

# Photonische Kristalle

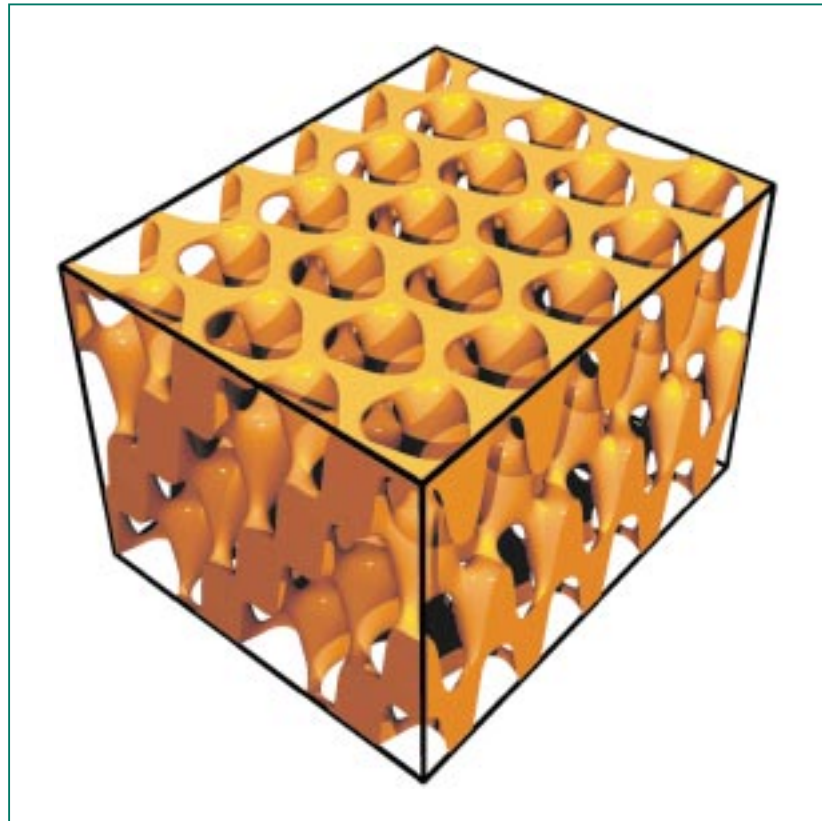
C. Becker<sup>1,3</sup>, M. Deubel<sup>1,2,3</sup>, C. Enkrich<sup>1,2,3</sup>, G. von Freymann<sup>1,3</sup>, M. Hermatschweiler<sup>2,3</sup>, T. Kuhn<sup>2</sup>, S. Linden<sup>1,3</sup>, D. Meisel<sup>1,3</sup>, T. Sünner<sup>2,3</sup>, M. Wegener<sup>1,2,3</sup>;

<sup>1</sup>INT; <sup>2</sup>Institut für Angewandte Physik, Universität Karlsruhe (TH); <sup>3</sup>DFG-Centrum für Funktionelle Nanostrukturen (CFN)

## Einleitung

In einem Silizium-Halbleiterkristall bewegen sich die Elektronen wie Wellen, deren de-Broglie-Wellenlänge vergleichbar ist mit der Gitterkonstanten des Kristalls. In der Folge ergeben sich bekanntermaßen Blochwellen mit einer besonderen Dispersionsrelation, der Bandstruktur der Kristallelektronen. Bei Halbleitern resultiert zudem eine Bandlücke, die die Grundvoraussetzung für die gesamte Halbleitertechnologie darstellt.

Eine ganz ähnliche Situation erhält man, wenn sich Wasserwellen über einem periodisch modulierten Untergrund bewegen oder wenn Schallwellen sich in einem Medium ausbreiten, dessen Schallgeschwindigkeit auf der Skala der Schallwellenlänge periodisch moduliert ist. Von besonderem technischen Interesse ist es, die Propagation von Lichtwellen zu beeinflussen. Dies geschieht in so genannten *Photonischen Kristallen*, in denen die Lichtgeschwindigkeit, also auch die optische Brechzahl, auf der Skala der Wellenlänge des Lichts in drei Dimensionen periodisch moduliert ist (siehe Abb. 1). Resultiert für geeignete Parameter weiterhin eine vollständige dreidimensionale Bandlücke, d.h. ist die Propagation elektromagnetischer Wellen eines Frequenzbereichs unabhängig von der Richtung und für alle Polarisierungen unterdrückt, so spricht man von *Photonischen Bandlücken-Materialien*. Derartige optische Materialien sind für verschiedene Anwendungen hochinteressant, z.B. in der optischen Telekommunikation,



**Abb. 1: Computersimulation eines Ausschnitts aus einem dreidimensionalen Photonischen Kristall mit kubisch flächenzentrierter Translationsymmetrie, hergestellt durch holographische Lithographie.**

für neuartige Laser, für Beleuchtungszwecke oder auch als maßgeschneiderte Medien für die Nichtlineare Optik. Es war aber lange unklar, ob es solche Materialien überhaupt geben kann. Zwar würde man dies in Analogie zu den Elektronenwellen im Halbleiter eigentlich erwarten, bei genauerer Betrachtung sind die Elektronenwellen jedoch skalare Wellen, die Lichtwellen hingegen Vektorwellen, d.h. sie haben nicht nur an jedem Ort zu einer Zeit einen bestimmten Zahlenwert, sondern zudem eine Orientierung (Polarisation). Außerdem sind die Potentiale für Elektronen typischerweise viel tiefer als die „Po-

tentiale“ für Licht. Die Antwort blieb offen. Erst vor etwas mehr als zehn Jahren wurde sie von zwei Physikern, Eli Yablonovitch [1] und Sajeev John [2], unabhängig voneinander beantwortet: Es gibt Photonische Bandlücken-Materialien – prinzipiell. Es dauerte dann noch einige Jahre, bis konkrete Strukturen theoretisch vorgeschlagen wurden, die eine wirkliche Chance auf technische Realisierung im optischen Bereich hatten [3].

Eine befriedigende Herstellung dreidimensionaler Photonischer Kristalle ist bis dato allerdings immer noch nicht möglich. Generell

besteht die große Herausforderung darin, dass die Gitterkonstanten im Bereich weniger hundert Nanometer liegen, mit kleinsten Strukturbreiten unter 100 Nanometern, wobei die Oberflächenrauigkeit kleiner als 10 Nanometer sein muss. Gleichzeitig ist man an „ausgedehnten“ Photonischen Kristallen mit lateralen Abmessungen im Quadratmillimeter oder Quadratzentimeter-Maßstab interessiert. Weiterhin ist die Auswahl an Basismaterialien beschränkt, weil hohe Brechzahlen ( $n > 2$ ) erforderlich sind.

In Karlsruhe wird hierbei auf eine Strategie gesetzt, in der zunächst Photolack-Template als „verlorene Formen“ hergestellt werden, die dann z.B. mittels Dampfphasenepitaxie (CVD) mit hochbrechenden Materialien abgeformt werden. Für die Herstellung der Photolack-Template werden zwei komplementäre aber zugleich kompatible Techniken eingesetzt, nämlich die so genannte *Holographische Lithographie* und das *direkte Laserschreiben*. Die Holographische Lithographie erlaubt die schnelle und großflächige Herstellung qualitativ hochwertiger dreidimensional periodischer Photonischer Kristalle; das kontrollierte Einbringen von Defekten und/oder Wellenleitern für „optische Chips“ ist aber mit dieser Technik nicht ohne weiteres möglich. Mit dem direkten Laserschreiben kann man hingegen nahezu beliebige Nanostrukturen in drei Dimensionen darstellen, allerdings seriell (analog zur Elektronenstrahl-Lithographie in zwei Dimensionen) und daher viel langsamer. In zwei aufeinander

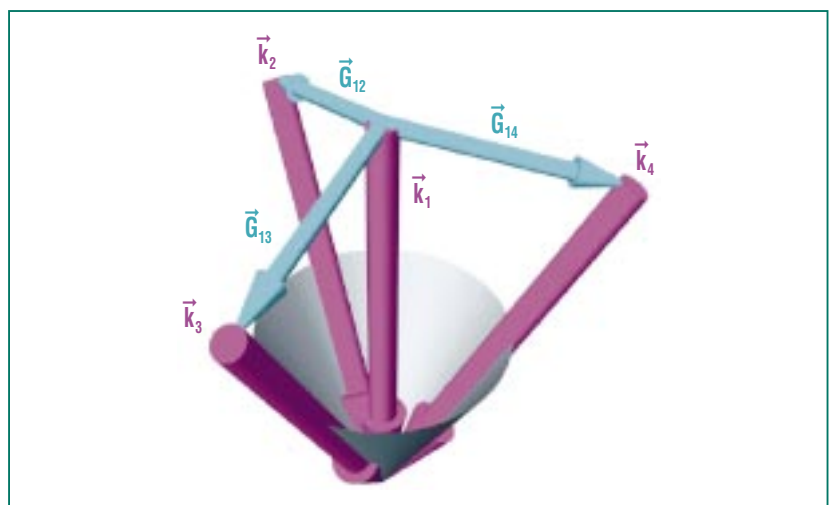
folgenden Belichtungen können die Vorteile beider Techniken kombiniert werden, da der gleiche Photolack verwendet werden kann.

### Holographische Lithographie

Bei der holographischen Lithographie überlagert man vier oder mehr kohärente Laserstrahlen im Inneren einer Photolackschicht. Die resultierenden *dreidimensionalen* Interferenzmuster sind aus der Atomphysik bekannt [4-6] und wurden im Jahr 2000 [7] erstmals genutzt, um einen Photolack zu belichten. Im anschließenden Entwicklungsschritt werden unterbelichtete Bereiche nasschemisch gelöst, die überbelichteten Bereiche bleiben stehen. So entsteht eine poröse Photolackstruktur, deren Form durch das Interferenzmuster bestimmt und somit kontrollierbar ist.

Nähert man die Laserstrahlen durch ebene Wellen an, so wird jeder Lichtstrahl durch fünf freie Parameter beschrieben: zwei legen die Richtung des Lichtwellenvektors  $\vec{k}$  bei gegebener Lichtwellenlänge fest, zwei weitere definieren die Polarisation (z.B. für elliptisch polarisiertes Licht parametrisiert durch die Richtung der großen Halbachse und die Elliptizität) und ein weiterer Parameter beschreibt die Intensität des Lichtstrahls. Für eine Vierstrahlinterferenz ergeben sich insgesamt vier mal fünf, also 20 freie Parameter, was eine schier unüberschaubare Zahl an Möglichkeiten bedeutet, von denen die am besten geeignete gefunden werden soll.

Die Intensität  $I$  des resultierenden Stehwellenfeldes als Funktion des Ortes  $r$  ist gegeben durch das Betragsquadrat einer Überlagerung von ebenen Lichtwellen (ausgedrückt durch deren elektrisches



**Abb. 2: Schematische Darstellung der holographischen Lithographie. Es sind die vier Wellenvektoren  $k_n$  und exemplarisch drei reziproke Gittervektoren  $G_{nm}$  dargestellt. Sämtliche reziproke Gittervektoren liegen auf einem kubisch raumzentrierten Gitter. Dies führt zu einer kubisch flächenzentrierten Photolackstruktur (siehe Abb. 1).**

Feld  $\vec{E}$ ) und kann in die Form einer Fourierreihe gebracht werden:

$$I(\vec{r}) \propto \left| \sum_{n=1}^4 \vec{E}_n \exp(i(\vec{k}_n \cdot \vec{r} - \omega t)) \right|^2 = \sum_{m=1}^4 \sum_{l=1}^4 a_{ml} \exp(i\vec{G}_{ml} \cdot \vec{r})$$

$$\text{mit } \vec{G}_{ml} = \vec{k}_m - \vec{k}_l \quad \text{und} \quad a_{ml} = \vec{E}_m \cdot \vec{E}_l^*$$

Die aus der Festkörperphysik bekannten reziproken Gittervektoren  $\vec{G}_{ml}$  ergeben sich als Differenzen der Lichtwellenvektoren  $\vec{k}_n$ . Man erhält bei Überlagerung von vier nicht komplanaren Strahlen drei linear unabhängige reziproke Gittervektoren und somit immer ein dreidimensional periodisches Interferenzmuster. Theoretisch kann jedes beliebige der 14 möglichen Gittertypen mit vier Laserstrahlen erzeugt werden. Die von uns verwendete Strahlenkonfiguration ist in Abb. 2 illustriert. Möchte man z.B. ein Helligkeitsmuster erzeugen, das durch ein kubisch flächenzentriertes (fcc)

Raumgitter beschrieben wird, so sind die Lichtwellenvektoren/Einstrahlrichtungen so einzustellen, dass die reziproken Gittervektoren auf einem kubisch raumzentrierten (bcc) Gitter liegen. Acht der 20 freien Parameter sind also „schon“ eliminiert. Der Rest steckt in den so genannten Formfaktoren  $a_{ml}$ . Sie ergeben sich aus den Produkten der Feldstärken der vier Teilwellen, also aus deren Amplituden bzw. Intensitäten und deren Polarisationen. Diese Parameter beeinflussen die Form der „dielektrischen Atome“, d.h. die Form des Motivs in der Sprechweise der Kristallographie. Raum-

gitter und Motiv zusammen ergeben die Kristallstruktur. Erst kürzlich konnten mit Methoden der Kristallographie Parameterkombinationen aufgezeigt werden [9], die schließlich zu Strukturen mit den erwünschten vollständigen dreidimensionalen photonischen Bandlücken führen. Eine experimentell vorteilhafte Möglichkeit ist hierbei eine Struktur rhomboedrischer Kristallsymmetrie (Gesamtsymmetrie) aber fcc Translationssymmetrie [9].

Um fcc Translationssymmetrie zu erreichen, muss jedoch ein weiteres experimentelles Problem beachtet werden. In Abb. 3 ist die Bruchkante einer Photolackstruktur, abgelöst vom Glassubstrat, zu sehen. Hierbei wurden die vier Laserstrahlen so angeordnet, dass das reziproke Gitter *in Luft* kubisch raumzentriert ist, das Interferenzmuster *in Luft* ist also fcc. Auf einer Fläche von  $100 \mu\text{m}^2$  und mehr sind kaum Im-

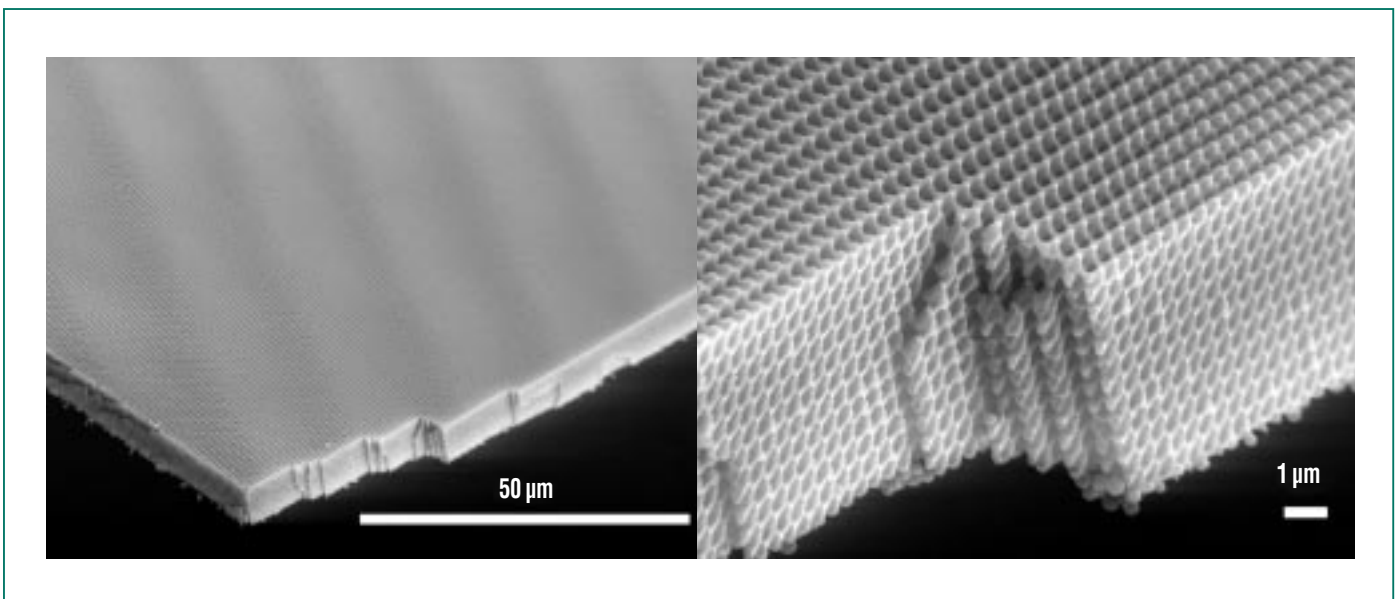


Abb. 3: Elektronenmikroskopische Aufnahme eines Photolack-Templats in zwei unterschiedlichen Vergrößerungen [7].

perfektionen/Defekte erkennbar. In der stärkeren Vergrößerung werden die Details des Photonicen Kristalls deutlich. Allerdings ist diese spezielle Photolackstruktur in Hinblick auf eine

vollständige Bandlücke nicht geeignet, weil sie keine fcc Translationsymmetrie hat. Die Ursache hierfür liegt in der Brechung der Laserstrahlen an der Grenzfläche Luft/Photolack hin zum Lot (links

in Abb. 4). Hierdurch ergeben sich andere, kürzere und „falsche“ reziproke Gittervektoren. Dadurch liegt das Helligkeitsmuster *nicht* auf einem fcc Gitter. Eine genaue Analyse [8] unter Berücksichtigung des Grenzwinkels der Totalreflexion zeigt, dass es prinzipiell unmöglich ist, diesen Effekt einfach durch Änderung des Einfallswinkels zu kompensieren. Die rechts in Abb. 4 gezeigte, zum Patent angemeldete Anordnung ermöglicht hingegen das Erzeugen der gewünschten Vektoren im Inneren der Photolackschicht. Durch diesen „Trick“ konnte erstmals ein Photonischer Kristall mit kubisch flächenzentrierter Translationsymmetrie mittels holographischer Lithographie hergestellt werden [8]. Eine elektronenmikroskopische Aufnahme einer solchen Probe stimmt gut mit der entsprechenden Computersimulation in Abb. 1 überein [8]. Das zugehörige optische Transmissionspektrum (gemessen entlang der [111] Richtung des Photonischen Kristalls) in Abb. 5 weist ein ausgeprägtes Minimum auf, das in Position und Breite mit der in der Bandstruktur berechneten Position der partiellen Bandlücke (blau schattiert) übereinstimmt.

### Direktes Laserschreiben

Bei der Technik des direkten Laserschreibens wird der Strahl eines Femtosekundenlasers in das Volumen des Photolacks fokussiert. Nur im Fokus ist die Intensität so hoch, dass dieser Bereich belichtet wird und nach der Entwicklung stehen bleibt. Durch sequentielles Abrastern in drei Dimensionen mittels eines Piezo-

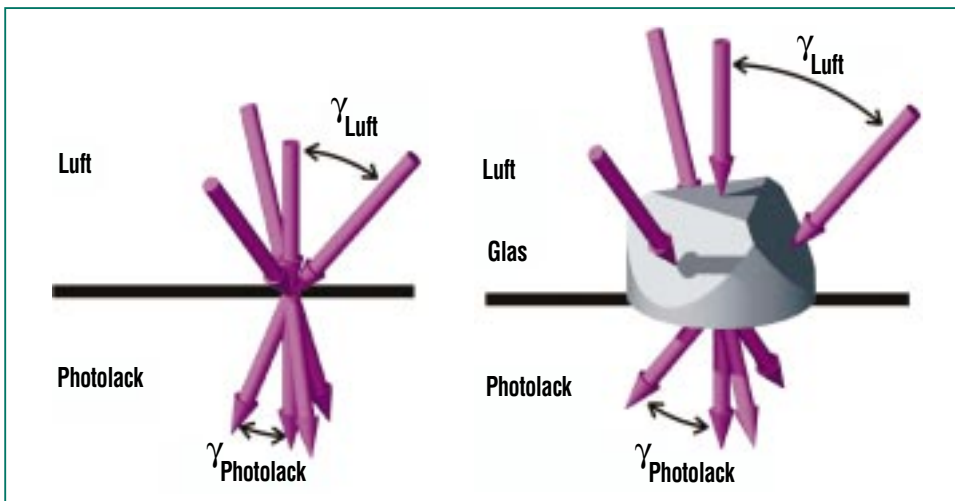


Abb. 4: Schematische Darstellung der vier Laserstrahlen ohne (links) und mit (rechts) speziellem Einkoppelprisma.

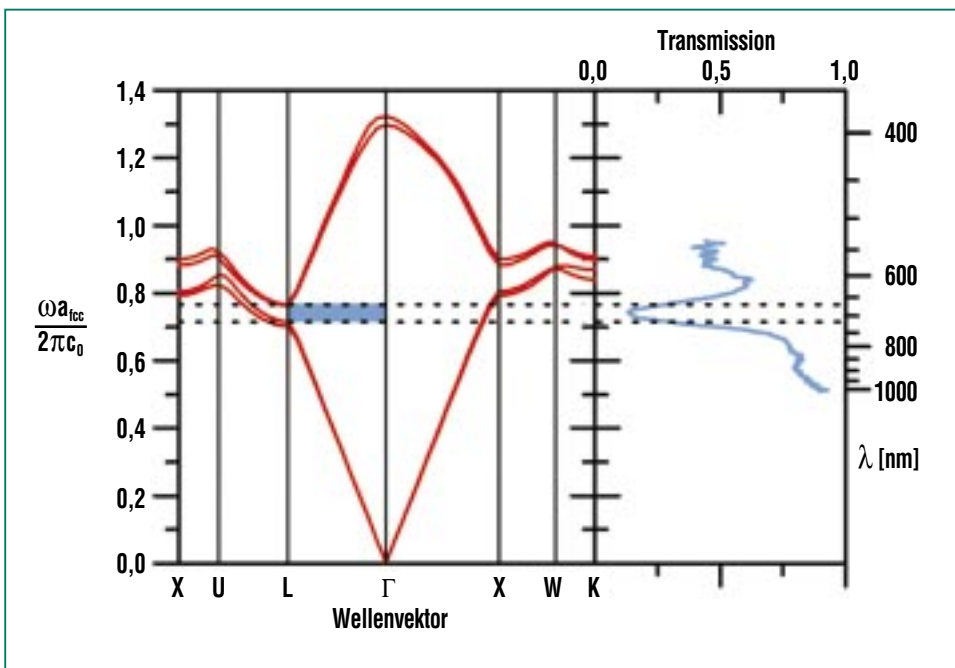
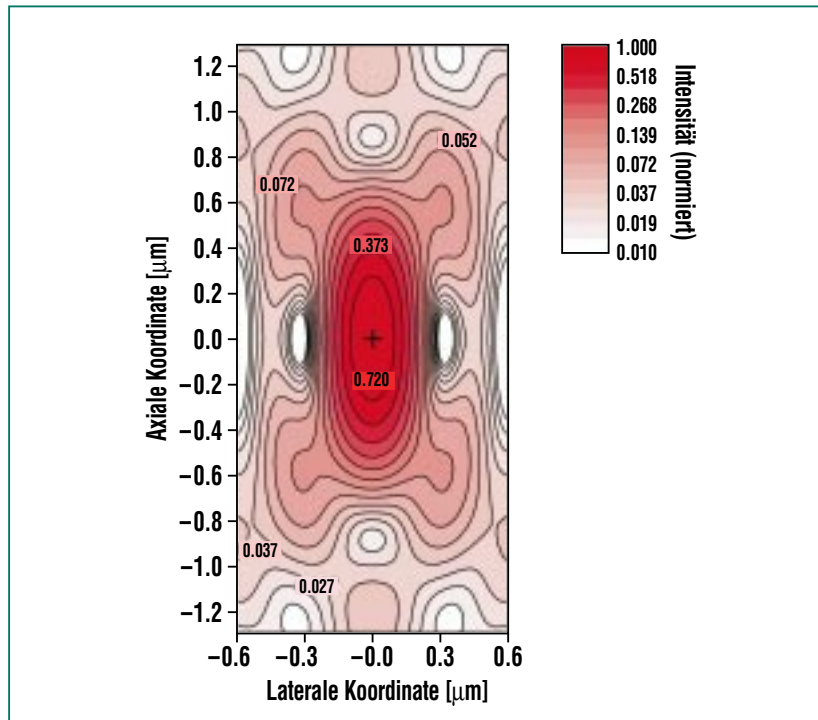


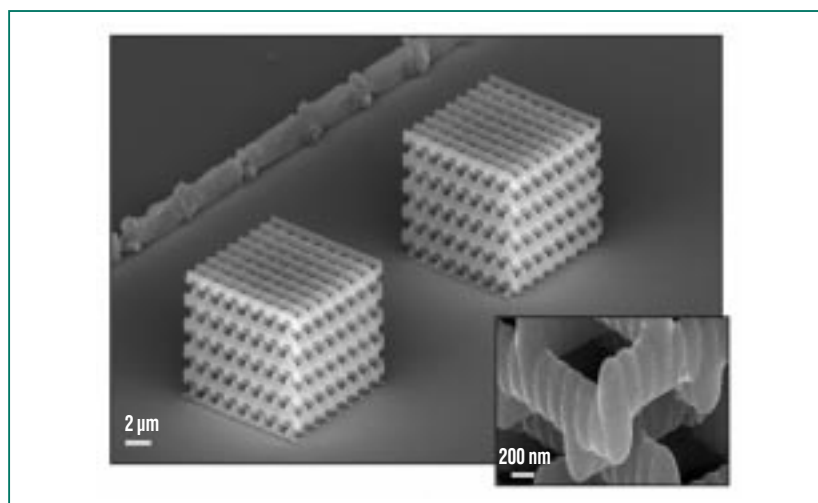
Abb. 5: Optisches Transmissionspektrum (rechts) und berechnete Bandstruktur (links) eines dreidimensionalen Photonischen Kristalls mit fcc Translationsymmetrie, hergestellt mittels holographischer Lithographie unter Verwendung eines Einkoppelprismas [7].

verschiebetisches können praktisch beliebige dreidimensionale Strukturen hergestellt werden. Hierbei sind zwei Aspekte wichtig. (i) Um nanoskalige Strukturen sowohl in lateraler als auch in axialer Richtung zu erreichen, wird ein Mikroskopobjektiv möglichst hoher numerischer Apertur (NA) benötigt. Wir verwenden ein Ölimmersionsobjektiv mit  $NA = 1,4$ . Die hierzu berechneten Isointensitätsflächen sind in Abb. 6 dargestellt. (ii) Um zu vermeiden, dass sich während des Rasterprozesses durch immer wieder schwach belichtete Bereiche Akkumulationseffekte ergeben, muss ein Mehrphotonen-Absorptionsprozess verwendet werden. Bei Dreiphotonenabsorption wird so zum Beispiel aus einer 10% Restintensität effektiv nur noch 0,1% Restbelichtung. Die entsprechende Mehrphotonen-Absorptionswahrscheinlichkeit wird durch den Einsatz von intensiven Femtosekundenimpulsen hinreichend groß. Gleichwohl liegen typische Impulsenergien der circa 100 Femtosekunden kurzen Impulse bei nur 10 nJ.

Abb. 7 zeigt einen Photonischen Kristall bei dem jedes „Nano-Ei“ aus der Belichtung mit einem einzelnen Laserimpuls resultiert. Das Herstellungsprinzip ist so klar erkennbar. Für Anwendungen sind solche Strukturen aber viel zu klein. Um deutlich größere Strukturen bei etwa gleichen Herstellungszeiten zu erhalten, verwenden wir häufig einen Modus, in dem der Piezoverschiebetisch kontinuierlich verfahren wird. So sind größere Lineargeschwindigkeiten erreichbar. Gleichzeitig werden die „Nano-Eier“ ver-



**Abb. 6:** Berechnete Isointensitätsflächen im Fokus eines Ölimmersions-Mikroskopobjektives mit einer numerischen Apertur von 1,4 bei einer Laserwellenlänge von 800 nm. Die Isointensitätsflächen sind rotationssymmetrisch um die vertikale Achse angeordnet. Die innerste Isophote z.B. führt so zu „Nano-Eiern“, die im Einschub in Abb. 7 deutlich erkennbar sind.

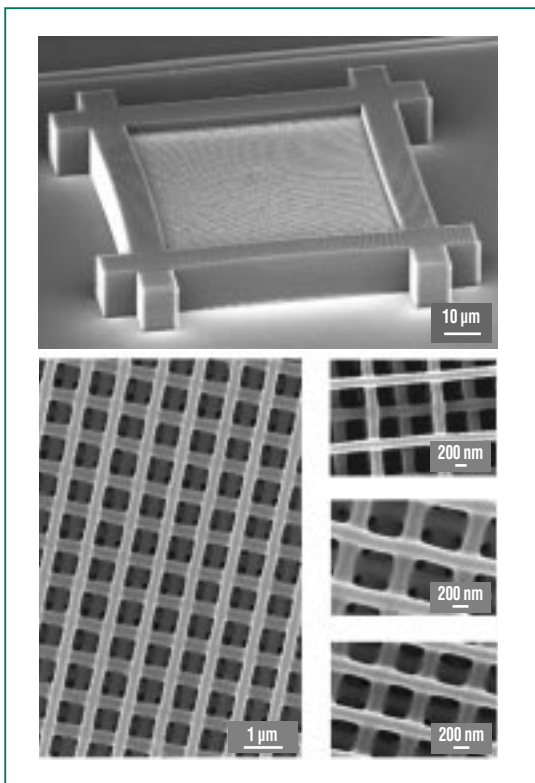


**Abb. 7:** Elektronenmikroskopische Aufnahme zweier kleiner dreidimensionaler Photonischer Kristalle, so genannter „woodpile“ Strukturen, hergestellt mittels der Technik des direkten Laserschreibens im „Einzelschussmodus“. Der rechte untere Einschub zeigt eine Detailvergrößerung (siehe auch Abb. 6).

schmiert, sodass sich sogar eine glattere Struktur ergibt (siehe Abb. 8). Bei den in Abb. 7 und 8 gezeigten dreidimensionalen Photonischen Kristallen handelt es sich um so genannte „woodpile“ Strukturen, die nach der Abbildung auf Silizium als hochbrechendes Material Bandlücken aufweisen können, die 25% der Zentralposition betragen. Bei den realisierten Parametern verbleibt

immer noch eine respektabel große Bandlücke von circa 12% bei Wellenlängen im Telekommunikationsbereich. Das in Abb. 9 dargestellte Beugungsbild zeigt – in Analogie zur Röntgenstrukturanalyse – die erwarteten Beugungsmaxima. Aussagekräftiger sind die optische Transmissions- und Reflektionsspektroskopie. Hierbei kommen die Messungen den theoretischen Erwartungen sehr nahe [10]. In ähnlicher Weise wurden auch andere dreidimensionale Photonische Kristalle hergestellt, zum Beispiel aus der Familie der so genannten „slanted pore“-Strukturen [11], die erst im Jahre 2003 von Sajeev John und Mitarbeitern theoretisch vorgeschlagen wurden [12].

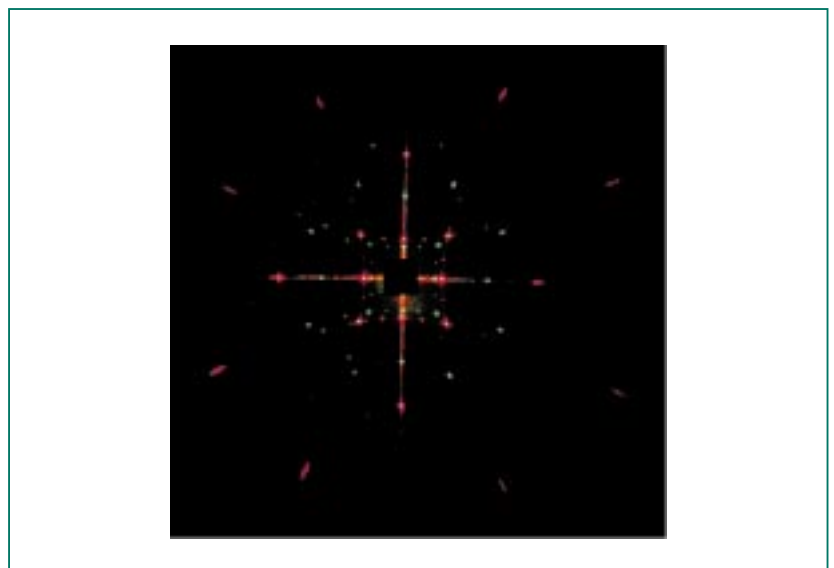
Untersuchungen mit spektroskopischen Methoden war, ist und bleibt die treibende Kraft im Gebiet *Photonische Kristalle*. Mit der holographischen Lithographie und dem direkten Laserschreiben sind kostengünstige Möglichkeiten zur kontrollierten Herstellung *dreidimensionaler* Photonischer Kristalle mit Bandlücken im nahen Infrarot und im sichtbaren Spektralbereich in greifbare Nähe gerückt. Parallel dazu ist die theoretische Beschreibung soweit gediehen, dass sowohl verlässliche Interpretationen von Messdaten als auch weitreichende Vorhersagen der optischen Eigenschaften dieser „Halbleiter für Licht“ möglich werden. Strapaziert man die Analogie zur Halbleitertechnologie ein weiteres Mal, so erinnert der gegenwärtige Stand der Forschung an die Situation kurz vor der Realisierung des ersten elektronischen Transistors durch Shock-



**Abb. 8:** Oberer Bildteil: Wie Abb. 7, jedoch nicht im „Einzelschussmodus“, sondern durch kontinuierliches Scannen hergestellt. Die so erreichten Abmessungen sind hinreichend für viele mögliche Anwendungen, die „Schreibzeit“ dieses Photonischen Kristalls betrug circa 25 Minuten. Der untere Bildteil zeigt eine Ausschnittvergrößerung dieser Struktur (links) sowie Ausschnittvergrößerungen von Strukturen mit anderen Füllfaktoren bzw. anderen Gitterkonstanten (rechts) [9].

### Ausblick

Das Zusammenspiel moderner materialwissenschaftlicher Aspekte mit detaillierter theoretischer Analyse und darauf aufbauenden



**Abb. 9:** Beugungsmuster einer Struktur wie in Abb. 8 (oben) bei Wellenlängen von 532 nm und 633 nm analog zur Röntgenstrukturanalyse bei gewöhnlichen Kristallen.

ley, Bardeen und Brattain im Jahr 1947. Es sollte daher niemanden verwundern, wenn die Photoni-schen Kristalle in der für das 21. Jahrhundert vorhergesagten Re-volution der optischen Informati-onstechnologie eine Schlüssel-rolle spielen werden.

## Danksagung

Die dargestellten Arbeiten wur-den finanziert durch das INT am Forschungszentrum Karlsruhe,

durch den Gottfried Wilhelm Leibniz-Preis 2000 der Deut-schen Forschungsgemeinschaft für Martin Wegener am Institut für Angewandte Physik (AP) der Uni-versität Karlsruhe (TH) und über das Projekt A1.4 im DFG-Cen-trum für Funktionelle Nanostruk-turen (CFN) am INT und am AP. Wir bedanken uns für die frucht-bare Zusammenarbeit mit den Gruppen (Theorie) von Kurt Busch (Institut für Theorie der Kondensierten Materie, Univer-

sität Karlsruhe (TH) und Universi-ty of Central Florida, U.S.A.), Costas Soukoulis (Iowa State University, U.S.A.) und Sajeev John (University of Toronto, Canada) und der Gruppe (Che-mie) von Geoffrey Ozin (Universi-ty of Toronto, Canada).

## Literatur

- [1] E. Yablonovitch,  
*Phys. Rev. Lett.* 58, 2059 (1987)
- [2] S. John,  
*Phys. Rev. Lett.* 58, 2486 (1987)
- [3] K.M. Ho, C.T. Chan, C.M. Soukoulis,  
R. Biswas, M. Sigalas,  
*Solid State Comm.* 89, 413 (1994)
- [4] G. Grynberg, B. Lounis, P. Verkerk,  
J.-Y. Courtois, C. Salomon,  
*Phys. Rev. Lett.* 70, 2249 (1993)
- [5] K.I. Petsas, A.B. Coates,  
G. Grynberg,  
*Phys. Rev. A* 50, 5173 (1994)
- [6] V. Berger, O. Gauthier-Lafaye,  
E. Costard,  
*J. Appl. Phys.* 82, 60 (1997)
- [7] M. Campbell, D.N. Sharp,  
M.T. Harrison, R.G. Denning,  
A.J. Turberfield,  
*Nature* 404, 53 (2000);  
S. Shoji, S. Kawata ,  
*Appl. Phys. Lett.* 76, 2668 (2000)
- [8] Yu.V. Miklyaev, D.C. Meisel,  
A. Blanco, G. von Freymann,  
K. Busch, W. Koch, C. Enkrich,  
M. Deubel, M. Wegener,  
*Appl. Phys. Lett.* 82, 1284 (2003)
- [9] D.C. Meisel, K. Busch, M. Wegener,  
*Phys. Rev. B* 70, 165104 (2004)
- [10] M. Deubel, G. von Freymann,  
M. Wegener, S. Pereira, K. Busch,  
C.M. Soukoulis ,  
*Nature Materials* 3, 444 (2004)
- [11] M. Deubel, M. Wegener, A. Kaso,  
S. John,  
*Appl. Phys. Lett.* 85, 1895 (2004)
- [12] O. Toader, M. Berciu, S. John,  
*Phys. Rev. Lett.* 90, 233901 (2003)