS-Quantenpunkten in PMMA-Scheibenresonatoren.
- Dipl.-Phys. Christoph Reinheimer für seine Arbeiten rund um den Aufbau des *Hanbury-Brown & Twiss*-Setups.
- Dipl.-Phys. Florian Stockmar für seine Arbeiten rund um die Messung und Herstellung von optischen Mikroresonatoren und zur Messung des *Quantum-Confined Stark Effect* an Quantenpunkten.
- Patrice Brenner für die konstruktive Zusammenarbeit bei den Bemühungen die Herstellung der Säulenresonatoren zu optimieren.
- Alexander Hepting für die sehr hilfreichen Anregungen und Lösungen bei verschiedensten technischen Fragestellungen.
- Heinz Leonhard für die Mitplanung verschiedener Bauteile und Hilfe im Laborbetrieb.
- Heinrich Reimer für seine Hilfe im Laborbetrieb und die Durchführung von Hall-Messungen.
- Werner Gilde für die immer schnelle und kompetente Reparatur defekter Elektronik.

- Helmut Lay, Michael Hippe und Heinz Hoffmann für die ebenso schnelle und kompetente Hilfe bei IT-Problemen.
- der gesamten Feinmechanikwerkstatt für die hervorragende Qualität der angefertigten Bauteile.
- Renate Helfen, Claudia Alaya und Monika Brenkmann für die tapfere und immer freundliche Arbeit an der Bürokratiefront unseres Instituts.
- der Karlsruhe School of Optics & Photonics (KSOP) für die finanzielle Unterstützung und die vielen Möglichkeiten zur persönlichen Weiterbildung.
- dem Center for Functional Nanostructures (CFN) für die finanzielle Unterstützung des Projekts und die Bereitstellung von Geräten und Laboren.
- der Nachwuchsgruppe Schaadt für die gute Zusammenarbeit an der III-V-MBE.
- der gesamten AG Kalt für die konstruktive, freundschaftliche Atmosphäre während und nach der Arbeit.
- meiner Familie für die Unterstützungen jeglicher Art während meiner Promotion und meines Studiums.
- meiner Frau Francesca für die liebevolle Unterstützung besonders am arbeitsreichen Ende meiner Promotion, die mir eine große Hilfe war, diese Aufgabe mit Ruhe zu meistern.

Dipl.-Phys. Daniel Rülke

Karlsruher Institut für Technologie (KIT)
Institut für Angewandte Physik und
Center for Functional Nanostructures (CFN)
Wolfgang-Gaede-Straße 1
76131 Karlsruhe

daniel.ruelke@kit.edu
www.aph.kit.edu/kalt