

Aktives und passives Durchstimmen photonischer Resonatoren

Der Fakultät für Naturwissenschaften der Universität Paderborn
zur Erlangung des akademischen Grades eines Doktors der Naturwissenschaften
vorgelegte

Dissertation

von Dipl.-Phys.

Karoline Anna Piegdon dos Santos

aus Neuss

Tag der Einreichung 9. Juli 2011

4. Februar 2012

O escritor curto em idéias e fatos será, naturalmente, um autor de idéias curtas, assim como de um sujeito de escasso miolo na cachola, de uma cabeça de coco velado, não se poderá esperar senão breves análises e chochas tolices.

(RUI BARBOSA)

Zusammenfassung

Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich mit der spektralen Durchstimmbarkeit photonischer Moden in Mikroresonatoren wie Microdisks und zweidimensionalen photonischen Kristallen mit Defektkavitäten. Die photonischen Mikrostrukturen werden hergestellt, charakterisiert und die Emissionswellenlänge ihrer Moden wird durch verschiedene Verfahren aktiv und passiv, permanent und reversibel beeinflusst. Ziel ist es hier nicht nur, diese Verfahren kennen zu lernen, sondern auch physikalisch besser zu verstehen, auf welche Einflüsse die Mode durch eine Energieänderung reagiert.

Alle hier untersuchten Prozesse zum Durchstimmen der resonanten Moden der Kavitäten beruhen auf dem Effekt, dass das Feld der elektromagnetischen Welle an der Kante des Resonators nicht sofort auf null sondern im Außenraum exponentiell abfällt. Über diesen herausleckenden Teil der Welle lässt sie sich beeinflussen.

Aufbauend auf Vorexperimente wird im ersten hier behandelten Verfahren die Doppelbrechung eines nematischen Flüssigkristalls, in den eine Microdisk eingebettet wird, genutzt, um die resonanten Moden der Kavität in einem äußeren elektrischen Feld spannungsabhängig aktiv durchzustimmen. Die Moden verschieben spektral um $\Delta E = 4,75 \text{ meV}$; die Energieänderung sättigt bei 30 V. Simulationen mit der finite Differenzen-Methode bestätigen die Richtung der Verschiebung, der absolute Wert der Energieänderung ist aber um etwa die Hälfte geringer als im Experiment. Direktorfelduntersuchungen an einem nematischen Flüssigkristall, in den eine Microdisk eingebettet ist, zeigen, dass sich die Flüssigkristallmoleküle hauptsächlich planar auf der Microdisk verankern, sich aber im elektrischen Feld entlang der Feldlinien ausrichten. Diese Drehung der Moleküle im äußeren Feld ist verantwortlich für die spektrale Verschiebung der resonanten Mode. Auch der Einfluss des Flüssigkristalls auf die Moden oberhalb des Transparenzpunktes wird untersucht, die Laserschwelle ändert sich nicht signifikant.

Zweidimensionale photonische Kristalle werden ebenfalls in einen Flüssigkristall eingebettet, die Modenverschiebung im äußeren elektrischen Feld ist aber mit nur $\Delta E = 0,5 \text{ meV}$ um fast das Zehnfache geringer als bei den Microdisks. Dies lässt sich zurückführen auf eine mangelhafte homogene Verankerung der Flüssigkristallmoleküle vor dem Einschalten des Feldes.

Um photonischen Kristalle permanent durchzustimmen, wird eine H₂-Kavität schrittweise mit SiO₂ bedampft, was die resonante Mode um $\Delta E = -8 \text{ meV}$ verschiebt. Nachdem die Energieverschiebung bei einer Schichtdicke von 40 nm sättigt, hat die Güte der Mode auf ein Viertel des ursprünglichen Wertes abgenommen, was auf eine schlechte Schichtqualität des abgeschiedenen SiO₂ und die unsymmetrische Beschichtung des Resonators nur auf der Oberseite zurückzuführen ist. Simulationen bestätigen auch hier die

Richtung der Verschiebung und die Abnahme der Güte. Der Betrag der Energieänderung ist wiederum im Experiment um etwa den Faktor zwei höher.

Um eine symmetrische Beschichtung der photonischen Kristalle zu erreichen, wird der Resonator in weiteren Experimenten mittels Atomlagenabscheidung schrittweise mit Tantalpentoxid beschichtet. Die resonante Mode der Kavität verschiebt hierbei ebenfalls auf Grund der Erhöhung des Brechungsindizes des Hintergrundes des photonischen Kristalls zu niedrigeren Energien. Die absolute spektrale Verschiebung liegt wegen dem höheren Brechungsindex des Tantalpentoxid gegenüber dem Siliziumdioxid der vorhergehenden Messung und der symmetrischen Beschichtung auf Ober- und Unterseite der Membran höher.

Um Microdisks mit einem günstigen, einfachen und schnellen Verfahren permanent durchstimmen zu können, werden abwechseln Schichten von in Wasser gelösten Polyanionen und Polykationen aufgeschleudert, was in monomolekularen Polyelektrolyt-Doppelschichten resultiert. Der Schichtwachstum pro Doppellage auf GaAs Substrat und mit Microdisks strukturierten GaAs Proben ist konstant, die Schicht hat lediglich eine Rauigkeit von 2,3 nm. Die spektrale Verschiebung einer resonanten Mode einer Microdisk wird während dem schrittweisen Aufschleudern der Polyelektrolyte aufgezeichnet, bis bei einer Schichtdicke von 80 nm die Mode konstant bleibt. Maximal wird so eine Energieänderung von $\Delta E = -15,1 \text{ meV}$ erreicht. Theoretische Rechnungen geben die Verschiebung gut wieder. Die Laserschwelle der Microdisks steigt durch Streuung und Absorption des Pumplaser- und des Photolumineszenzlichts in der Polyelektrolytschicht um den Faktor sechs an. Die Beschichtung ist sowohl im Hochvakuum als auch bei niedrigen Temperaturen bis zu 5 K stabil.

Das für die aufgeschleuderten Doppelschichten als Polyanion verwendete PAZO-Molekül besitzt eine AZO-Gruppe, die aus zwei durch eine Doppelbindung verbundenen Stickstoff-Atomen besteht. Bei Beleuchtung mit ultraviolettem (UV) Licht $\lambda < 370 \text{ nm}$ kann die AZO-Gruppe eine Photoisomerisation durchlaufen, dabei wird das Molekül von dem *trans*-Zustand in den thermisch weniger stabilen *cis*-Zustand gebracht, welcher eine geringere Absorption besitzt. Der durch die Änderung der Absorption des PAZO-Moleküls veränderte komplexe Brechungsindex der Polyelektrolytdoppelschichten verschiebt die resonanten Moden der eingebetteten Microdisk beleuchtungsabhängig um $\Delta E = 4,5 \text{ meV}$. Die Energieänderung der Mode sättigt nach 20 Stunden. Es kann also durch die Beschichtung der Microdisk mit Polyelektrolyten ein rein optisch arbeitender durchstimmbarer Laser realisiert werden.

Abstract

This work deals with the spectral tunability of photonic modes in microcavities such as microdisks and two dimensional photonic crystals with defect cavities. The photonic microstructures are fabricated, characterized and the emission wavelengths of their resonant modes are tuned actively and passively, permanently and reversibly by different techniques. The aim of this work is not only the development of new tuning techniques but to understand the physics that leads to the mode tuning as well.

Every tuning method here used is based on effect that the electromagnetic field does not vanish at the resonator edge but decreases exponentially in the resonator background. Over this leaking part the wave can be influenced.

The first tuning technique uses the birefringence of a nematic liquid crystal in which a microdisk is embedded to tune the microdisk's mode in an external electric field. The modes blueshift by $\Delta E = 4,75 \text{ meV}$, the shift saturates at a voltage of 30 V. Finite-Difference Time-Domain simulations confirm the blueshift, however, the absolute shift of the experiment is by a factor of 2 higher. Director field measurements of a nematic liquid crystal with an embedded microdisk are performed and show a planar anchoring of the liquid crystal molecules at the microdisk plane. In the external field the molecules align parallel to the field lines. This rotation of the molecules in an external field leads to the spectral shift of the modes. The influence of the liquid crystal on the modes above transparency is studied as well showing no significant change in laser threshold.

Furthermore, two dimensional photonic crystals are embedded in a nematic liquid crystal. The mode shift by $\Delta E = 0,5 \text{ meV}$ caused by an external electric field is ten times smaller than the one measured in the microdisks. This discrepancy can be explained by an initially poor alignment of the liquid crystal molecules.

To tune a photonic crystal permanently a H2-cavity is coated stepwise with evaporated SiO_2 resulting in a shift of the resonant mode by $\Delta E = -8 \text{ meV}$. The mode shift saturates after evaporation of 40 nm SiO_2 . At saturation the mode's quality factor has decreased by a factor of four, which can be explained by a poor layer quality of the SiO_2 and the asymmetrical coating of the membrane on the top side only. FDTD simulations confirm again the shift direction and decrease of quality factor. However, the mode shift in the experiment is again two times higher.

To achieve a symmetrical coating of photonic crystals in the next step a cavity is coated stepwise by atomic layer deposition of Ta_2O_5 . The cavity mode redshifts due to the higher index of refraction of the disk's background. Since the refractive index of Ta_2O_5 is higher than of SiO_2 and since the ALD results in a homogenous coating on top and on bottom side of the resonator, the mode shift is higher than the shift caused by the SiO_2 .

To develop a fast, easy and cheap tuning technique for the resonant modes of microdisks, the resonator is spin coated with alternating layer of in water solved polyanions and polycations, which produces mono molecular bilayer of polyelectrolytes. The layer growth on a smooth GaAs substrate and on a structured microdisk sample is linear, the layer roughness is as low as 2,3 nm. The spectral tuning of the microdisk's resonant mode is documented while coating the device with bilayers of polyelectrolytes. The mode redshifts by $\Delta E = -15,1$ meV until saturation at a layer thickness of 80 nm. Theoretical calculations are in good agreement with the experimental data. The laser threshold increases by a factor of six due to scattering and absorption inside the polyelectrolyte coating. Moreover, the coating layer is found to be stable in the high vacuum as well as at temperatures from room temperature down to 5 K showing the applicability of the technique for experiments in coupling quantum-electrodynamics normally performed at low temperatures.

The polyanion PAZO used for the spin coating of the polyelectrolyte bilayers owns an AZO group, which undergoes a photoisomerization under exposure with UV light $\lambda < 370$ nm. The photoisomerization changes the molecule from the thermal more stable trans to the cis state; the latter has a lower absorption and therefore a lower complex index of refraction as well. The changing complex index of refraction of the microdisk background blueshifts the resonant mode caused by the UV light exposure. The tuning saturates after 20 hours. At saturation the mode has shifted by $\Delta E = 4,5$ meV. Thus, by coating a microdisk with polyelectrolytes an all-optical tunable microdisk laser was realized.

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung	1
2. Grundlagen	5
2.1. Allgemeines zu Mikroresonatoren	5
2.2. Mikrodisk	6
2.3. Photonische Kristalle	12
2.4. Lichteinkopplung in Mikroresonatoren	19
2.5. Das Laser-Regime	23
2.6. Durchstimmen photonischer Resonatoren	24
3. Probenpräparation	31
3.1. Die verwendeten Schichtstrukturen	31
3.2. Herstellung der Mikrodisk	32
3.3. Herstellung photonischer Kristalle	35
4. Photolumineszenz-Spektroskopie	39
5. Kopplung photonischer Resonatoren mit Flüssigkristallen	43
5.1. Grundlagen und Eigenschaften von Flüssigkristallen	43
5.1.1. Die flüssigkristallinen Phasen	44
5.1.2. Die Eigenschaften der nematischen Phase	45
5.1.3. Die Doppelbrechung im nematischen Flüssigkristall	47
5.1.4. Elastische Eigenschaften nematischer Flüssigkristalle	49
5.2. Einfluss der Flüssigkristalle auf die Resonatoren	51
5.3. Präparation der Resonatorproben mit Flüssigkristallen	52
5.4. Mikrodisk mit Flüssigkristallen	54
5.4.1. Elektrisches Durchstimmen der photonischen Moden	55
5.4.2. FDTD Simulationen	58
5.4.3. Untersuchungen des Direktorfeldes	59
5.4.4. Einfluss des Flüssigkristalls auf Mikrodisklaser	65
5.5. Photonische Kristalle mit Flüssigkristallen	70
6. Permanentes Durchstimmen photonischer Kristalle	75
6.1. Durchstimmen mit Siliziumdioxid	75
6.1.1. Experimentelle Durchführung	75
6.1.2. Auswirkung auf Modenenergie und Güte	76

6.2.	Atomlagenabscheidung von Tantalpentoxid	79
6.2.1.	Prinzip der Atomlagenabscheidung	80
6.2.2.	Ergebnisse der Atomlagenabscheidung	81
7.	Durchstimmen von Mikrodisk mit Polyelektrolyten	85
7.1.	Grundlagen und Eigenschaften von Polyelektrolyten	85
7.1.1.	Deposition von Polyelektrolyten	85
7.1.2.	Cis-trans-Isomerie	88
7.2.	Präparation der Polyelektrolyte	89
7.3.	Charakterisierung der Polyelektrolytschichten auf GaAs	91
7.4.	Mikrodisk mit PEL: Der optisch durchstimmbare Laser	94
7.4.1.	Vorcharakterisierung der Mikrodisk	94
7.4.2.	Permanentes Durchstimmen der Resonatormoden	95
7.4.3.	Temperaturbeständigkeit	96
7.4.4.	Einfluss auf das Lasen im Resonator	98
7.4.5.	Optisches Durchstimmen der photonischen Mode	100
8.	Zusammenfassung und Ausblick	103
A.	Anhang	107
A.1.	MBE-Wachstumsparameter	107
A.2.	Lithografieparameter	108
A.3.	Transmissionspektren	110

1. Einleitung

Seit YABLONOVITCH [1] und JOHN [2] mit der Idee der photonischen Bandlücke den Weg ebneten für die Entwicklung photonischer Kristalle und MCCALL et al. [3] die ersten Mikrodisk herstellt haben, sind die Mikroresonatoren ein fruchtbares Forschungsfeld. Das Modenvolumen der resonanten Moden in beiden Resonatorarten konnte stark reduziert werden: auf $V_{eff} = 2 \times (\lambda/n_{HL})^3$ [4] in Mikrodisk und $V_{eff} = 1/2 \times (\lambda/n_{HL})^3$ [5] in zweidimensionalen photonischen Kristallen; damit liegen sie im Bereich von Bruchteilen der kubischen Wellenlänge.

Dies ebnet den Weg für Experimente, die über die Herstellung und Untersuchung der Resonatoren hinausgehen, wie z.B. die starke Kopplung [6, 7], Laser mit extrem geringer Laserschwelle [8, 9], Untersuchung des Purcell-Effektes [10] und Rabi-Splitting [11, 12]. Diese Experimente erfordern eine hohe Genauigkeit bei der Strukturierung der Mikroresonatoren, um die Wellenlänge der resonanten Mode auf den geforderten Wert einzustellen. Wegen der geringen Größenordnung der Kavitäten und der daraus folgenden Ungenauigkeiten bei der Herstellung ist es aber fast unmöglich, die geforderte Wellenlänge der Mode schon in diesem Schritt richtig einzustellen. Zudem erfordern es diverse Experimente, die Mode aktiv durchstimmen zu können. Es ist also nötig, Verfahren zu entwickeln, um die Energie der Resonatormoden permanent einzustellen, und um sie aktiv im Experiment durchzustimmen. Bei letzterem ist es darüber hinaus wünschenswert, ein reversibles Verfahren zu erhalten.

Während es bei makroskopischen Resonatoren zum Durchstimmen der Resonatormoden einfach möglich ist, die Resonatorlänge durch das Verstellen der Reflektoren zu verändern, erweist es sich bei Mikrokavitäten als komplizierter, ein anwendbares Verfahren zu finden. Bisher ist es gelungen, photonische Resonatoren durch eine Temperaturänderung [10, 13, 14] durchzustimmen, wobei diese auch lokal durch einen Laserstrahl erfolgen kann [15], desweiteren durch Injektion freier Ladungsträger [16], durch schrittweises Ätzen [17] oder Nanooxidieren [18] des Resonatormaterials und durch Adsorption von Molekülen auf der Membranoberfläche bei tiefen Temperaturen [19, 20].

Diese Verfahren sind größtenteils nur bei tiefen Temperaturen anwendbar, langsam und mit hohem Aufwand verbunden. Die Injektion freier Ladungsträger ist zum Durchstimmen der Mode ungeeignet, da die Lebensdauer des Zustandes begrenzt ist auf die Lebensdauer der freien Ladungsträger. Beim schrittweisen Ätzen des Resonatormaterials besteht das Problem, dass das Verfahren auf die Verwendung von GaAs Membranen beschränkt ist und zudem relativ große Energieänderungen pro Ätzschritt erzeugt. Das Nanooxidieren ist genauer aber mit extrem hohem Aufwand verbunden.

Es bestehen also verschiedene Gründe, warum weitere Möglichkeiten zum Durchstimmen von Mikrokavitäten entwickelt werden sollten: Es sollen sowohl Verfahren gefunden

werden, die bei Raumtemperatur als auch bei tiefen Temperaturen anwendbar sind. Gleichzeitig sollten die Verfahren aktiv im Experiment die Mode beeinflussen. Der Prozess des Durchstimmens sollte einfach und günstig sein. Zudem ist es Ziel dieser Arbeit, das Verhalten der resonanten Moden und ihre Abhängigkeit von der dielektrischen Umgebung des Resonators physikalisch besser zu verstehen.

Kapitel 2 stellt die zum Verständnis der Arbeit nötigen theoretischen Grundlagen der Mikroresonatoren (Mikrodisks und zweidimensionale photonische Kristalle) und der Verwendung niedrigdimensionaler Halbleiter-Heterostrukturen zur Lichteinkopplung in die Kavitäten vor. Im Anschluss werden die Eigenschaften des Laser-Regimes und die Grundlagen der Durchstimmbarkeit der resonanten Moden von photonischen Resonatoren behandelt.

Kapitel 3 beschreibt die zwei unterschiedlichen verwendeten Probenmaterialie und ihre Eigenschaften. Zudem wird das Vorgehen zur Herstellung der Mikrodisks und der photonischen Kristalle erklärt.

Kapitel 4 behandelt den Mikro-Photolumineszenzmessplatz, der in dieser Arbeit zur optischen Charakterisierung und Messung der Proben diene.

Kapitel 5 beschäftigt sich mit der Kopplung der photonischen Resonatoren mit einem nematischen Flüssigkristall. Zuerst werden hier die Grundlagen und Eigenschaften von Flüssigkristallen beschrieben, im Anschluss wird kurz besprochen, wie die Einbettung der Proben in den Flüssigkristall verläuft. Dann werden die Ergebnisse der in Flüssigkristalle eingebetteten und mit einem elektrischen Feld durchgestimmten Mikrodisks diskutiert und mit FDTD Simulationen und Direktorfeldmessungen verglichen. Nachdem auch der Einfluss des Flüssigkristalls auf das Laser-Regime der Mikrodisks diskutiert wurde, werden auch die Ergebnisse von in Flüssigkristalle eingebetteten photonischen Kristallen vorgestellt.

Kapitel 6 befasst sich mit dem permanenten Durchstimmen zweidimensionaler photonischer Kristalle mit L7 und H2 Defektresonatoren. Im ersten Teil wird eine solche Kavität charakterisiert und schrittweise mittels Elektronenstrahlverdampfen mit Siliziumdioxid beschichtet, um die resonante Mode durchzustimmen. Im zweiten Teil wird dann die Atomlagenabscheidung verwendet, um die Membran eines photonischen Kristalls homogen mit Tantalpentoxid zu beschichten und so eine Energieänderung der Mode zu erreichen.

Kapitel 7 hat das permanente und reversible Durchstimmen photonischer Moden einer Mikrodisk zum Thema, die mit einem einfachen und schnellen Aufschleuderprozess mit monomolekularen Doppelschichten von Polyelektrolyten beschichtet wird. Zuerst werden dazu die Eigenschaften der Polyelektrolyte und der Abscheidungsprozess vorgestellt, zudem wird die Photoisomerie des verwendeten Polyanions

beschrieben. Im Anschluss werden die Schichten und ihr Wachstum charakterisiert. Die Energieänderung der resonanten Moden mit steigender Schichtdicke und der Einfluss der Polyelektrolyte auf die lasenden Moden wird diskutiert, bevor die optische Durchstimmbarkeit des Resonators beschrieben wird, die auf der Photoisomerie des Polyanions beruht.

Kapitel 8 fasst die gemessenen Ergebnisse und gewonnenen Erkenntnisse dieser Arbeit zusammen und gibt Vorschläge für folgende Experimente.

2. Grundlagen

2.1. Allgemeines zu Mikroresonatoren

Einen Mikroresonator unterscheidet von anderen Resonatoren, dass seine Größenordnung in der der Wellenlänge der resonanten Mode liegt – für Infrarot- und sichtbares Licht also im Bereich weniger hundert Nanometer bis weniger Mikrometer. Der Einschluss des Lichts kann entweder durch totale Reflexion an einer Grenzfläche oder durch Interferenz an einer periodischen Struktur wie z.B. einem Bragg-Reflektor stattfinden, wobei in diesem Fall die Periodizität wiederum in der Größenordnung der Wellenlänge des Lichtes liegen muss.

Um die Kavitäten charakterisieren zu können, ist es sinnvoll, einige Größen einzuführen. Die Güte Q einer Mode ist definiert wie in jedem anderen schwingenden System auch als Verhältnis der Frequenz der Resonanz ω zur Halbwertsbreite (FWHM, *full width at half maximum*) der Mode:

$$Q = \frac{\omega}{\delta\omega}. \quad (2.1)$$

Der Gütefaktor misst die Verluste des Resonators durch Absorption oder Streuung, sein Inverses entspricht dem Energieverlust pro Umlauf in der Kavität. Die Lebenszeit τ der exponentiell abfallenden Anzahl Photonen ist gegeben durch:

$$\tau = \frac{Q}{\omega}. \quad (2.2)$$

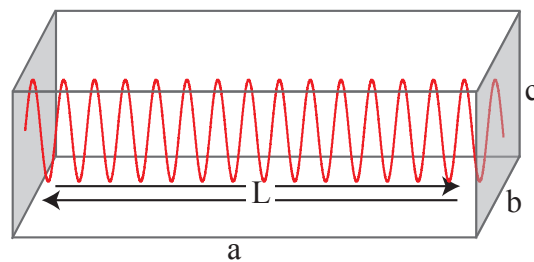


Abbildung 2.1.: Longitudinale Mode in einem Resonator der Abmessungen abc . Die Länge eines optischen Umlaufs ist L .

Definiert man die optische Weglänge eines Umlaufs in einem beliebig geformten Resonator als L wie in Abb. 2.1 gezeigt, ergibt sich für den Abstand longitudinaler Moden

$$\Delta\omega = \frac{2\pi c}{L}, \quad (2.3)$$

er ist also antiproportional zur Länge eines Umlaufs.

Außer konfokalen Resonatoren haben alle Resonatoren neben den longitudinalen auch transversale Moden bei verschiedenen Frequenzen, die in gleichem Maße mit der optischen Weglänge eines Umlaufs skalieren. Mikroresonatoren haben also in einem Frequenzbereich weniger optische Moden als größere Resonatoren, wodurch es bei bestimmten Anwendungen nötig werden kann, die Mode durchzustimmen.

Da die Ausdehnung eines Mikroresonators in allen drei Raumrichtungen klein ist, ist das Seitenverhältnis $a : b : c$ (vergl. Abb. 2.1) hier viel näher bei eins als das bei einem makroskopischen Resonator der Fall ist. Dieser Umstand beeinflusst das Winkelabstrahlverhalten der Kavität, so dass der Mikroresonator einen größeren möglichen Abstrahlwinkel besitzt. [21] Das geringe Modenvolumen und die geringe Anzahl resonanter Moden in einem Frequenzabschnitt führen außerdem zu einer sehr geringen Laserschwelle; Genauer über das Laser-Regime im Allgemeinen und im Fall der Mikroresonatoren in Kapitel 2.5.

Die in dieser Arbeit hergestellten und untersuchten Resonatoren bestehen aus quasi-2D-Membranen, d.h. in z -Richtung sind sie so dünn, dass nur der niedrigste Zustand besetzt ist. Dies wird im Folgenden noch näher erläutert. Das nächste Kapitel widmet sich erst den Mikrodisk, danach wird zudem die Theorie der 2D photonischen Kristalle behandelt.

2.2. Mikrodisk

Eine Mikrodisk ist ein zylinderförmiger, flacher Resonator mit einem Radius von wenigen hundert Nanometern bis zu Mikrometern. Der Einschluss des Lichtes beruht auf totaler interner Reflexion an den Grenzflächen. Das Material des Resonators hat einen gegenüber dem Brechungsindex der Umgebung n_1 höheren Brechungsindex n_2 , so dass eine auf die Grenzfläche einfallende Welle total reflektiert wird, wenn der kritische Winkel $\Theta_C = \arcsin(n_2/n_1)$ nicht unterschritten wird (vergl. Abb. 2.2 (a)). Die Totalreflexion tritt bei Einfallswinkeln $\Theta > \Theta_C$ auf, da sonst der Ausfallswinkel nach dem Snelliusschen Brechungsgesetz größer 90° würde.

Durch die wiederholte Reflexion im Inneren der Scheibe stellen sich stehende Wellen ein, die *whispering gallery modes* (WGMs) genannt werden. WGMs wurden in ihrer akustischen Form als erstes von LORD RAYLEIGH [22] im St Paul's Cathedral in London beschrieben. Das erste mal nachgewiesen wurden WGMs in einer Mikrodisk im Jahr 1992 von MCCALL et al. [3] in einer 50 nm dünnen Disk aus InGaAsP auf einem Fuß aus InP. Mikrodisk können auf verschiedenste Weisen hergestellt werden; sie unterscheiden sich u.a. durch das umgebende Material (Luft [3] oder eingebettet in ein anderes Medium [23, 24]) oder ob sie auf einem Post (Fuß) stehen – also unterstützt sind [3] – oder auf einem Substrat mit niedrigerem Brechungsindex [25].

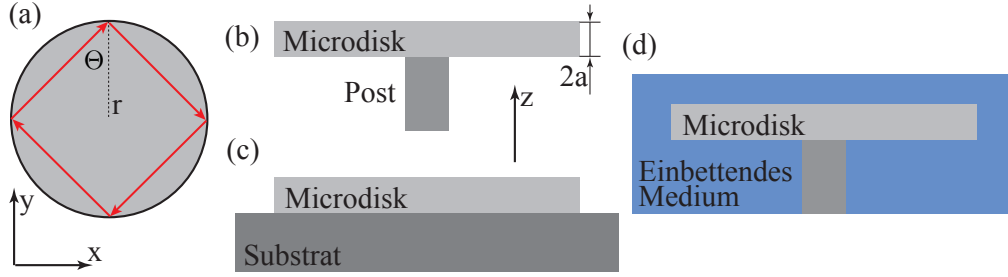


Abbildung 2.2.: (a) Totale interne Reflexion in einer Mikrodisk, (b) Mikrodisk auf einem Post, (c) Mikrodisk ohne Post auf Substrat und (d) eingebettet in ein umgebendes Medium.

Mathematische Beschreibung

Wegen ihrer Symmetrie lassen sich die Vorgänge in einer Mikrodisk gut mathematisch erfassen, wobei die Beschreibung in z -Richtung und die Beschreibung in xy -Richtung separiert werden müssen. Hier werde zuerst eine in z -Richtung dünne dielektrische Lage mit der Dicke d und dem Brechungsindex n_2 angenommen, die sich in xy -Richtung unendlich ausdehnt und in ein Material mit Brechungsindex $n_1 < n_2$ eingeschlossen ist. Durch das stufenförmige Brechungsindexprofil in z -Richtung

$$n(z) = \begin{cases} n_2, & |z| < d/2 \\ n_1, & \text{sonst} \end{cases} \quad (2.4)$$

handelt es sich dabei um einen zweidimensionalen Wellenleiter. Die Welle propagiere ohne Beschränkung der Allgemeinheit in x -Richtung. Die Maxwell-Gleichungen lassen sich nun schreiben als:

$$\vec{\nabla} \times \vec{H} = i\omega\epsilon_0 n^2(z) \vec{E} \quad (2.5)$$

$$\vec{\nabla} \times \vec{E} = -i\omega\mu \vec{H}. \quad (2.6)$$

Lösungen dieser Wellengleichungen sind wegen der Homogenität in x -Richtung

$$\vec{E}(z,t) = \vec{E}(z) e^{i(\omega t - k_x x)} \quad (2.7)$$

$$\vec{H}(z,t) = \vec{H}(z) e^{i(\omega t - k_x x)}. \quad (2.8)$$

Da das Propagationsmedium homogen und isotrop sein soll, erhält man die Wellengleichung, indem man \vec{H} aus den Maxwell-Gleichungen 2.5 und 2.6 eliminiert:

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial y^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right) \vec{E}(y,z) + (k_0^2 n^2 - k_x^2) \vec{E}(y,z) = 0, \quad (2.9)$$

2. Grundlagen

hierbei ist $k_0 = \omega/c$ die Wellenzahl im Vakuum.

Für im Inneren des Wellenleiters eingeschlossene Moden muss die Feldamplitude außerhalb der dielektrischen Lage exponentiell abfallen. In Gleichung 2.9 muss dafür der Term $(n\omega/c)^2 - k_x^2$ für $|z| > \frac{1}{2}d$ negativ werden und deshalb auch

$$k_z > \frac{n_1\omega}{c}. \quad (2.10)$$

Aus der Kontinuität des Feldes folgt außerdem für eine geführte Mode

$$k_z < \frac{n_2\omega}{c}, \quad (2.11)$$

vergleiche dazu auch [26]. Sind diese beiden Bedingungen erfüllt, handelt es sich um im Wellenleiter geführte Moden. Sie können klassifiziert werden als entweder transversal elektrische (TE) Moden oder als transversal magnetische (TM) Moden. Bei TE-Moden steht das elektrische Feld senkrecht auf der xz -Ebene; es bleiben nur die Feldkomponenten E_y , H_x und H_z erhalten. Entsprechend bleiben bei den TM-Moden die Komponenten H_y , E_x und E_z erhalten.

Die Amplitude des elektrischen Feldes der geführten TE-Moden ist

$$E_y(x, z, t) = E(z)e^{i(\omega t - k_z z)}, \quad (2.12)$$

wobei in Analogie zum endlich hohen Potentialtopf die Modenfunktion $E(z)$ zusammengesetzt ist aus

$$E(z) = \begin{cases} A \sin(hz) + B \cos(hz), & |z| < \frac{1}{2}d \\ C \exp(-qz), & z > \frac{1}{2}d \\ D \exp(qz), & z < -\frac{1}{2}d. \end{cases} \quad (2.13)$$

Dabei sind A , B , C und D Konstanten und h und q gegeben durch

$$h = \sqrt{\left(\frac{n_2\omega}{c}\right)^2 - k_x^2} \quad (2.14)$$

$$q = \sqrt{k_z^2 - \left(\frac{n_1\omega}{c}\right)^2}. \quad (2.15)$$

Aus der Kontinuitätsbedingung an der Grenzfläche bei $z = d/2$ und $z = -d/2$ ergeben sich Randbedingungen, aus denen vier Bestimmungsgleichungen für die Konstanten abgeleitet werden können:

$$\begin{aligned} A \sin\left(\frac{1}{2}hd\right) + B \cos\left(\frac{1}{2}hd\right) &= C \exp\left(-\frac{1}{2}qd\right) \\ hA \cos\left(\frac{1}{2}hd\right) - hB \sin\left(\frac{1}{2}hd\right) &= -qC \exp\left(-\frac{1}{2}qd\right) \\ -A \sin\left(\frac{1}{2}hd\right) + B \cos\left(\frac{1}{2}hd\right) &= D \exp\left(-\frac{1}{2}qd\right) \\ hA \cos\left(\frac{1}{2}hd\right) + hB \sin\left(\frac{1}{2}hd\right) &= qD \exp\left(-\frac{1}{2}qd\right). \end{aligned} \quad (2.16)$$

Durch Berechnung der vier Konstanten erhält man nun zwei Sätze von Lösungen, für symmetrische Moden

$$h \tan \left(\frac{1}{2} h d \right) = q \quad (2.17)$$

und für antisymmetrische Moden

$$h \cot \left(\frac{1}{2} h d \right) = -q. \quad (2.18)$$

Diese Eigenwertgleichungen können entweder numerisch oder grafisch gelöst werden. Hier soll dies grafisch geschehen, wodurch gezeigt werden kann, dass die Moden in z -Richtung bei den hier verwendeten Materialien nur im Grundzustand geführt werden können.

Im Rahmen dieser Arbeit werden die Resonatoren in verschiedene Materialien eingebettet, was den Einschluss der Moden im Inneren verringert, wenn das einbettende Material einen höheren Brechungsindex hat als das Vakuum. Das hier verwendete einbettende Material mit dem niedrigsten Brechungsindex ist Luft mit $n_A \approx 1$, das mit dem höchsten Brechungsindex für das Quantenpunktmaterial durch Atom-Lagen-Deposition (ALD) abgeschiedenes Tantal(V)-oxid (Ta_2O_5) mit $n_{\text{Ta}_2\text{O}_5} = 2,21$ [28] und für das Quantenfilmmaterial der Flüssigkristall mit einem maximalen Brechungsindex von $n_e = 1,69$ [31], außerdem werden zwei unterschiedliche Schichtstrukturen verwendet, die im Kapitel 3.2 noch genauer beschrieben werden sollen (Die Wachstumsprotokolle finden sich im Anhang). Die Membrandicken sind für das Quantenpunkt-Material $d_{QD} = 240$ nm und für das Quantenfilm-Material $d_{QW} = 160$ nm.

Mit diesen Daten soll nun gezeigt werden, dass sich die Mode in z -Richtung nur im Grundzustand befinden kann. Dazu geht man von der Eigenwertgleichung 2.17 aus, k_0 ist der Wellenvektor im Vakuum, k_x der Wellenvektor im Halbleitermaterial der Membran. Die minimale Vakuumwellenlänge liegt bei $\lambda_{0,QW} = \frac{2\pi}{k_{0,QW}} = 900$ nm, was etwa der minimalen Photolumineszenz-Wellenlänge des Quantenfilms entspricht. Die Lumineszenz der Quantenpunkte in dem anderen Material liegt minimal bei etwa $\lambda_{0,QD} = \frac{2\pi}{k_{0,QD}} = 1100$ nm. Der Brechungsindex des Membranmaterials GaAs beträgt im interessanten Wellenlängenbereich bei $n_{\text{GaAs}} = 3,41$ [32].

Addiert man die beiden Bestimmungsgleichungen für h und q , erhält man die Gleichung eines Kreises mit Radius $r_c = \sqrt{k_0^2(n_2 - n_1)} = \sqrt{k_0^2(n_{HL} - n_{BG})}$:

$$h^2 + q^2 = k_0^2(n_{HL} - n_{BG}). \quad (2.19)$$

Setzt man nun die genannten Werte für den Fall des Quantenpunkt- bzw. Quantenfilmmaterials und jeweils den minimalen und maximalen Brechungsindex des Hintergrundes in Gleichung 2.17 ein, lässt sie sich grafisch lösen, was in Abbildung 2.3 für die vier Fälle geschehen ist. Auf der linken Seite der Abbildung ist das Problem grafisch gelöst worden für das Quantenfilmmaterial mit der Membrandicke 160 nm, wobei die rote Kurve berechnet wurde für Luft als einbettendes Material, die blaue Kurve für Flüssigkristall. Auf

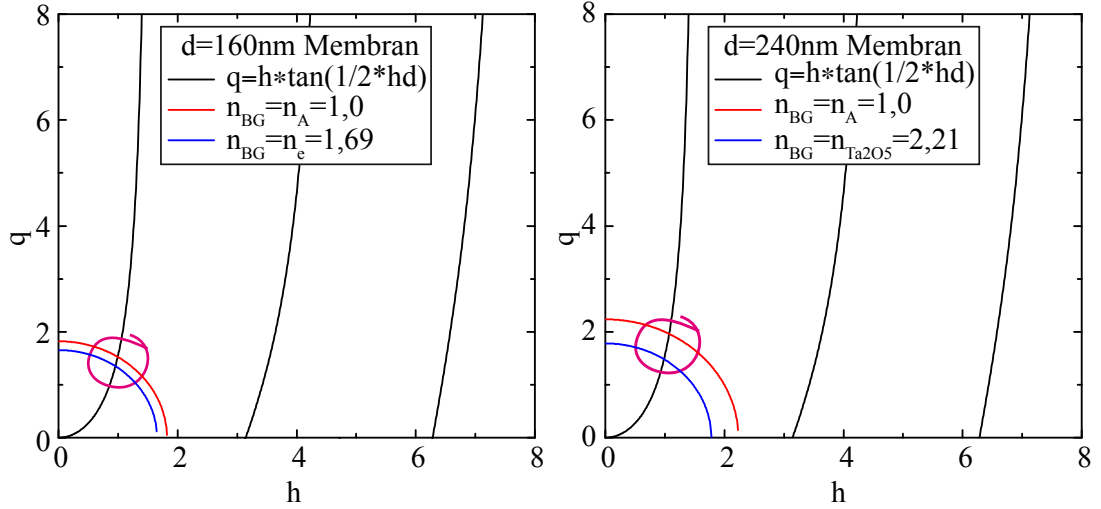


Abbildung 2.3.: Grafische Lösung von Gleichung 2.17: links für das Quantenfilmmaterial mit 160 nm Schichtdicke und rechts für das Quantenpunktmaterial mit einer Schichtdicke von 240 nm.

der rechten Seite ist das Problem entsprechend für das Quantenpunktmaterial gelöst, die rote Kurve entspricht wieder einer Mikrodisk in Luft, die blaue Kurve in Ta_2O_5 .

Es gibt für alle vier Fälle jeweils nur eine Lösung, was zeigt, dass sich die Moden in den Resonatoren in allen durchgeführten Experimenten in z -Richtung im Grundzustand befinden. Die Lösungen verschieben sich aber durch die Änderung des Brechungsindex des Hintergrundes in beiden Fällen. Da der Brechungsindex der Mikrodisk und ihre Dicke konstant bleiben, kann dies nur bedeuten, dass sich die Wellenlängen der Moden – bzw. der \vec{k} -Vektor – durch die Änderung des Hintergrundes verschieben. Weitere Ausführungen zu der in dieser Arbeit zentralen Idee folgen in Kapitel 2.6, wo auch die theoretische Verschiebung der Modenwellenlänge für die hier gezeigte grafische Lösung berechnet werden soll.

Es konnte auf diese Weise also gezeigt werden, dass es sich um ein zweidimensionales Problem handelt, da die Mode in vertikaler Richtung eingeschlossen ist. Nun soll die Propagation der Mode in xy -Richtung durch einen in z -Richtung unendlich ausgedehnten dielektrischen Zylinder eingeschränkt sein. Zur Beschreibung der Verteilung des elektrischen Feldes in xy -Richtung kann die zweidimensionale Helmholtz-Gleichung verwendet werden:

$$\nabla^2 H_z + \frac{n^2 \omega^2}{c^2} H_z = 0, \quad (2.20)$$

wobei die Feldkomponente für eine TE-Mode in Zylinderkoordinaten

$$H_z = H_z(r, \phi) \quad (2.21)$$

und der Laplace-Operator ebenso in Zylinderkoordinaten

$$\nabla^2 = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial}{\partial r} \right) + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2}{\partial \phi^2} \quad (2.22)$$

beschrieben werden. Setzt man 2.21 und 2.22 in Gleichung 2.20 ein, erhält man nach einer Separation der Variablen $H_z(r, \phi) = \Phi(r) e^{iM\phi}$:

$$\left[\frac{d^2 \Phi(r)}{dr^2} + \frac{1}{r} \frac{d\Phi(r)}{dr} + \left(\frac{n^2 \omega^2}{c^2} - \frac{M^2}{r^2} \right) \Phi \right] e^{iM\phi} = 0. \quad (2.23)$$

Ersetzt man nun die Variable $r := \frac{c}{n\omega} \rho$, wodurch aus den Ableitungen von Φ wird: $\frac{d\Phi(r)}{dr} = \frac{n\omega}{c} \frac{d\Phi(\rho)}{d\rho}$ und $\frac{d^2 \Phi(r)}{dr^2} = \frac{n^2 \omega^2}{c^2} \frac{d^2 \Phi(\rho)}{d\rho^2}$. Durch Einsetzen in Gleichung 2.23 folgt die Bessel Differentialgleichung:

$$\frac{d^2 \Phi(\rho)}{d\rho^2} + \frac{1}{\rho} \frac{d\Phi(\rho)}{d\rho} + \left(1 - \frac{M^2}{\rho^2} \right) \Phi(\rho) = 0. \quad (2.24)$$

Die Lösungen der Besselgleichung sind Besselfunktionen erster und zweiter Art $J_M(\rho)$ und $Y_M(\rho)$. Die Besselfunktionen zweiter Art $Y_M(\rho)$ werden für $\rho \rightarrow 0$ aber singulär, weshalb sie hier nicht berücksichtigt werden sollen.

Nimmt man als Näherung hier an, dass das Feld am Rand der Mikrodisk verschwindet $H_z(r = R, \phi) = 0$, erhält man zwei Quantenzahlen N und M . N ist die radiale Quantenzahl, die wiedergibt, wieviele Wellenlängen einer Mode in radialer Richtung vorliegen. Für jedes N gibt es einen Satz Moden, in dem sich die Moden durch ihre Ordnung in polarer Richtung unterscheiden, dafür definiert man die azimuthale Quantenzahl M . Die Moden für $+M$ und $-M$ sind wegen der Zylindersymmetrie der Mikrodisk äquivalent, weshalb jede Mode zweifach entartet ist, M entspricht der Anzahl Maxima des elektrischen Feldes in einem Umlauf.

Bleibt man bei der Beschreibung der Mode mit den metallischen Randbedingungen $[H_z(R, \phi) = 0]$ und macht einfache geometrische Überlegungen für die Mode der niedrigsten radialen Ordnung $N = 1$. Unter diesen Voraussetzungen befindet sich das elektrische Feld der Mode am Rand der Mikrodisk und die Weglänge eines Umlaufs entspricht in erster Näherung der Strecke $2\pi R$, die optische Weglänge hängt aber auch vom Brechungsindex des Dielektrikums ab, weshalb sich dafür ergibt $2\pi n_{HL} R$. Für eine Mode der Energie E folgt für die azimuthale Quantenzahl M dann

$$M = \frac{n_{HL} R}{\hbar c} E, \quad (2.25)$$

bzw. für die Energie

$$E = \frac{\hbar c M}{n_{HL} R}. \quad (2.26)$$

Für zwei Moden der gleichen radialen Quantenzahl $N = 1$ und benachbarter azimuthaler Quantenzahl mit $\Delta M = 1$ berechnet sich der Abstand der Moden auf der Energieskala wie folgt:

$$\Delta E = \frac{\hbar c}{n_{HL} R}; \quad (2.27)$$

Die Moden sind also äquidistant auf der Energieskala; bei dieser vereinfachten Berechnung muss aber die Brechungsindexdispersion des Membranmaterials betrachtet werden.

2.3. Photonische Kristalle

Ein Kristall ist eine periodische Anordnung von Elementarzellen, die Atome oder Moleküle enthalten können. Die Elektronen im Kristall sehen ein periodisches Potential, und es kommt zu der Ausbildung von Energiebändern. Elektronen können frei propagieren, weil sie sich als Welle ausbreiten. Durch die periodische Variation des Potentials erfahren die quasifreien Elektronen eine periodische Veränderung der Wahrscheinlichkeitsdichte; in diesem Modell kann es beim Halbleiter und Isolator an den Rändern der Brillouin-Zone zur Bildung einer Energielücke – der Bandlücke – zwischen Valenz- und Leitungsband kommen. Die Zustände in der Bandlücke sind verbotene Zustände.

Ersetzt man das periodische Potential des Kristalls durch eine periodisch veränderte dielektrische Funktion, spricht man von einem photonischen Kristall (PC), denn es kommt zu analogen Phänomenen für Photonen wie im Kristall für Elektronen. Die Periodizität des photonischen Kristalls liegt wegen der größeren Wellenlängen der Photonen im Vergleich zu den Elektronen aber in einem Bereich, den man mit den heutigen Methoden herstellen und beeinflussen kann.

Ob sich in einem photonischen Kristall eine photonische Bandlücke in 1D, 2D oder 3D ausbilden kann, hängt von der Periodizität der dielektrischen Funktion ab. Schon seit 1887 [33] ist bekannt, wie man durch periodisches Aufbringen von dielektrischen Schichten eine Bandlücke in einer Dimension erzeugen kann. Durch die Reflexionen an den einzelnen Grenzschichten kommt es zu Interferenz und die Transmission der elektromagnetischen Welle fällt schon nach wenigen Schichten auf null ab. Bei einer solchen eindimensionalen Struktur handelt es sich um einen Bragg-Reflektor. Da die Auslöschung der Welle auf Interferenz an den Grenzflächen beruht, wird klar, warum die Periodizität in der Größenordnung der Wellenlänge im Material liegen muss.

Während die Natur ein- und mehrdimensionale photonische Strukturen schon seit Jahrmillionen benutzt, um z.B. bestimmte Farben bei Schmetterlingsflügeln [34, 35] oder Käfern [36] zu erzeugen, dauerte es noch einmal 100 Jahre nach der ersten Beschreibung einer Struktur zur Erzeugung einer eindimensionalen Bandlücke bis JOHN [2] und YABLONOVITCH [1] 1987 zeitgleich zwei- oder dreidimensionale photonische Kristalle mit photonischen Bandlücken in 2D bzw. 3D vorschlugen. Wenn ein dreidimensionaler photonischer Kristall eine Bandlücke für alle Polarisationsrichtungen in alle drei

Raumrichtungen für den gleichen Wellenlängenbereich aufweist, spricht man von einer kompletten photonischen Bandlücke.

Zweidimensionale photonische Kristalle

In der vorliegenden Arbeit werden nur zweidimensionale photonischen Kristalle verwendet, deshalb fokussiert sich die Beschreibung hier auf diese. Ein 2D-PC ist in zwei Dimensionen periodisch moduliert und in der verbleibenden Dimension homogen.

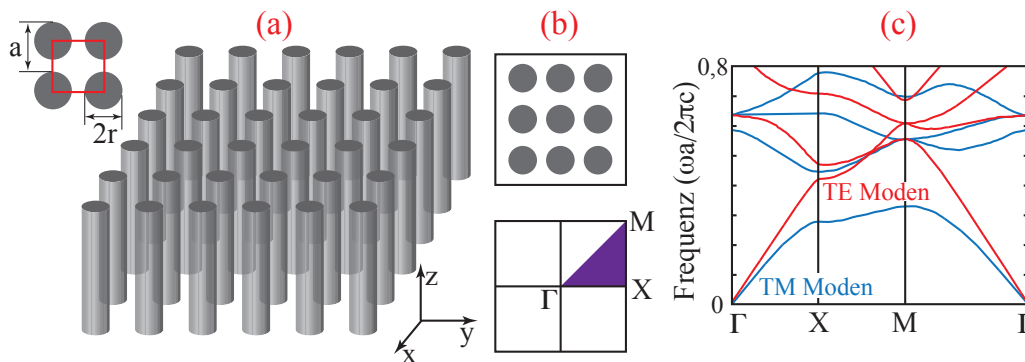


Abbildung 2.4.: (a) Quadratische Anordnung von dielektrischen Säulen, (b) die Symmetrien im Real- und im k -Raum und (c) die Bandstruktur (aus [37]).

Die einfachste Variante eines solchen Kristalls besteht aus Säulen mit kreisförmigem Querschnitt, die mit einer quadratischen Symmetrie angeordnet sind, wie es in Abbildung 2.4 gezeigt ist. Der Durchmesser der Säulen ist $2r$, die Gitterkonstante a . In derselben Abbildung ist außerdem die resultierende Bandstruktur gegeben für den Fall, dass der Brechungsindex der Säulen n_s größer ist als der der umgebenden Luft. Für transversal-elektrische Moden (rot gezeichnet) entsteht keine Bandlücke, wohl aber für transversal-magnetische Moden (blau gezeichnet). Da die Quantenpunkte, die später als eingebaute Lichtquellen in den photonischen Kristallen fungieren, nur in transversal-elektrische Moden emittieren, wird eine Bandlücke für TE-Moden benötigt.

Eine Lösung dieses Problems kann es sein, den Kristall zu invertieren, also die verbindenden Teile zwischen den Säulen aus einem Material mit höherem Brechungsindex herzustellen, und statt der Säulen zylinderförmige Löcher aus Luft (oder einem anderen Material niedrigeren Brechungsindizes) einzufügen. Die Symmetrien bleiben die gleichen, aber die Feldintensität der Mode ist nun hauptsächlich im Dielektrikum konzentriert. Die Bandstruktur verändert sich dadurch stark, die des verbundenen quadratischen Kristalls ist in Abbildung 2.5 gezeigt. Es entsteht eine schmale photonische Bandlücke für transversal elektrische Moden (in der Abbildung gelb), für TM-Moden entsteht keine Bandlücke.

In der Realität ist es aufgrund von Fabrikationstoleranzen schwierig, eine Bandlücke für einen bestimmten Wellenlängenbereich exakt herzustellen. Ist die Bandlücke dazu

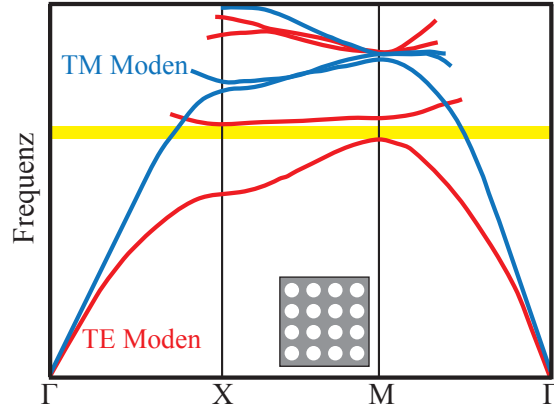


Abbildung 2.5.: Qualitativer Verlauf der Bandstruktur eines 2D photonischen Kristalls mit quadratischer Symmetrie wie im Inset gezeigt. Die Bandstruktur ist hier nicht für einen in z -Richtung unendlich ausgedehnten Kristall gezeigt, sondern für eine dünne Membran.

schmal wie bei dem PC mit quadratischer Symmetrie, führen diese Fabrikationsintoleranzen für einen eingebauten Resonator zu einem schlechteren photonischen Einschluss und damit zu einer geringen Güte.

Die Verbindung der Elemente aus Dielektrikum führt im quadratischen PC dazu, dass eine Bandlücke für TE-Moden entsteht. Außerdem liegt die Mode hauptsächlich im Dielektrikum, so dass hier später leicht ein Defekt durch Auslassen von einem oder mehrerer Löcher eingeführt werden kann. Es erscheint also wünschenswert, die Grundidee des PCs aufzugreifen und daraus einen photonischen Kristall zu entwerfen, der eine größere Bandlücke für alle Polarisierungen hat.

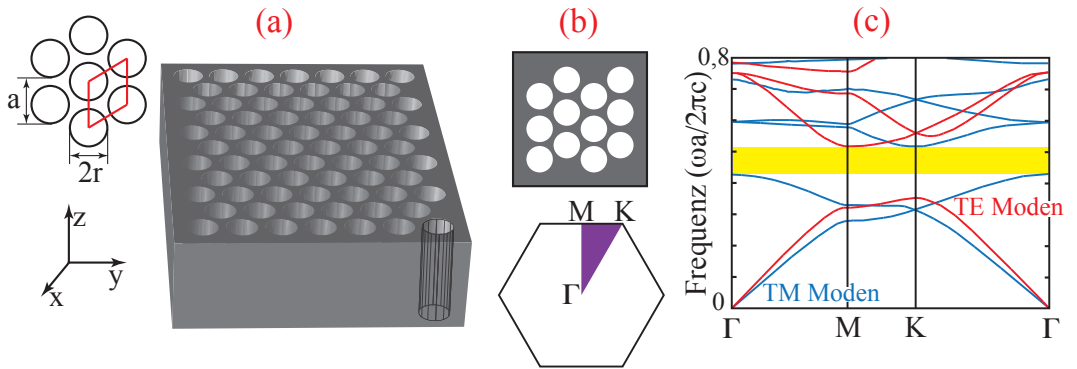


Abbildung 2.6.: (a) 2D hexagonaler photonischer Kristall, (b) die Symmetrien im Real- und im k -Raum und (c) die Bandstruktur. Bandstruktur original aus [37, 38].

Ordnet man die Löcher im PC nicht quadratisch an, sondern mit einer hexagonalen Symmetrie, wie es in Abbildung 2.6 gezeigt ist, entsteht eine große Bandlücke für TE- wie auch für TM-Moden. Die Bandstruktur eines solchen Kristalls ist in der Abbildung rechts gezeigt, in der Mitte zudem die Symmetrie im Realraum und im k -Raum. Die gezeigte Bandstruktur ist gerechnet für ein Verhältnis $r/a = 0,48$, für andere Verhältnisse überlappen die Bandlücken für transversal-elektrische und transversal-magnetische Moden nicht unbedingt.

Um zu bestimmen, in welchem Bereich von r/a die beiden Bandlücken überlappen und welchen Radius man bei einem gegebenen Indexkontrast am besten verwendet, kann man die Daten in Abbildung 2.7 verwenden. Links ist das sogenannte *gap map* für einen zwei-dimensionalen photonischen Kristall mit einem Brechungsindex des Dielektrikums von $n = 3,4$ (z.B. GaAs) gezeigt. Die roten Bereiche bezeichnen eine reine TE-Moden Bandlücke, die violetten Bereiche entsprechend die TM-Moden Bandlücke. Eine vollständige Bandlücke liegt nur im gelben Bereich vor – also für einen Radius von $r/a = 0,4 \dots 0,5$.

Im rechten Teil der Abbildung findet man weitere Rezepte für die Anwendung auf einen hexagonalen 2D-PC, diesmal in Abhängigkeit des Brechungsindexkontrastes zwischen dem des Dielektrikums und dem des Hintergrundes n_{hoch}/n_{tief} . In rot ist der prozentuale Anteil der TE-Moden Bandlücke aufgetragen: Für einen niedrigen Brechungsindexkontrast fällt die Breite der Bandlücke stark ab, um kurz vor dem Verhältnis von 1 ganz zu verschwinden. Dies entspricht den Erwartungen, denn bei einem verschwindenden Brechungsindexkontrast (Verhältnis 1) besteht keine Periodizität mehr im photonischen Kristall. Für eine hohes Verhältnis von $n_{hoch}/n_{tief} \rightarrow 6$ nähert sich die TE-Bandlücke an 80 % an.

Die Abhängigkeit des optimalen Radius r/a vom Indexkontrast ist nicht so deutlich, er sollte über den gesamten Indexkontrastbereich zwischen 0,35 und 0,4 liegen.

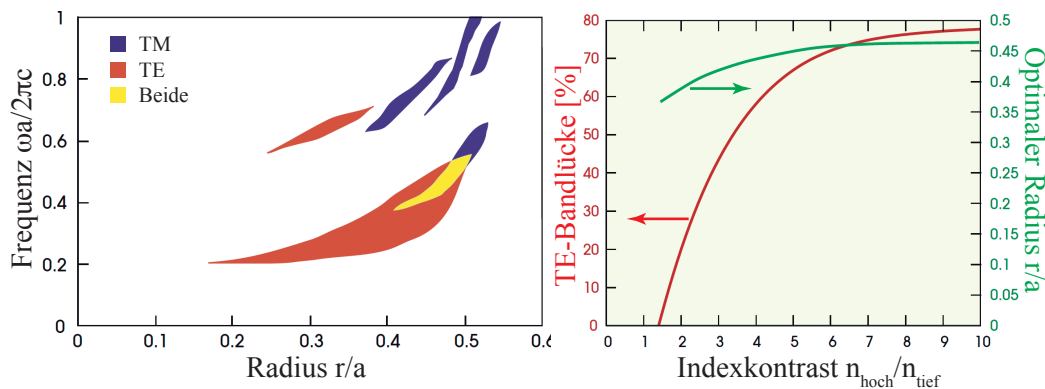


Abbildung 2.7.: Links: Gap map eines 2D photonischen Kristalls mit hexagonaler Symmetrie und einem Brechungsindex von $n = 3,4$, wie ihn z.B. GaAs besitzt. Rechts: Rezept für die Bandlücke der TE-Moden und den Radius r/a . Abbildungen aus [37].

Defektoresonatoren

Hexagonale, zweidimensionale PCs wurden für optische Wellenlängen zuerst 1993 von WENDT et al. [39] hergestellt und untersucht. Will man Licht im Inneren des photonischen Kristall auf ähnliche Weise wie auch schon bei den Mikrodisks einschließen, muss dieses Konzept für die hier geforderten Anwendungen aber noch weiter entwickelt werden. Wie bereits kurz erwähnt, ist eine Möglichkeit, einen Resonator zu erzeugen, dass man einen Defekt in der symmetrischen Anordnung der Löcher erzeugt.

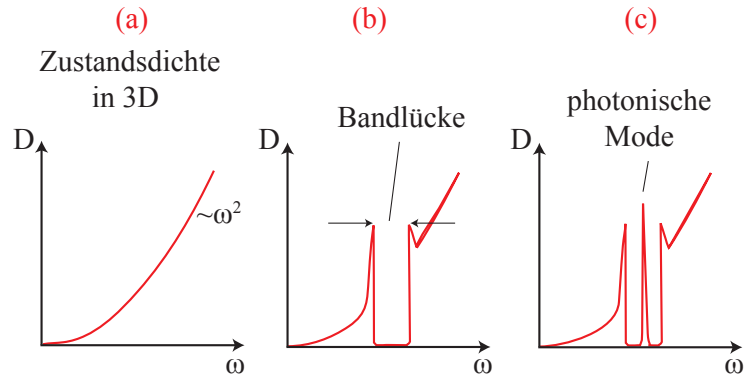


Abbildung 2.8.: (a) Die photonische Zustandsdichte in 3D ist quadratisch. (b) Durch die dielektrische Periodizität im photonischen Kristall entsteht eine Bandlücke. (c) Fügt man einen Defekt in die Periodizität ein, steigt die Zustandsdichte für eine passende Frequenz wieder an. Originalabbildung aus [40].

Um dies zu verstehen, ist in Abbildung 2.8 die Zustandsdichte für verschiedene Dimensionalitäten gezeigt. Im Dreidimensionalen ist die photonische Zustandsdichte quadratisch von der Frequenz abhängig, wie im Teil (a) gezeigt. Durch die periodische Veränderung der Dielektrizitätszahl in einem photonischen Kristall entsteht eine Bandlücke für einen bestimmten Frequenzbereich, wie in Teil (b) der Abbildung gezeigt. Die Zustandsdichte verschwindet in diesem Intervall. Durch Einfügen eines Defektes in die Periodizität (z.B. Weglassen eines Lochs in einem 2D-PC) wird an dieser Stelle die Symmetrie gebrochen und die Zustandsdichte steigt für eine oder mehrere bestimmte Frequenzen ω_M wieder an. Liegt ω_M in der Bandlücke des photonischen Kristalls, bedeutet dies für die Mode, dass ihre Zustandsdichte überall im PC null ist außer im Defekt. Kann man nun Licht der passenden Frequenz ω_M in den photonischen Kristall einkoppeln, wird das elektrische Feld in dem Defekt lokalisiert und dort eingeschlossen, der Defekt wird zu einem Resonator.

Ein solchen Defekt in einen zweidimensionalen photonischen Kristall bei der Herstellung gezielt einzubringen ist einfach, hinzu kommt der Vorteil, dass der Resonator hier leicht zugänglich ist für Untersuchungen. Um nur eine oder wenige Moden zuzulassen, muss der Resonator hinreichend klein gewählt werden, damit diskrete Moden entstehen.

Der Einschluss in z -Richtung erfolgt wie auch schon bei den Mikrodisk durch totale interne Reflexion auf Grund des Brechungsindexkontrast zwischen Dielektrikum und Hintergrund. Damit auch in dieser Raumrichtung nur die Mode niedrigster Ordnung zulässig ist, muss die Membran des 2D-PC hinreichend dünn gewählt werden. Rechnungen hierzu finden sich im Kapitel 2.2 zu den Mikrodisk.

Die ersten Mikroresonatoren auf Basis des Einschlusses durch eine photonische Bandlücke wurden Ende des letzten Jahrtausends produziert, sie haben im Vergleich zu anderen Mikroresonatoren ein sehr kleines Modenvolumen bis zu $2,5 \cdot \left(\frac{\lambda}{2}\right)^2$ [41, 42]. Einen übersichtlichen Vergleich von Resonatoren in photonischen Kristallen mit verschiedenen Mikrokavitäten wie Mikrodisk findet sich z.B. bei VAHALA [43].

In photonischen Kristallen mit hexagonaler Symmetrie können verschiedene Defekte eingebaut werden (vergl. Abb. 2.9). Dies beginnt mit dem einfachen Weglassen eines Lochs (H1-Kavität) [44], oder einem Loch mit den umgebenden sechs (H2-Kavität) [42], es ergeben sich dadurch annähernd runde Kavitäten, so dass das eingeschlossene Licht WGMs bilden kann wie auch schon bei den Mikrodisk [44]. In Lineardefekten stellen sich dagegen Moden ein, wie in makroskopischen linearen Resonatoren auch, es können aber auch zweidimensionale Moden entstehen [45, 46]. Für einen linearen Resonator kann man z.B. drei Löcher in einer Reihe weglassen (L3-Kavität) [45, 47], fünf Löcher (L5-Kavität) [48] oder sieben Löcher (L7-Kavität) [46].

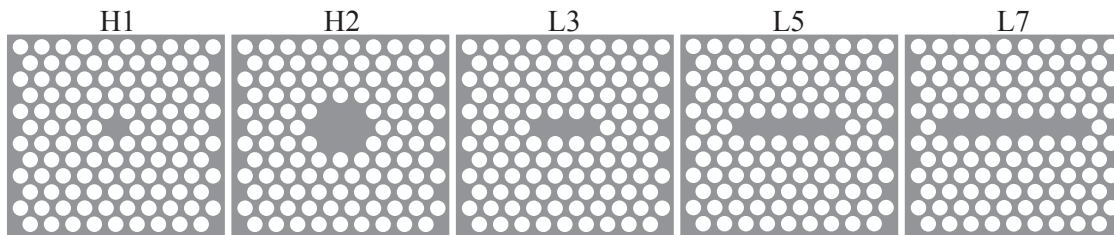


Abbildung 2.9.: Übliche Formen von Defektresonatoren in einem zweidimensionalen photonischen Kristall mit hexagonaler Symmetrie.

Korrekturen am Resonatordesign

Die Gütefaktoren der Defektresonatoren lassen sich zu extrem hohen Werten steigern, indem man z.B. die Lochgröße bestimmter Löcher am Rand des Resonators anpasst [41], die Löcher an den Rändern der Kavität verschiebt [47], beide Techniken kombiniert [49] und/oder genügend Perioden des photonischen Kristalls zur Verfügung stellt, auf denen es zu keiner Variation des Lochdurchmessers durch Proximityeffekte kommt [50, 51].

Die Variation des Lochdurchmessers eines Teils der die Kavität umgebenden Löcher ebenso wie das Verschieben auf andere Positionen (vergl. Abb. 2.10) kann zu verschiedenen positiven Effekten führen: In der REM-Aufnahme in Teil (a) der Abbildung haben

2. Grundlagen

zwei der sechs die ursprünglich runde Kavität umgebenden Löcher einen anderen Radius $r' > r$. Dadurch wird die Symmetrie der Mode gebrochen und nur noch die y -Dipol-Mode ist lokalisiert. Der gezeigte Resonator trägt nur eine einzige Mode [41].

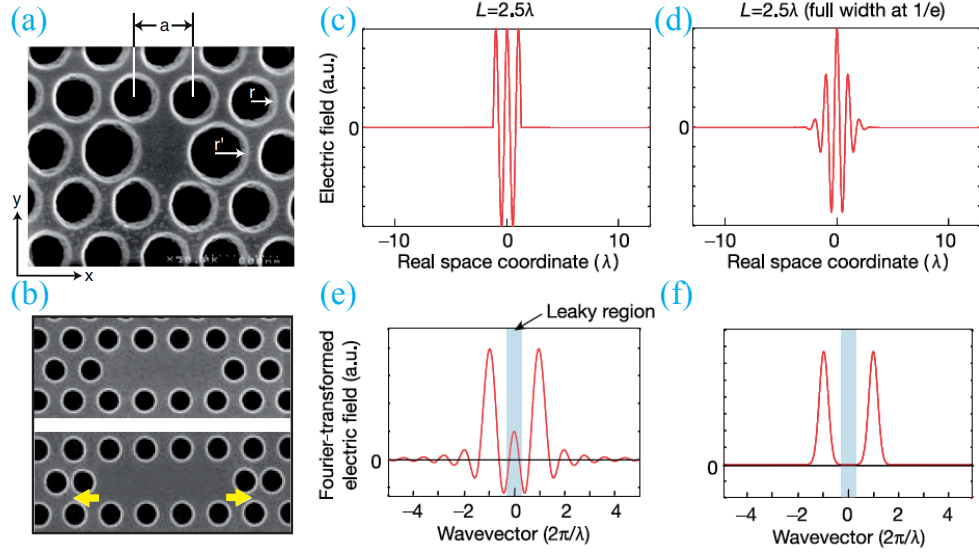


Abbildung 2.10.: (a) REM-Aufnahme einer H1-Kavität mit zwei vergrößerten Löchern [41]. (b) REM-Aufnahme einer L3-Kavität (oben) und der korrigierten Version (unten). (c)+(e) Profil des elektrischen Feldes für eine Kavität der Länge $2,5\lambda$ und die Fouriertransformierte. (d)+(f) Feldprofil für eine gaussförmige Einhüllende und ihre Fouriertransformierte [47].

In der REM-Aufnahme im Teil (b) der Abbildung ist oben eine L3-Kavität gezeigt, unten wurden die beiden äußeren Löcher von ihren ursprünglichen Positionen weiter nach außen verschoben. Diese Verschiebung bewirkt einen starken Anstieg der Gütefaktoren der eingeschlossenen Moden. AKAHANE et al. [47] erklären dies mit geringeren Verlusten, wenn die Mode nicht abrupt am Rand des sehr kleinen Resonators abfällt sondern sanft z.B. bei einer gaussförmigen Einhüllenden. Die Profile des elektrischen Feldes sind für die unveränderte L3-Kavität in (c) und für die angepasste Version in (d) gezeigt. In (e) und (f) sind die entsprechenden Fouriertransformierten aufgetragen, wobei der blau markierte Bereich der Verlustregion entspricht. Es wird deutlich, dass der harte Einschluss zu einer erhöhten Verlustrate und damit zu geringeren Lebensdauern der Photonen im Resonator führt.

Bei der Herstellung zweidimensionaler photonischer Kristalle durch Elektronenstrahl-lithografie kommt es häufig zum Proximityeffekt. Dies bedeutet, dass die Strukturen an den Rändern des photonischen Kristalls im elektronenstrahlempfindlichen Lack mit einer geringeren Elektronendosis belichtet werden als die Strukturen im Inneren, denn dort kommt es vermehrt zu Streuung der Elektronen in benachbarte Regionen. Dies führt

zu einer geringeren Belichtung des für Elektronen empfindlichen Lacks (eine genauere Beschreibung der Herstellung der photonischen Kristalle folgt in Kapitel 3.3). Im Fall der photonischen Kristalle kommt es in der Folge zu zum Rand des PCs hin kleiner werdenden Lochdurchmessern.

RYU et al. [51] haben theoretisch und HENNESSY et al. [50] auch praktisch gezeigt, dass dieser Proximityeffekt auch in kleinen Ausprägungen bei photonischen Kristallen zu einer Verkleinerung der Bandlücke und einer Verschlechterung der Gütefaktoren der Moden führt. HENNESSY et al. zeigen, dass ohne Proximitykorrektur (Anpassen der Elektronendosen an den Rändern der Struktur) über zehn Perioden die Elektronendosis auf dem Lack um 5 % anfällt und dieser nicht vollständig belichtet wird. Der Radius der Löcher sinkt dadurch vom Wert $r/a = 0,4$ in der Mitte der Struktur auf 0,1 bei den äußersten Löchern ab, was niedrige Gütefaktoren der eingeschlossenen Moden zur Folge hat. Eine Lösung dieses Problems ist die Anpassung der Elektronendosis an den Rändern der Struktur, so dass der Lack über alle Perioden gleich belichtet wird.

2.4. Lichteinkopplung in Mikroresonatoren

Nachdem nun die Resonatoren, die hier verwendet werden sollen, ausführlich besprochen wurden, bleibt die Frage, wie Licht in die Moden des Resonators eingekoppelt werden können. Da die verwendeten Membranen alle aus Halbleitermaterial bestehen, kann die Lumineszenz des Halbleiters genutzt werden. GaAs ist ein direkter Halbleiter, d.h. es könnten entweder Elektro- oder Photolumineszenz verwendet werden. Wegen der geringen Größe der Resonatorstrukturen ist es einfacher, Photolumineszenz anzuwenden, als Elektroden für die Elektrolumineszenz in die Bauteile zu integrieren.

Bei einer Nutzung der Bandkantenemission von GaAs zum Einkoppeln von Licht in die Resonatoren ergeben sich zwei Probleme: Die Halbwertsbreite (FWHM) der Bandkantenemission von GaAs beträgt bei 4 K etwa 6 meV und steigt bis Raumtemperatur auf etwa 30 meV an [52]. Nutzt man die Bandkantenemission als Lichtquelle für die resonanten Moden, so ist der Frequenzbereich möglicher Moden bei Raumtemperatur auf die Breite von 30 meV beschränkt. Da es durch Fabrikationsungenauigkeiten kaum möglich ist, einen Resonator mit einer vorher bestimmten Modenfrequenz exakt herzustellen, ist eine schmale Lumineszenzbandbreite des aktiven Mediums im Resonator von Nachteil. Zudem sollen in dieser Arbeit die Moden zusätzlich noch durchgestimmt werden, was leicht dazu führen könnte, dass die Moden aus der GaAs Bandkantenemission herausgeschoben werden.

Ein weiteres Problem bei der Nutzung der Bandkantenemission des Membranmaterials ist die Reabsorption im Halbleiter. Das elektrische Feld der resonanten Mode befindet sich fast ausschließlich im Halbleiter. Liegt die Frequenz der Mode im Bereich der Frequenz der Bandkantenemission, kann das Photon ein Elektron über die Bandlücke anregen und wird absorbiert. Die Lebensdauer der Photonen im Inneren der Membran wird so minimal. Wie bereits beschrieben wurde, ist die Güte einer resonanten Mode

in einer Kavität direkt verknüpft mit der Lebensdauer der Photonen; die Moden innerhalb der Bandkantenemission des Halbleitermaterials werden also sehr geringe Güten. [53]-[55]

Eine Verbesserung dieses Problems kann man durch eine Verringerung des räumlichen Überlapps der resonanten Mode mit dem aktiven Material erreichen, denn dadurch wird die Absorption minimiert. Eine Möglichkeit dafür wäre z.B., nur eine dünne Schicht des aktiven Materials auf oder in den transparenten Resonator zu bringen [56].

Um die Breite der Emission des aktiven Medium zu vergrößern und damit das erste genannte Problem zu lösen, werden in Mikroresonatoren hauptsächlich Quantenpunkte (QDs) und Quantenfilme (QWs) verwendet, da diese über einen breiteren Frequenzbereich emittieren. Durch ihre sehr kleine räumliche Ausdehnung wird außerdem die Reabsorption der resonanten Moden verringert.

Elektronen in niedrigdimensionalen Systemen

Schränkt man Elektronen in einer oder mehrerer Dimensionen räumlich stark ein, sind ihre möglichen Zustände quantisiert wie in einem Potentialtopf. Ist die Einschränkung in einer Raumrichtung kleiner als die Fermiwellenlänge der Elektronen

$$\lambda_F = \frac{h}{\sqrt{2m_{eff}E_F}} \quad (2.28)$$

mit der Fermienergie E_F und der effektiven Masse des Elektrons m_{eff} , wird in dieser Richtung nur der Grundzustand besetzt. Auch hier macht es Sinn, sich die Zustandsdichte der verschiedenen Möglichkeiten anzusehen, wie sie in Abbildung 2.11 gezeigt sind.

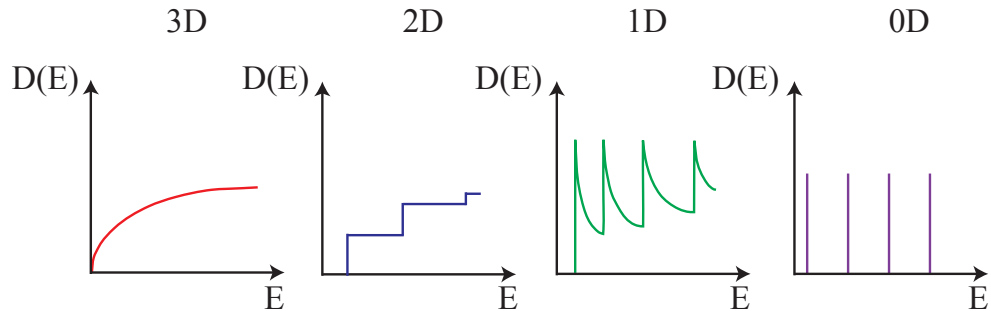


Abbildung 2.11.: Elektronische Zustandsdichte im 3D und niedrigerdimensionalen Systemen.

Im Dreidimensionalen ist die Zustandsdichte für Elektronen wurzelförmig. Schränkt man die Elektronen in einer Dimension ein, ergeben sich Subbänder und die Zustandsdichte wird stufenförmig, so dass die möglichen Zustände quantisiert sind. Eine zweidimensionale Struktur für Elektronen nennt man auch einen Quantentopf oder Quantenfilm.

Bei einem Quantenfilm wird in ein Halbleitermaterial mit einer höheren Bandlücke eine dünne Lage (wenige Nanometer) eines Materials mit einer niedrigeren Bandlücke eingebracht, dies kann z.B. durch Molekularstrahlepitaxie geschehen. Es entsteht in Wachstumsrichtung ein Potentialprofil wie bei einem endlichen Potentialtopf. Die untersten elektronischen Zustände sind im Quantentopf gebunden und quantisiert. Die möglichen Zustände des Elektrons in einem Quantenfilm in GaAs sind z.B. bei DAVIES [57] berechnet.

In der vorliegenden Arbeit wurde ausschließlich das III-V Materialsystem verwendet. Eines der verwendeten Probenmaterialie besitzt eine Membran aus GaAs mit einem eingebetteten 3 nm dicken $\text{In}_{0,28}\text{Ga}_{0,72}\text{As}$ Quantenfilm. Ein so schmaler Quantenfilm zeigt bei tiefen Temperaturen (15 K in der zitierten Arbeit) Lumineszenz nur vom Grundzustand [58], die Lumineszenz liegt bei 15 K bei 900 nm. Bei Raumtemperatur kann auch der höhere Zustand besetzt werden. Ein Photolumineszenzspektrum vom Quantentopf-Probenmaterial, das bei Raumtemperatur aufgenommen wurde, ist in Abbildung 2.12 links gezeigt.

Das zweite hier verwendete Probenmaterial hat eine Lage InAs-Quantenpunkte in der Mitte der GaAs-Membran eingebettet. Quantenpunkte sind quasi-nulldimensionale Strukturen, denn die Elektronen sind in allen Raumrichtungen beschränkt. Die elektronische Zustandsdichte kondensiert in einzelne Deltafunktionen und die Energieniveaus der Elektronen sind quantisiert.

Um quasi-nulldimensionale Strukturen herzustellen gibt es verschiedene Verfahren. Die Quantenpunkte in dieser Arbeit wurden alle mit dem Stranski-Krastanov-Verfahren [59] gewachsen, welches eine Möglichkeit der selbstorganisierten Herstellung von Quantenpunkten ist [60]. Das Verfahren beruht darauf, dass GaAs als Volumensubstrat und InAs eine um 7 % verschiedene Gitterkonstante haben, wobei die vom GaAs kleiner ist. Wächst man auf monokristallines GaAs epitaktisch InAs auf, so benetzen die ersten 1,5 Monolagen das GaAs homogen, weshalb man diese auch Benetzungsschicht nennt. Ab der kritischen Schichtdicke werden die Verspannungen aber zu groß und es kommt zu dreidimensionalem Inselwachstum. Die InAs Inseln sind auf der Oberfläche dabei homogen verteilt. Der laterale Durchmesser beträgt etwa 20 nm und die Höhe 5 nm [59].

Wegen ihrer Form lassen sich die Quantenpunkte als zweidimensionaler harmonischer Oszillator beschreiben, so dass sich die quantisierten Energiezustände der Elektronen im Inneren berechnen lassen, die Näherung erzielt dabei sehr gute Ergebnisse [61]-[64]. Der 2D harmonische Oszillator lässt sich analytisch lösen, seine Energieeigenwerte werden auch Fock-Darwin-Energien nach ihren Entdeckern FOCK [65] und DARWIN [66] genannt, sie entsprechen im Quantenpunkt den Energieniveaus des Elektrons.

Zur Berechnung der Energieeigenwerte bringt man ein Elektron in ein unendlich hohes parabolisches Potential in einem schichtsenkrechten Magnetfeld. Die Schrödinger-

2. Grundlagen

gleichung sieht dann folgendermaßen aus:

$$\underbrace{\left[\frac{1}{2m} (\vec{p} - e\vec{A})^2 + \frac{1}{2} m_{eff} \omega_0^2 (x^2 + y^2) \right]}_{\hat{\mathcal{H}}} \Psi = E \Psi, \quad (2.29)$$

wobei m_{eff} die effektive Masse des Elektrons ist und \vec{A} das zum Magnetfeld $\vec{B} = (0,0,B)$ gehörige Vektorpotential. ω_0 ist die Eigenfrequenz des Systems.

Nimmt man eine symmetrische Eichung vor und führt den Drehimpulsoperator in z -Richtung \hat{L}_z ein:

$$\vec{A} = \frac{1}{2} \vec{B} \times \vec{r} = \begin{pmatrix} -yB \\ xB \\ 0 \end{pmatrix}, \quad (2.30)$$

so wird aus dem Hamiltonoperator aus Gleichung 2.29 $\hat{\mathcal{H}} = \hat{\mathcal{H}}'_{xy} - \frac{\omega_c}{2} \hat{L}_z$ mit der Zyklotronfrequenz $\omega_0 = \frac{eB}{m_{eff}}$.

Schaltet man das Magnetfeld \vec{B} ein, ändert sich die charakteristische Kreisfrequenz des Systems von ω_0 in $\Omega = \sqrt{\omega_0^2 + \frac{\omega_c^2}{4}}$. Die Eigenwerte des Hamiltonoperators erhält man unter Anwendung kartesischer Leiteroperatoren, eine genaue Rechnung findet sich z.B. bei COHEN und TANNOUJI [67]:

$$E_{N,m} = (N+1)\hbar\Omega + l\hbar\frac{\omega_c}{2}. \quad (2.31)$$

Die Zustände sind $2(N+1)$ -fach entartet, die Entartung wird erst im Magnetfeld aufgehoben. Die Energieeigenwerte sind äquidistant, wobei der Abstand zwischen den Energien $\Delta E = \hbar\omega_0$ beträgt. Wegen der Analogien zu den gebundenen Elektronenzuständen im Atom nennt man hier auch den Grundzustand mit $l=0$ s -artig, den Zustand mit $l=1$ p -artig, mit $l=2$ d -artig usw..

Bei der Lumineszenz von Quantenpunkten entspricht die Energie der emittierten Strahlung der Bandlückenenergie des Materials angehoben um die Quantisierungsenergie der eingeschlossenen Elektronen. Ein einzelner Quantenpunkt zeigt dementsprechend ein sehr schmales Lumineszenzmaximum von unter 0,1 meV bei InAs QDs [68, 69] wie beispielhaft im rechten Spektrum in Abbildung 2.12 gezeigt. Die gezeigten schmalen Peaks stammen von einer Probe mit einer sehr geringen InAs-Quantenpunktdichte, gemessen bei 10 K.

Eine Probe mit einer sehr hohen Quantenpunktdichte zeigt wegen der Gauss-förmigen Größenverteilung der QDs stark verbreiterte Lumineszenzpeaks wie in der Abbildung in der Mitte gezeigt. Dieses Photolumineszenzspektrum wurde am hier verwendeten InAs-Quantenpunktmaterial bei Raumtemperatur aufgenommen.

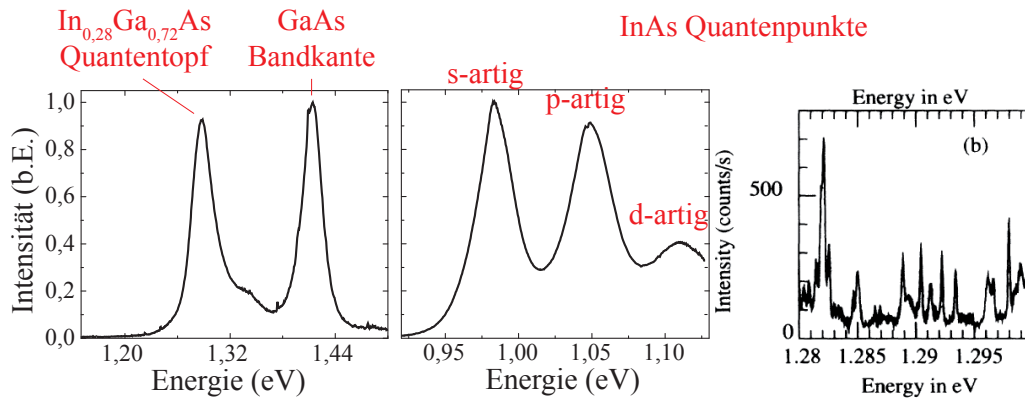


Abbildung 2.12.: Photolumineszenzspektren der verwendeten Probenmaterialie bei Raumtemperatur, links das Quantenfilmmaterial, in der Mitte das Quantenpunktmaterial. Rechts zum Vergleich ein Lumineszenzspektrum einzelner InAs-Quantenpunkte bei 10 K [68].

2.5. Das Laser-Regime

Da die in dieser Arbeit hergestellten photonischen Resonatoren teilweise in das Laser-Regime gepumpt werden können, soll dieses hier theoretisch behandelt werden, um bei den Messungen das Laser-Regime eindeutig identifizieren zu können.

Der Begriff Laser [70] steht für *light amplification by stimulated emission of radiation*. Voraussetzung für das Erreichen des Laser-Bereichs ist eine Besetzungsinversion [71], d.h. dass die durch die vorbeilaufende Welle ausgelöste stimulierte Emission die Verluste durch Absorption bei einem Umlauf der Welle durch den Resonator ausgeglichen. Die Laserschwelle ist der Punkt, an dem die optische Ausbeute gerade gleich der Verluste ist.

Die Prozesse in einem Laser werden als allgemein bekannt angenommen, trotzdem ist es wichtig auf die Eigenarten der elektromagnetischen Strahlung eines Lasers hinzuweisen, die später auch experimentell untersucht werden. Eine messbare Größe ist die Modenintensität der Lasermode; sie ist über der Laserschwelle linear von der Pumpleistung abhängig und steigt bis zur Sättigungsintensität I_{sat} an. Die Sättigungsintensität ist normalerweise unabhängig von der Pumpleistung [72]. Trägt man die Modenintensität über der Pumpleistung auf und plottet den linearen Anstieg, entspricht der x -Achsenabschnitt der linearen Anpassung der Laserschwelle des Resonators.

Unterhalb der Laserschwelle ist die Besetzung des angeregten Zustands im Lasermedium proportional zur Pumprate, was dazu führt, dass die Photonenzahl annähernd konstant im Bereich von eins oder einige Größenordnungen darüber liegt. Oberhalb der Laserschwelle steigt die Besetzung des angeregten Zustands auf den Schwellenwert N_{th} an und bleibt bei diesem Wert. Dies führt zu einem linearen Anstieg der Photonen mit

der Pumpleistung. Die Anzahl der Photonen liegt nun in der Größenordnung von 10^8 bis 10^{10} liegen. [72]

Der lineare Anstieg der optischen Ausbeute über der Laserschwelle ist aber keine hinreichende Bedingung, um das Erreichen des Laser-Regimes zu bestätigen, es muss mindestens noch eine weitere Messgröße dokumentiert werden. Eine weitere Veränderung beim Überschreiten der Laserschwelle, die mit den hier zur Verfügung stehenden Messmethoden aufgenommen werden kann, ist die Reduktion der Halbwertsbreite (FWHM) der Mode bis zur Laserschwelle. Unterhalb der Laserschwelle dominiert die spontane Emission der angeregten Zustände, sie relaxieren nur teilweise leuchtend, teilweise in einem dunklen Prozess. Die Bandbreite der Lumineszenz entspricht hier dem atomaren Übergang. Oberhalb der Laserschwelle wird die Besetzung des angeregten Zustands beim Schwellwert festgehalten, und die stimulierte Emission kohärenter Strahlung dominiert. Die Linienbreite der Mode fällt auf die Breite einer monochromatischen Resonatormode.

Es gibt noch weitere Methoden, das Erreichen der Laserschwelle nachzuweisen, wie z.B. die Messung der Veränderung des statistischen Charakters des Laserlichts von zufälligem Gauss-Rauschen unterhalb der Laserschwelle zu kohärenter amplitudenstabilisierter Oszillation oberhalb der Schwelle. Es stehen hier aber nur die genannten beiden Methoden – Auftragung Modenintensität über Pumpleistung und FWHM der Mode über Pumpleistung – zur Verfügung. Das Erfüllen beider Bedingungen von einer Resonatormode wird also im Folgenden als hinreichend angenommen, um das Überschreiten der Laserschwelle zu bestätigen.

2.6. Durchstimmen photonischer Resonatoren

Das Durchstimmen eines photonischen Resonators kann aus verschiedenen Gründen interessant sein, wie in der Einleitung dieser Arbeit bereits kurz erwähnt wurde. Bei Mikroresonatoren ist von besonderem Interesse, dass sich z.B. verschiedene Effekte zwischen der Mode der Kavität und dem aktiven Medium untersuchen lassen, wie das Rabi-Splitting [11, 12], die starke Kopplung [6, 7], den Purcell Effekt [10] und *photon antibunching* (Totzeit zwischen zwei aufeinanderfolgenden Photon-Emissionsprozessen) [16, 73]. Dazu kann es nötig sein, entweder die Mode aktiv und reversibel durchzustimmen, oder aber permanent zu einer bestimmten Frequenz zu schieben, damit sie dort dauerhaft bleibt. Letzteres kann wegen immer vorhandener Mängel in der Herstellung der Resonatoren nicht direkt eingestellt werden, deshalb ist ein nachträgliches Durchstimmen der Frequenz der Mode oft nötig.

Bekannte Verfahren

Makroskopische Resonatoren durchzustimmen, ist bereits hinlänglich bekannt, so kann die Wellenlänge von herkömmlichen Lasern z.B. durch Anpassung der Resonatorlänge

verändert werden. Doch auch bei Mikrokavitäten wurden mit verschiedenen Verfahren bereits Erfolge erzielt.¹

Um bei tiefen Temperaturen (flüssiges Helium) eine Kavität und einen Quantenpunkt in den Bereich spektralen Überlapps zu bringen, wird häufig ausgenutzt, dass die QD-Lumineszenz und die photonische Mode der Kavität temperaturabhängig zwar in die gleiche Richtung schieben, dabei aber verschiedene Temperaturabhängigkeiten aufweisen, also auf der Frequenzskala unterschiedlich weit schieben. Das Verschieben der photonischen Mode beruht dabei auf der Temperaturabhängigkeit des Brechungsindex des Resonatormaterials. Es ist eine Temperaturveränderung von $\Delta T \sim 30 - 50$ K nötig, um den Quantenpunkt wenige meV zu verschieben, die Resonanz schiebt noch weniger [74]. Dieses Verfahren wurde bereits erfolgreich bei Mikrodisks [10, 13] und photonischen Kristallen [14] angewendet, die Temperaturkontrolle kann lokal auch über einen Laserstrahl erfolgen [15]. Allerdings kann dieses Verfahren nur bei tiefen Temperaturen sinnvoll angewendet werden.

Durch Verwendung eines gepulsten Lasers über der Bandkante können außerdem freie Ladungsträger injiziert werden, die den Brechungsindex des Resonators ebenfalls verändern können und so die Resonanz zu geringeren Wellenlängen schieben [75]. Hier ist die Lebensdauer dieses Zustands aber begrenzt auf die Lebensdauer der freien Ladungsträger.

Während das Verfahren der Temperaturänderung reversibel ist, kann man das schrittweise Ätzen des Resonatormaterials als Durchstimmverfahren nicht rückgängig machen. BADOLATO et al. zeigten, dass bei Membranen aus GaAs ausgenutzt werden kann, dass sich an Luft sofort eine Oxidschicht von etwa 1,5 – 2 nm bildet, welche selektiv über dem GaAs und selbstregulierend mit Zitronensäure weggeätzt werden kann [17]. In der zitierten Arbeit konnte die Dicke der Resonatormembran schrittweise jeweils um $\sim 3 - 4$ nm reduziert werden, was zu einer Verschiebung der resonanten Mode um 3 nm pro Schritt führte. Es handelt sich also um ein relativ grobes Einstellungsverfahren.

Ein weiteres schrittweises Verfahren ist das Nano-Oxidieren der Kavitätsoberfläche, welches HENNESSY et al. erfolgreich an einer GaAs Membran angewendet haben [18]. Durch teilweises Oxidieren des Resonatormaterials mit Hilfe eines AFMs konnten in der genannten Arbeit Verschiebungen der resonanten Mode zwischen 1 Å und 3 – 4 nm zu geringeren Wellenlängen erreicht werden, wobei die Güte der Mode dabei nicht beeinträchtigt wurde. Die Verschiebung der Resonanz beruht hier darauf, dass durch die stellenweise Oxidation des Membranmaterials der effektive Brechungsindex für die Mode verändert wird.

STRAUF et al. [19] und SRINIVASAN et al. [20] nutzen zum Durchstimmen der Resonanzen ein weiteres nur bei tiefen Temperaturen anwendbares Verfahren: Bringt man eine Mikrokavität ins Vakuum, kühlt sie bis auf die Temperatur vom flüssigen Helium

¹Verfahren, die darauf abzielen, die Lumineszenz des bzw. der Quantenpunkte im Resonator zu verschieben und dabei z.B. den Stark- oder den Zeeman-Effekt ausnutzen, werden hier nicht weiter behandelt.

ab und lässt dann langsam ein Gas – wie z.B. Stickstoff – in das Vakuum ein, werden die Gasmoleküle auf der Oberfläche des Resonators adsorbiert und verändern den effektiven Brechungsindex des Hintergrunds. Mit einer Schicht Moleküle mit $n > 1$ auf der Oberfläche kann die photonische Mode weiter aus dem Resonator herauslecken, was zu einem größeren Modenvolumen führt. Dieses Verfahren verschiebt die Resonanz also zu höheren Wellenlängen. Durch ein Erhitzen der Probe kann die Adsorption der Moleküle auf der Oberfläche rückgängig gemacht werden, wodurch das Verfahren reversibel ist.

Lässt man das Gas in den Kryostaten ein, wo es auf der Probe adsorbiert wird, sättigt die Verschiebung der Resonanz nach einiger Zeit. STRAUF et al. erreichen so eine Rotverschiebung der Mode von ~ 6 meV, SRINIVASAN et al. von ~ 4 nm.

Die letzte aus der Literatur bekannte Möglichkeit, eine Mode in einem Mikroresonator zu verschieben, die hier vorgestellt werden soll, beruht auf einer Einbettung des Resonators in Flüssigkristalle (LC). Dabei kommt es schon durch das Umhüllen der Kavität mit dem Flüssigkristall, der einen vom Vakuum verschiedenen Brechungsindex $n_{LC} > 1$ hat, zu einer permanenten Verschiebung der Mode. Dieser Effekt ist dadurch bedingt, dass der Brechungsindexkontrast zwischen Membran und Hintergrund abnimmt, weswegen der Modeneinschluss schlechter wird. Die Mode kann so ihr Volumen vergrößern und damit wird die resonante Wellenlänge größer.

Die Verschiebung der Mode beim Befüllen der Probe mit dem LC kann genutzt werden, um zu kontrollieren, dass der Resonator vollständig im Flüssigkristall eingebettet ist, ist aber im weiteren nutzlos, weil sie nicht reversibel und nicht einstellbar ist. Die Eigenschaften eines Flüssigkristalls sind in Kapitel 5.1 ausführlich beschrieben, hier sei nur darauf hingewiesen, dass der LC in der flüssigkristallinen Phase doppelbrechend ist und zwei Brechungsindizes n_o und n_e hat, die außerdem von der Temperatur abhängen. Am Phasenübergang flüssigkristallin \rightarrow flüssig-isotrop (auch Klärpunkt) haben die Brechungsindizes einen Sprung, in der flüssig-isotropen Phase existiert nur ein Brechungsindex.

Die erste Arbeit, in denen Flüssigkristalle in Verwendung mit optischen Resonatoren vorgeschlagen werden, datiert auf 1999. BUSCH und JOHN berechnen für einen mit Flüssigkristall gefüllten, invertierten Opal (einen 3D photonischen Kristall) wie sich durch Anlegen eines elektrischen Feldes die LC Moleküle ausrichten und damit die photonische Bandlücke verändert [76].

In der Folge wurden weitere Arbeiten veröffentlicht, in denen sowohl bei zwei- als auch bei dreidimensionalen photonischen Kristallen die photonischen Bandlücke mit Hilfe von Flüssigkristallen durchgestimmt wurde. Das Durchstimmen basiert entweder auf der Temperaturabhängigkeit der Brechungsindizes des Flüssigkristalls und dem Sprung am Klärpunkt [77] oder auch auf dem Ausrichten der Moleküle des LC im äußeren elektrischen Feld [78]–[80].

Während in den genannten Arbeiten bis dahin nur Einfluss auf die photonische Bandlücke genommen werden konnte, also die Transmissions- und die Reflexionseigenschaften untersucht wurden, gelang es SCHÜLLER et al. 2003 an einem mit Flüssigkristall gefüllten zweidimensionalen Kristall mit eingebauter Kavität, die resonante Mode mit

Änderung der Temperatur durchzustimmen [81]. Die Verschiebung lag bei etwa 9 nm, wobei betont werden muss, dass die Temperaturabhängigkeit des Brechungsindizes der Resonatormembran nicht aus diesem Wert herausgerechnet wurde.

Ebenfalls temperaturabhängig war die Verschiebung der Resonanzen eines Defektoresonators in einem 3D photonischen Kristall, den MERTENS et al. mit einem Flüssigkristall füllten [82], die photonische Mode lag hier aber in einem Wellenlängenbereich von 7,4 μm . DÜNDAR et al. wiesen an einem zweidimensionalen photonischen Kristall gefüllt mit Flüssigkristall nach, dass die resonanten Moden in unterschiedliche Richtungen schieben können, wobei die Messung temperaturabhängig durchgeführt wurde [83]. Den unterschiedlichen Effekt der Temperaturveränderung auf die photonischen Moden führen die Autoren auf die Doppelbrechung im LC zurück.

Einen Resonator direkt aus Flüssigkristall hergestellt haben HUMAR et al., ihnen gelang es dann durch Anlegen eines elektrischen Feldes, die resonanten Moden im Inneren des Flüssigkristalltropfens um bis zu 3 % auf der Wellenlängenskala zu verschieben.

Mikrodisk wurden in Vorarbeiten zu dieser Arbeit bereits hergestellt und in einen Flüssigkristall eingebettet. Durch Temperaturerhöhung über den Klärpunkt konnten die resonanten Moden in den GaAs Membranen um bis zu 7,5 nm verschoben werden [84]–[87, 40].

Zur Zusammenfassung soll Tabelle 2.6 dienen, in der die bisher in der Literatur verwendeten Verfahren inkl. ihrer Eigenschaften aufgelistet sind. Ziel ist es, diese Tabelle vor allem im Bereich der Raumtemperatur und der aktiven und der feineinstellbaren permanenten Durchstimmbarkeit der Resonatoren zu erweitern. Außerdem sollen die Verfahren hauptsächlich an Mikrodisk gezeigt werden, da bisher wenige Verfahren an diesen durchgeführt wurden und dieses Modellsystem theoretisch leichter zu beschreiben ist.

Theoretische Vorbetrachtung

Im Kapitel 2.2 zu den Grundlagen der Mikrodisk ist die Eigenwertgleichung in z -Richtung einer symmetrischen Mode grafisch gelöst, um zu zeigen, dass die Mode in dieser Richtung nur im Grundzustand existieren kann, was in gleicher Weise auch für die zweidimensionalen photonischen Kristalle gilt. Die Gleichung ist für zwei verschiedene Membrandicken und jeweils verschiedene umgebende Brechungsindizes gelöst. Es ergeben sich bei der grafischen Lösung dabei verschiedene Schnittpunkte, die für die unterschiedlichen Modenwellenlängen stehen. Liest man die x - und y -Werte des Schnittpunktes ab, lässt sich daraus die Wellenlänge berechnen. Dies soll hier geschehen, um abschätzen zu können, in welche Richtung die Resonanzen schieben und in welcher Größenordnung diese Verschiebung liegt. die Lösungen sind dabei in gleichem Maße gültig für die WGM in 2D photonischen Kristallen mit Defektoresonatoren.

2. Grundlagen

Verfahren	MDs	PCs	Temp.bereich		rev.	Auflösung		aktiv	Nachteile
			5K	RT		hoch	niedrig		
Temperatur	X	X	X		X	X		X	kurze Lebensd.
L.trägerinjektion		X	X		X	X		X	
schrittzw. Ätzen		X	X	X			X		
Nanooxidieren		X	X	X		X			$\Delta E < 4$ nm hoher Aufwand
Monolagen Ads.	X	X	X		X	X		X	
LC + Temp.	X	X		X	X	X		X	
LC + E-Feld		X		X	X	X		X	

Tabelle 2.1.: Übersicht über die bisher in der Literatur angewendeten Verfahren zum Durchstimmen der Resonanzen in einer Mikrokapazität.

Das erste zu behandelnde Material sei hier das **Quantenfilmmaterial** mit einer Membrandicke von $2a_{QW} = 160$ nm. Wie bereits in Kapitel 2.2 erwähnt, ist der minimale Brechungsindex des Hintergrundes der der Luft mit $n_A = 1$. Die Vakuumwellenlänge der WGM wurde in diesem Fall auf $\lambda_{0,QW} = 900$ nm gesetzt. Der maximale Brechungsindex des Hintergrundes beim Quantenfilmmaterial liegt bei $n_e = 1,69$ für den außerordentlichen Brechungsindex vom Flüssigkristall 5CB. Die in der grafischen Lösung abgelesenen Werte sind

- für $n_A = 1$: $h = 0,9935$, $q = 1,5257$
- für $n_e = 1,69$: $h = 0,9552$, $q = 1,3505$.

Aus diesen Koordinaten lässt sich über

$$\lambda = 2\pi \left[\left(n_{GaAs} \frac{2\pi}{\lambda_0} \right)^2 - \alpha^2 \right]^{-\frac{1}{2}} \quad (2.32)$$

die Wellenlänge in der Membran berechnen. Es ergeben sich für die beiden Brechungsindizes:

- für $n_A = 1$: $\lambda_A = 309,36$ nm
- für $n_e = 1,69$: $\lambda_e = 305,07$ nm.

Da die Verschiebung der Vakuumwellenlänge durch das Füllen mit dem Flüssigkristall sich von der Verschiebung der Wellenlänge in der GaAs-Membran unterscheidet, werden hier die Verhältnisse der Wellenlängen vorher und nachher (also in n_A und in n_e) gebildet.

Damit kann die Verschiebung der Vakuumwellenlänge im Fall des Quantenfilmmaterials berechnet werden:

$$\lambda_{QW} = \lambda_{0,QW} \cdot \frac{\lambda_A}{\lambda_e} = 912,66 \text{ nm}$$

$$\Rightarrow \Delta\lambda_{QW} = +12,66 \text{ nm}.$$

Auf die gleiche Weise kann die Verschiebung für das zweite Probenmaterial mit den **Quantenpunkten** berechnet werden. In diesem Fall ist die Schichtdicke $2a_{QD} = 240 \text{ nm}$ und die Vakuumwellenlänge wird mit $\lambda_{0,QD} = 1100 \text{ nm}$ angekommen. Die beiden Extremwerte für den Brechungsindex des Hintergrundes sind $n_A = 1$ für die Luft und $n_{Ta2O5} = 2,21$ für eine Umhüllung mit Ta_2O_5 . Die in der grafischen Lösung in Kapitel 2.2 abgelesenen Werte der beiden Schnittpunkte sind:

- für $n_A = 1$: $h = 1,0710, q = 1,9612$
- für $n_{Ta2O5} = 2,21$: $h = 0,9846, q = 1,4829$.

Auch hier kann mit Hilfe von Gleichung 2.32 die Wellenlängen im Material berechnet werden:

- für $n_A = 1$: $\lambda_A = 362,92 \text{ nm}$
- für $n_{Ta2O5} = 2,21$: $\lambda_{Ta2O5} = 355,68 \text{ nm}$.

Bildet man nun die Verhältnisse der Wellenlängen im Material und im Vakuum, kann ebenfalls die Verschiebung ausgerechnet:

$$\lambda_{QD} = \lambda_{0,QD} \cdot \frac{\lambda_A}{\lambda_{Ta2O5}} = 1122,39 \text{ nm}$$

$$\Rightarrow \Delta\lambda_{QD} = +22,39 \text{ nm}.$$

Die hier berechneten Verschiebungen entsprechen einer Brechungsindexänderung des Hintergrundes in z -Richtung. In der realen Kavität erfährt die Mode einen Einfluss der Veränderungen in xy -Richtung und in z -Richtung. Inwiefern und auf welche Weise sich diese Veränderungen gegenseitig beeinflussen oder überlagern ist noch nicht klar und soll im Laufe dieser Arbeit noch weiter untersucht werden. Die beiden Verschiebungen $\Delta\lambda_{QW} = +12,66 \text{ nm}$ und $\Delta\lambda_{QD} = +22,39 \text{ nm}$ können als Extremwerte angesehen werden, um bei den zukünftigen Angaben eine Orientierung zu haben.

Erklären lässt sich die Verschiebung der Modenenergie im Inneren der Microdisk bei Änderung des Brechungsindex der Umgebung mit der Anschlussbedingung an der Resonatorkante, wo die elektromagnetische Welle keinen Diskontinuität besitzen darf. Verändert sich das exponentielle Abfallen der Intensität im Außenraum, muss die Welle im Inneren also der Änderung folgen und ihre Energie verändern.

3. Probenpräparation

3.1. Die verwendeten Schichtstrukturen

In dieser Arbeit werden zwei unterschiedliche Schichtstrukturen zur Herstellung der Mikroresonatoren verwendet, die Lumineszenz in verschiedenen Bereichen aufweisen. Der Aufbau dieser Schichtsysteme ist in Abbildung 3.1 gezeigt; es stehen ein Quantenfilm- und ein Quantenpunktmaterial zur Verfügung. Beide Proben zeigen Photolumineszenz bei Raumtemperatur. Eine genauere Beschreibung der Lumineszenzeigenschaften findet sich in Kapitel 2.4. Dort finden sich außerdem in Abbildung 2.12 die Photolumineszenzspektren der beiden unstrukturierten Probenmaterialie. Beide Materialien wurden an der Ruhruniversität Bochum in der Arbeitsgruppe von Prof. Andreas Wieck epitaktisch gewachsen; die Wachstumsprotokolle finden sich im Anhang A.1.

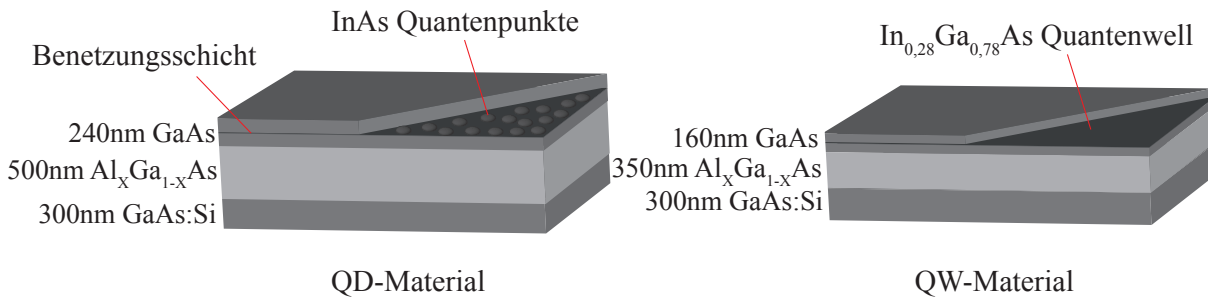


Abbildung 3.1.: Die verwendeten Schichtstrukturen: links mit einer Lage InAs Quantenpunkten, die Lumineszenz bei Raumtemperatur zwischen 1100 und 1300 nm zeigen, rechts mit einem einzelnen In_{0,28}Ga_{0,72}As Quantentopf, dessen Lumineszenz bei Raumtemperatur bei 900 bis 1000 nm liegt.

Das QD-Material ist auf einem 600 µm dicken GaAs (100) Substrat gewachsen, die erste Schicht besteht aus 300 nm Silizium dotiertem GaAs, das durch die Dotierung n-leitend ist [88] und somit als Kontakt dienen kann. Darauf liegt die 500 nm dicke Opferschicht aus Al_xGa_{1-x}As, die selektiv über dem GaAs geätzt werden kann. Der Aluminiumanteil x liegt hier entweder bei 0,33 (bei allen Mikrodisk mit Quantenpunkten) oder bei 0,70 (bei allen photonischen Kristallen).

Auf die Al_xGa_{1-x}As-Schicht folgt die 240 nm dicke GaAs-Membran, die in der Mitte eine einzelne Lage InAs Quantenpunkte enthält. Durch den hohen Indium-Anteil ist das Einschlusspotential für die Elektronen im Gegensatz zu In_xGa_{1-x}As Quantenpunkten besonders tief, wodurch die QDs auch bei Raumtemperatur noch Photolumineszenz zeigen,

während bei $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -QDs die Elektronen schon thermisch über das Einschlusspotential angeregt wären.

Die Quantenpunkte befinden sich – wie auch der Quantenfilm im anderen Probenmaterial – in der Mitte der GaAs-Membran, um bei der Photolumineszenz im späteren Resonator einen möglichst großen Überlapp mit der WGM zu haben, denn in z -Richtung befindet sich das Maximum des elektrischen Feldes in der Mitte des Resonators.

Das QW-Material ist ebenfalls auf einem $600\text{ }\mu\text{m}$ dicken (100) GaAs Substrat gewachsen. Die Silizium-dotierte Schicht ist auch 300 nm dick; darauf folgt die 350 nm $\text{Al}_{0,7}\text{Ga}_{0,3}\text{As}$ Opferschicht. Die darauf liegende Membran aus (insgesamt) 160 nm GaAs enthält in der Mitte einen 3 nm dicken Quantenfilm aus $\text{In}_{0,28}\text{Ga}_{0,72}\text{As}$. Symmetrisch dazu liegen im Abstand von 20 nm zwei 10 nm $\text{Al}_{0,33}\text{Ga}_{0,67}\text{As}$ Schichten, die den Einschluss der Elektronen im Quantenfilm verbessern.

3.2. Herstellung der Mikrodisk

Die Mikrodisk, die in Flüssigkristalle eingebettet und im äußeren elektrischen Feld gemessen werden (Kapitel 5.4.1), werden aus dem QD-Material mit optischer Lithografie hergestellt. Die restlichen Mikrodisk werden alle aus dem QW-Material mittels Elektronenstrahlithografie strukturiert. Zuerst soll hier die optische Lithografie beschrieben werden.

Optische Lithografie der Mikrodisk

Die Schattenmaske für die Mikrodisk wurde bereits in [40] hergestellt. Hier sei nur darauf hingewiesen, dass die runden Strukturen auf der Schattenmaske, die später die MDs definieren werden, einen Durchmesser von $6,5$ bis $7\text{ }\mu\text{m}$ haben.

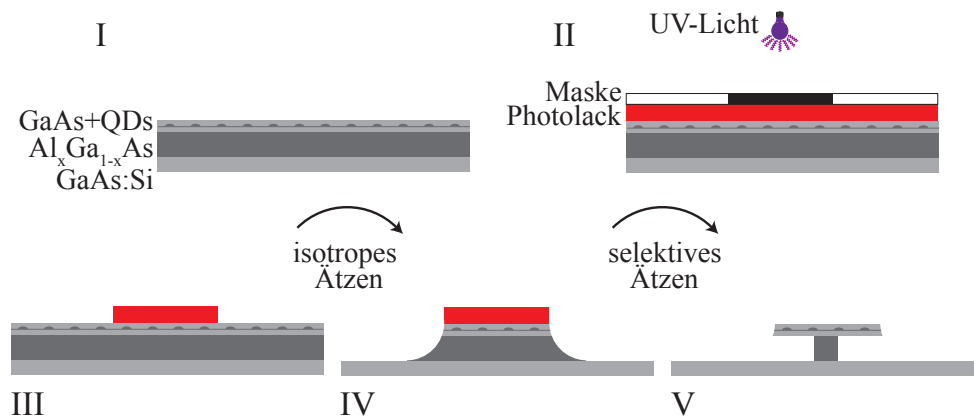


Abbildung 3.2.: Optische Lithografie von Mikrodisk, Originalabbildung aus [40], Beschreibung der Schritte im Text.

Der Prozess der optischen Lithografie ist in Abbildung 3.2 gezeigt. Es wird ein etwa $4 \times 4 \text{ mm}^2$ großes Stück des QD-Probenmaterials mit einem Diamantschneider abgetrennt. Auf das unstrukturierte, gereinigte Probenmaterial wird der UV empfindliche Positivlack aufgeschleudert und anschließend auf der Heizplatte getrocknet, die nominelle Schichtdicke des Lacks ist etwa $1,8 \mu\text{m}$. Im *mask aligner* wird die Schattenmaske über der Probe ausgerichtet und der Lack wird an den Stellen mit UV-Licht belichtet, an denen später das Material weggeätzt werden soll. [Schritt (I)>(II)]

In einem üblicherweise basischen Entwickler wird der Lack entwickelt, die belichteten Stellen lösen sich dabei, so dass nur die die Mikrodisks formenden Kreise bestehen bleiben [Schritt(II)>(III)]. Mit einer isotropen, nasschemischen Ätze wird das GaAs bis in die $\text{Al}_{0,33}\text{Ga}_{0,67}\text{As}$ Schicht geätzt [Schritt (III)>(IV)]. Durch den isotropen Charakter entsteht beim Ätzen ein Kugelprofil, so dass die Kanten der GaAs-Membran später nahezu senkrecht sind, was für die totale interne Reflexion im Inneren des Resonators nötig ist. Die verwendete Ätze ist eine Bromsäure basierte Lösung [89], die hier verwendete Verdünnung und die Charakterisierung des Ätzprozesses findet sich z.B. in [40].

Da nun die Kreise für die Mikrodisks schon geformt sind, kann der Lack entfernt werden. Im letzten Schritt wird mit einer Jod-basierten, selektiven, nasschemischen Ätze [90] die Opferschicht entfernt [Schritt (IV)>(V)]. Da die GaAs-Membran nicht angegriffen wird, wird sie hierbei unterätzt und bleibt als freistehende Membran zurück, wenn man den Ätzprozess rechtzeitig stoppt, so dass nur ein schmaler Post aus $\text{Al}_{0,33}\text{Ga}_{0,67}\text{As}$ in der Mitte verbleibt. Eine so prozessierte Mikrodisk ist in Abbildung 3.3 links gezeigt. Die elektronenmikroskopische Aufnahme wurde unter einem Kippwinkel von 85° aufgenommen.

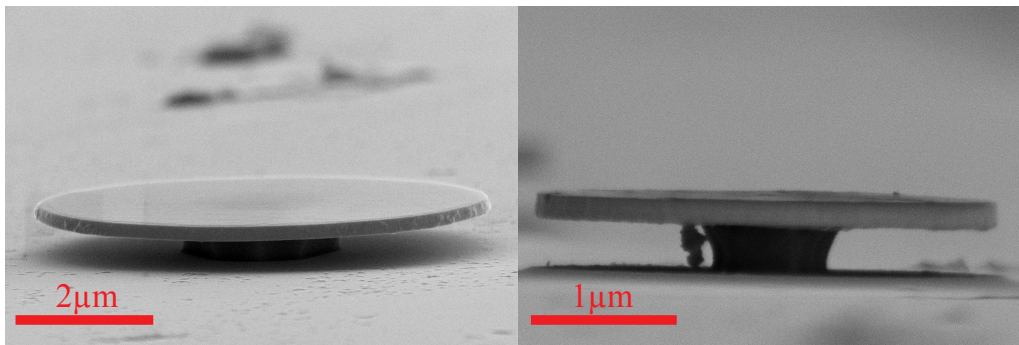


Abbildung 3.3.: Elektronenmikroskopische Aufnahmen von: (links) einer mit optischer Lithografie hergestellten Mikrodisk mit einem Durchmesser von $6,5 \mu\text{m}$, aufgenommen verkippt um 85° , und (rechts) einer mit Elektronenstrahlolithografie hergestellten Mikrodisk mit $d = 2,7 \mu\text{m}$., aufgenommen unter 90° Verkipfung.

Elektronenstrahlolithografie der Mikrodisk

Im Verlaufe dieser Arbeit wurde es nötig, auch kleinere Mikrodisk herzustellen. Da kleinere Strukturen leichter mit Elektronenstrahlolithografie herzustellen sind, und man durch den Verzicht auf eine Schattenmaske flexibler ist, wurden die Mikrodisk mit Durchmessern $d < 6 \mu\text{m}$ alle mit dem zur Verfügung stehenden REM der Firma *FEI* lithografiert. Die genauen Prozessparameter finden sich ebenfalls in Anhang A.2.

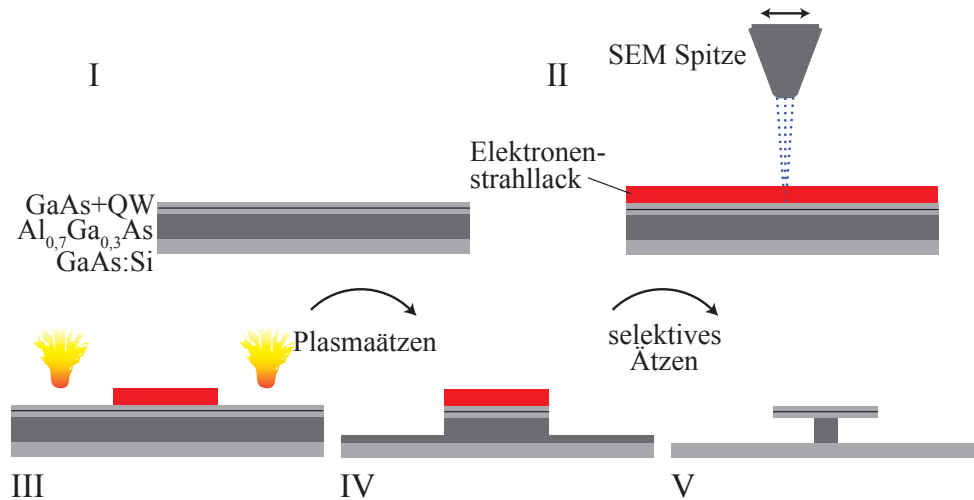


Abbildung 3.4.: Schritte der Elektronenstrahlolithografie der Mikrodiskproben mit Durchmessern $d < 6 \mu\text{m}$. Beschreibung im Text.

Die Schritte der Probenstrukturierung sind in Abbildung 3.4 gezeigt. Als erstes wird das Quantenfilmmaterial mit einem Diamantschneider in etwa $3 \times 3 \text{ mm}^2$ große Stücke gebrochen und gereinigt. Auf der Probe wird anschließend der Negativ-Elektronenstrahllack aufgeschleudert und auf der Heizplatte getrocknet [Schritt (I)>(II)]. Im Elektronenmikroskop wird der Lack an den Stellen mit Elektronen belichtet, die später *nicht* entwickelt werden sollen; die Verwendung eines Negativlacks ist hier sinnvoll, da so die Schreibzeiten stark reduziert werden [Schritt (II)].

Nach dem Entwickeln des Lacks [Schritt (II)>(III)] bleiben nur die belichteten Kreise stehen, die die Form der Mikrodisk definieren. In einer Anlage zum Plasmaätzen (*Plasmalab 100* der Firma *Oxford Instruments*) wird die Probe nun geätzt (Schritt (III)>(IV)]. Bei dem (nahezu) vollkommen anisotropen Ätzprozess werden das GaAs und die darunter liegende Opferschicht in gleichem Maße geätzt. Die Parameter des Ätzrezeptes finden sich in Anhang A.2; es entsteht eine annähernd senkrechte Ätzkante, was für die Resonatoreigenschaften von Vorteil ist.

Nach diesem Schritt sind die Mikrodisk bereits vorgeformt und der Lack kann entfernt werden. Da das hier verwendete QW-Material in der Opferschicht 70 % Aluminium-Anteil auf dem Gruppe-III Platz hat, kann diese selektiv über dem GaAs am besten

mit verdünnter Flusssäure ¹ geätzt werden [91, 92]. Dies wird im letzten Schritt (V) genutzt, um die Mikrodisk zu unterätzen und wiederum eine freistehende Membran mit einem schmalen Post zu bilden, der Ätzprozess wird durch das Tauchen der Probe in Reinstwasser gestoppt. Eine elektronenmikroskopische Aufnahme einer so hergestellten Mikrodisk ist in Abbildung 3.3 rechts gezeigt. Der Kippwinkel bei der Aufnahme ist 90°, gut zu erkennen ist dadurch die nahezu senkrechte Kante der Membran, die beim Plasmaätzprozess entsteht.

3.3. Herstellung photonischer Kristalle

Die hier verwendeten photonischen Kristalle sind alle aus dem Quantenpunktmaterial hergestellt, das auf dem Gruppe-III Platz einen Aluminium-Anteil von 70 % hat. Wegen der extrem kleinen Abmessungen der Strukturen ist hier die Lithografie mit dem Elektronenstrahl unerlässlich. Die Lithografie verläuft ähnlich der Elektronenstrahllithografie der Mikrodisk im letzten Abschnitt, muss aber noch erweitert werden.

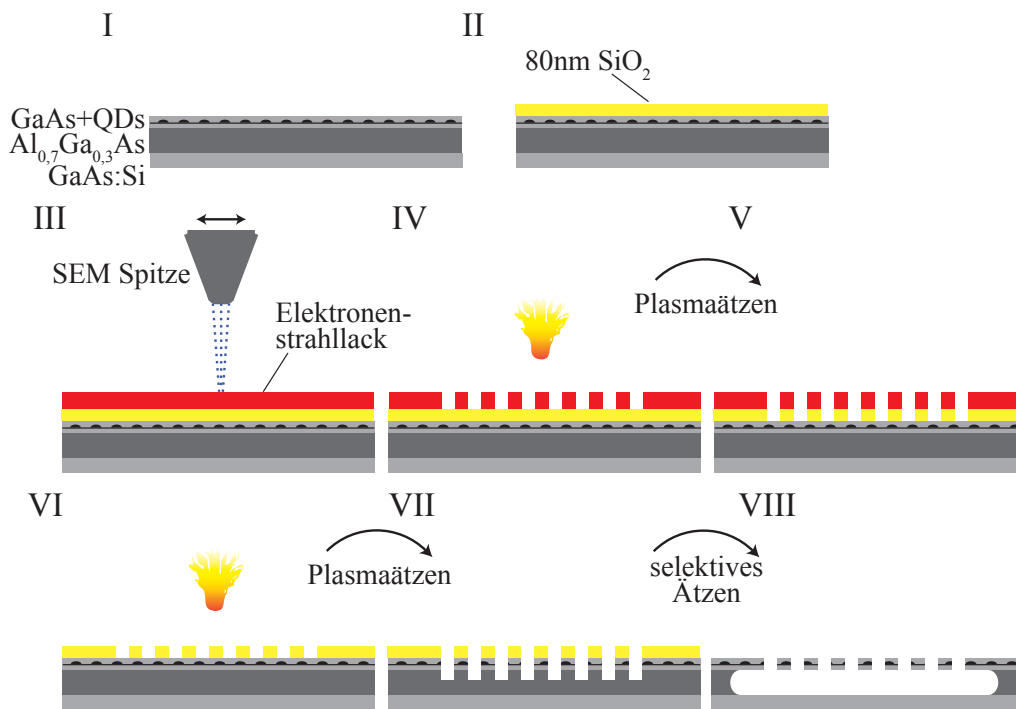


Abbildung 3.5.: Schritte der Elektronenstrahllithografie bei der Herstellung der photonischen Kristalle. Beschreibung im Text.

Die Strukturierung der photonischen Kristalle ist in Abbildung 3.5 gezeigt: Auch hier wird das Substrat in etwa 3×3 mm große Probenstücke zerteilt und anschließend gerei-

¹HF 45 %ig 1:5 verdünnt mit Reinstwasser

3. Probenpräparation

nigt. Im Anschluss wird mittels plasmaunterstützter chemischer Gasphasenabscheidung (PECVD) eine 80 nm dicke Schicht SiO_2 aufgebracht, die beim späteren Plasmaätzen der GaAs-Membran als Hartmaske dienen soll [Schritt (I)>(II)]. Auf das SiO_2 wird der Positiv-Elektronenstrahllack ZEP 520a aufgeschleudert, der eine besonders hohe Auflösung zulässt und besonders für Plasmaätzprozesse geeignet ist [Schritt (II)>(III)].

Im Elektronenmikroskop der Firma *Zeiss* werden die Bereiche des Lacks belichtet, die beim Entwickeln gelöst werden sollen, das sind im Fall der photonischen Kristalle die Löcher [Schritt(III)]. Nach dem Entwickeln des Lacks [Schritt (III)>(IV)] wird die Probe in die bereits beschriebene Plasmaanlage der Firma *Oxford Instruments* eingebracht. Hier werden die Löcher im Lack in die Schicht SiO_2 übertragen [Schritt (IV)>(V)], der Prozess zum Ätzen des SiO_2 ist besonders schonend und nahezu vollständig anisotrop. Danach wird der Lack entfernt [Schritt (V)>(VI)] und es verbleiben die definierten Löcher im SiO_2 .

Die Probe wird wiederum in die Plasmaanlage einbracht und im zweiten Ätzschritt (VI)>(VII) werden die Löcher diesmal in das GaAs bis in die $\text{Al}_{0,7}\text{Ga}_{0,3}\text{As}$ -Schicht übertragen, wobei der Ätzprozess auch hier eine senkrechte Ätzkante hinterlässt. Im letzten Schritt (VII)>(VIII) wird mit verdünnter Flusssäure (s.o.) sowohl die Hartmaske aus SiO_2 entfernt, als auch die $\text{Al}_{0,7}\text{Ga}_{0,3}\text{As}$ -Opferschicht soweit geätzt, dass die Membran des photonischen Kristalls vollständig unterätzt ist und nur noch lateral gehalten wird.

Korrektur des Proximity-Effektes

Wie bereits bei den Grundlagen zu den photonischen Kristallen in Kapitel 2.3 beschrieben, ist es – um hohe Gütefaktoren in den Defektresonatoren zu erreichen – nötig, eine Korrektur des Proximityeffektes während der Elektronenstrahllithografie vorzunehmen.

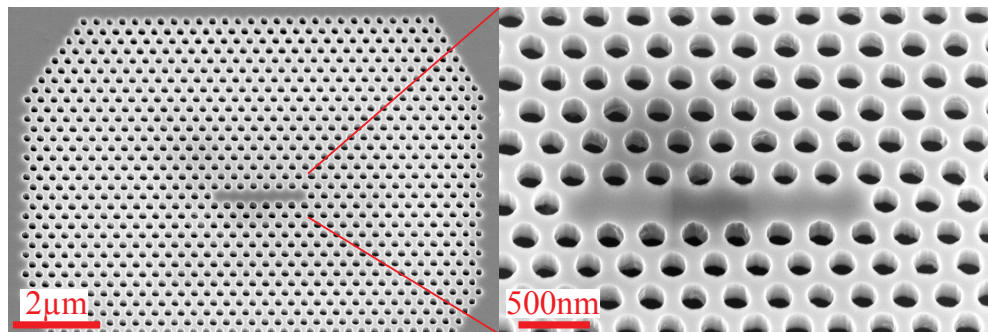


Abbildung 3.6.: Elektronenmikroskopische Aufnahme eines hexagonalen photonischen Kristalls mit einem L7 Defektresonator. Beide Messungen wurden unter einem Kippwinkel von 30° aufgenommen. Die Gitterkonstante beträgt $a = 300 \text{ nm}$, der Radius $r/a = 0,3$.

Die hier hergestellten photonischen Kristalle haben alle eine hexagonale Symmetrie, den Defektresonator im Inneren umgeben zusätzlich mindestens acht Perioden der Ein-

heitszelle. Um die schwächere Belichtung der Löcher am Rand des PCs auszugleichen, wird die Elektronendosis der äußersten Reihe Löcher um den Faktor 1,05 erhöht, die darauf folgenden zwei Reihen um den Faktor 1,03. Die Dosis der Löcher, die den Resonator direkt umgeben – denen also ein direkter Nachbar fehlt –, wird außerdem mit dem Faktor 1,025 multipliziert.

Durch diese Maßnahmen wird der Proximityeffekt ausgeglichen und die Variation der Lochradien ist nicht mehr messbar. Einen auf diese Weise hergestellten photonischen Kristall mit einem L7-Defekt zeigen die elektronenmikroskopischen Aufnahmen in Abbildung 3.6, sie sind unter einem Kippwinkel von 30° aufgenommen, so dass man die Unterätzung der Membran erkennen kann. Der gezeigte PC hat eine Gitterkonstante von $a = 300\text{ nm}$. Der Radius der Löcher beträgt $r = 90\text{ nm}$, so dass sich $r/a = 0,3$ ergibt, der richtige Wert für eine photonische Bandlücke für TE-Moden (vergl. Abb. 2.7 in Kapitel 2.3).

4. Photolumineszenz-Spektroskopie

Die spektroskopischen Untersuchungen der Proben wird an einem konfokalen Mikro-Photolumineszenz (PL) Messplatz durchgeführt. Der prinzipielle Aufbau ist in Abbildung 4.1 gezeigt.

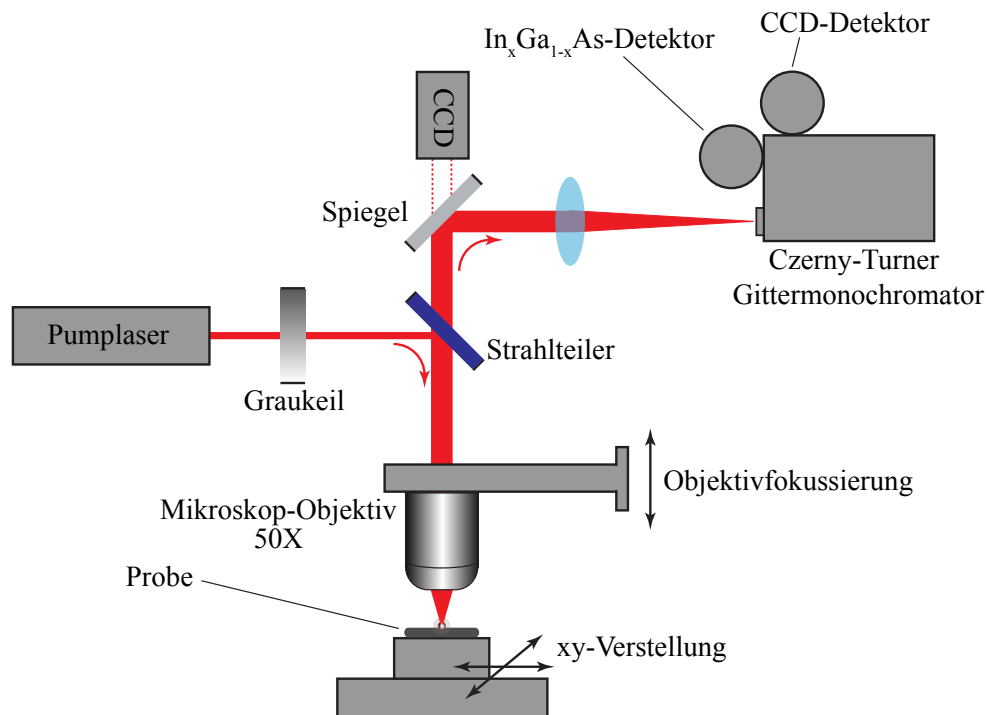


Abbildung 4.1.: Prinzipieller Aufbau und Strahlengang des Mikro-Photolumineszenz-Messplatzes, Erklärungen im Text.

Anregungsquellen

Als Anregungsquellen stehen ein kontinuierlicher (cw), durchstimmbarer Titan-Saphir-Laser und eine gepulste Picosekunden Halbleiterlaserdiode zur Verfügung. Beide Laserquellen werden bei der Anregungswellenlänge von 780 nm betrieben. Der Ti:Saphir-Laser wird optisch von einem Neodym-Vanadat-Laser gepumpt, seine maximale cw-Leistung liegt bei 780 nm bei 1 W. Die gepulste Laserdiode kann in einem Frequenzbereich von 5 bis 80 MHz betrieben werden, die Pulslänge beträgt minimal 63 ps. Die maximale Leistung der Diode beträgt 10 mW bei 80 MHz und 0,74 mW bei 5 MHz. Die gepulste

Diode wird hauptsächlich bei den Messungen verwendet, bei denen es leicht zu einer Erwärmung der Probe kommt – also bei besonders hohen Anregungsleistungen. Durch die gepulste Anregung wird die Hitzeinkopplung beim Pumpen auf ein Minimum reduziert. Im PL-Aufbau kann die Laserleistung außerdem mit einem Graukeil weiter abgedunkelt werden.

Strahlenverlauf

Das Laserlicht des Pumplasers fällt unter 45° auf einen Strahlteiler¹, der im Bereich von 780 nm nahezu 100 % reflektiert, wodurch der Laserstrahl in das Mikroskopobjektiv ($50\times$, $NA = 0,42$) geleitet wird. Dieses fokussiert das Pumplicht auf die Probenoberfläche. Die Probe liegt dabei auf einem Verstelltisch, der in xy -Richtung in Schritten von minimal 50 nm bewegt werden kann. Regt der Pumplaser die Probe zu Photolumineszenz an, wird das Lumineszenzlicht wiederum vom Objektiv eingefangen und parallelisiert.

Das Lumineszenzlicht und das von der Probenoberfläche teilweise reflektierte Pumplaserlicht treffen oberhalb des Objektivs auf den Strahlteiler, welcher das Laserlicht wieder reflektiert. Da der Strahlteiler oberhalb einer Wellenlänge von 800 nm nahezu 100 % transmittiert, wird das Lumineszenzlicht in den Ausgangsstrahlengang durchgelassen. Dort befindet sich ein klappbarer Spiegel, der das von der Probe kommende Licht in eine CCD-Kamera lenken kann, mit deren Hilfe man sich auf der Probe orientiert.

Messmethode

Im Messmodus leitet der klappbare Spiegel das Lumineszenzlicht zum Spektrometer, dazu fällt es durch eine Linse ($f_{Linse} = 30\text{ mm}$), die den Strahl auf den Einkoppelspalt ($d_{Spalt} = 200\text{ }\mu\text{m}$) des Spektrometers fokussiert. Das abbildende Spektrometer ist ein Czerny-Turner Spektrometer der Firma *Acton Research* mit einer Brennweite von 500 mm. Zur Monochromatisierung stehen für den hier interessanten Wellenlängenbereich zwei Gitter zur Verfügung. Das Gitter mit 150 Strichen pro mm wird wegen der geringen Auflösung nur zur Fokussierung benutzt. Das Gitter mit 1200 Strichen pro mm hat eine höhere Auflösung von etwa $1\text{ }\text{\AA}$ und wird für alle Messungen benutzt.

Zum Nachweis der Strahlung stehen zwei unterschiedliche Detektoren zur Verfügung. Für einen Wellenlängenbereich bis maximal etwa 1000 nm kann ein durch mehrere hintereinander geschaltete Peltier-Elemente gekühlter ($T = -75^\circ\text{C}$) CCD-Detektor benutzt werden. Er besteht aus einem Feld von 256×1024 Pixeln. Für Wellenlängen über 1000 nm existiert ein *InGaAs*-Detektor mit einer Reihe von 512 Photodioden, der ebenfalls Peltier-gekühlt ist ($T = -70^\circ\text{C}$).

¹Ein Transmissionsspektrum des Strahlteilers findet sich in Anhang A.3.

Temperaturabhängige Messungen

Für alle temperaturabhängigen Messungen wird ein Mikroskop-Kryostat verwendet, der auf einer xy -Verstellung einen Kühl-/Heizfinger besitzt, dessen Temperatur mit einem Temperaturregler auf 0,01 K genau ausgelesen und – im Falle des Heizens – geregelt werden kann. Für Messungen bei tiefen Temperaturen kann der Kryostat mit einem Pumpstand abgepumpt werden, das dabei erreichbare Hochvakuum liegt im Bereich 10^{-6} mbar. Anschließend wird der Kühlfinger mit flüssigem Stickstoff oder Helium durchspült, womit eine Temperatur auf der Probe von minimal 6 K erreicht wurde.

Die xy -Verstellung im Mikroskop-Kryostaten ist stromgeregelt und besitzt eine minimale Schrittweite von etwa 150 nm. Da der Kryostat bei Tieftemperaturmessungen abgepumpt werden muss, wird die Probe in diesem Fall durch ein Quarzglasfenster gemessen, welches den Kryostaten verschließt.

5. Kopplung photonischer Resonatoren mit Flüssigkristallen

5.1. Grundlagen und Eigenschaften von Flüssigkristallen

Wie bereits im Kapitel 2.3 über die photonischen Kristalle beschrieben, ist die fundamentale Eigenschaft von Kristallen, dass sich seine Grundbausteine in geordneter Weise wiederholen. Dies gilt auch für molekulare Festkörper. Haben die Moleküle eine Formanisotropie, richten sie sich außerdem bevorzugt in einer Richtung aus, was Orientierungsfernordnung genannt wird.

Erhöht man die Temperatur, durchläuft der Kristall einen Phasenübergang und geht am Schmelzpunkt in eine isotrope Flüssigkeit über. Dies wird durch das Übergangsschema

$$\text{fest kristallin} \leftrightarrow \text{flüssig isotrop}$$

beschrieben. Der Schmelzpunkt ist ein Phasenübergang erster Ordnung und normalerweise reversibel, die kristalline Ordnung wird also beim Abkühlen unter den Schmelzpunkt wieder hergestellt. Beim Phasenübergang in die isotrope flüssige Phase geht jede Ordnung verloren, denn die Flüssigkeit besitzt weder Positions- noch Orientierungsfernordnung; dafür können sich die Moleküle in der Flüssigkeit – im Gegensatz zu denen im Kristall – in allen Raumrichtungen frei bewegen.

Die Substanzen, die man als Flüssigkristalle (LC) bezeichnet, zeigen zwischen der festen und der flüssig-isotropen Phase noch eine oder mehrere andere, sogenannte Mesophasen. Bei einem thermotropen Flüssigkristall hängt die Existenz dieser Mesophasen von der Temperatur ab. Wie der Name erahnen lässt, haben die flüssigkristallinen Phasen sowohl Eigenschaften gemein mit der flüssig-isotropen als auch mit der fest-kristallinen Phase: Die Moleküle zeigen eine Orientierungsfernordnung und eine begrenzte eindimensionale Positionsfernordnung wie in einem Kristall. Im Gegensatz dazu haben Flüssigkristalle aber auch inter- und intramolekulare Mobilität wie in einer isotropen Flüssigkeit. Da die Ordnung im Flüssigkristall der im Festkörper ähnelt, zeigen Flüssigkristalle ähnliche optische Eigenschaften.

Flüssigkristalle bestehen immer aus formanisotropen Molekülen, die je nach Form und Ausrichtungseigenschaften verschiedene Phasenübergänge durchlaufen können – die unterschiedlichen Mesophasen werden im Folgenden noch weiter erläutert. Zuerst sollen hier aber noch die Phasenübergänge näher betrachtet werden. Beispielhaft ist in Abbildung 5.1 ein Phasendiagramm für einen Flüssigkristall gezeigt. Der untersuchte Flüssigkristall kann zwei Mesophasen ausbilden – eine smektische und eine nematische Phase. Eine Besonderheit ist außerdem, dass sich mehrere Tripelpunkte definieren lassen.

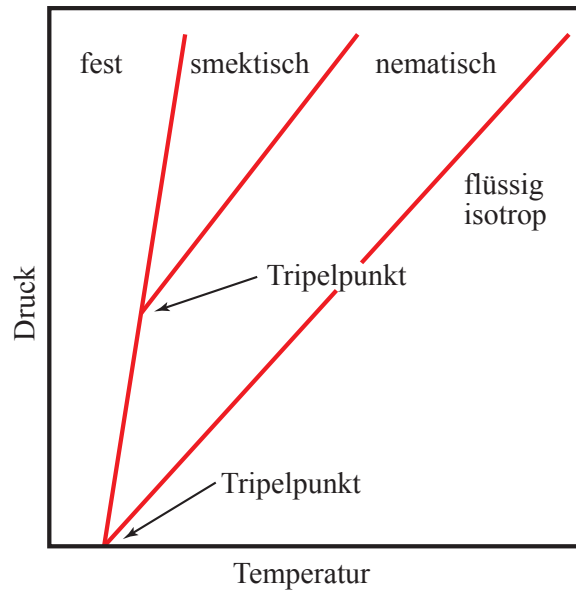


Abbildung 5.1.: Beispiel eines Phasendiagramms eines Flüssigkristalls, der eine smektische und eine nematische Phase ausbilden kann.

Experimentelle Daten zeigen, dass es sich bei den Übergängen kristallin \rightarrow flüssigkristallin, nematisch \rightarrow flüssig-isotrop und smektisch \rightarrow flüssig-isotrop um Phasenübergänge erster Ordnung handelt.[93] Der Phasenübergang von der flüssigkristallinen in die flüssig-isotrope Phase wird auch als Klärpunkt bei der Klärtemperatur T_C bezeichnet. Die Übergänge zwischen den verschiedenen flüssigkristallinen Phasen untereinander lassen sich schwieriger klassifizieren, die Ordnung des Übergangs kann eins oder zwei sein und hängt z.B. auch von Temperatur und Druck ab. Teilweise lassen sich die Mesophasen zudem nur schwer untereinander abgrenzen. Weitere Ausführungen zu den Phasenübergängen finden sich z.B. in [93].

5.1.1. Die flüssigkristallinen Phasen

Wie bereits erwähnt, gibt es verschieden Mesophasen, die ein Flüssigkristall ausbilden kann; die Struktur dieser Phasen hängt stark vom Aufbau der Moleküle ab. Es gibt unter anderem folgende thermotrope flüssigkristalline Phasenstrukturen:

nematisch Die nematische Struktur ähnelt am meisten der flüssig-isotropen, wobei aber ein oder zwei Molekülachsen parallel orientiert sind, so dass sich eine Orientierungsfernordnung einstellt. Sie besitzt keinerlei Positionsfernordnung. Eine Variante, die von Flüssigkristallen aus chiralen Molekülen gebildet wird, ist die cholesterische Struktur. In ihr richten sich die Moleküle nematisch aus, bilden dabei aber eine

sich kontinuierlich drehende Vorzugsrichtung. Dies führt zu einer langreichweitigen helikalen Struktur.

smektisch In den unterschiedlichen smektischen Strukturen bilden sich Schichten mit ein- oder zweidimensionaler Periodizität aus. Es kommt zu einer Orientierungsfernordnung und einer mehr oder weniger ausgebildeten Positionsfernordnung.

kubisch Die kubische Struktur besteht aus höheren Ordnungszuständen von mizellaren Gitter-Einheitszellen oder komplizierteren verwobenen Netzwerken.

kolumnar Hier werden Säulen aus den parallel ausgerichteten, scheibenförmigen Molekülen gebildet.

5.1.2. Die Eigenschaften der nematischen Phase

Für diese Arbeit interessant ist nur ein calamitischer (stäbchenförmiger) Flüssigkristall in seiner nematischen Phase, wie er in Abbildung 5.2 gezeigt ist. Dieses Kapitel soll sich deshalb tiefer mit seinen Eigenschaften beschäftigen.

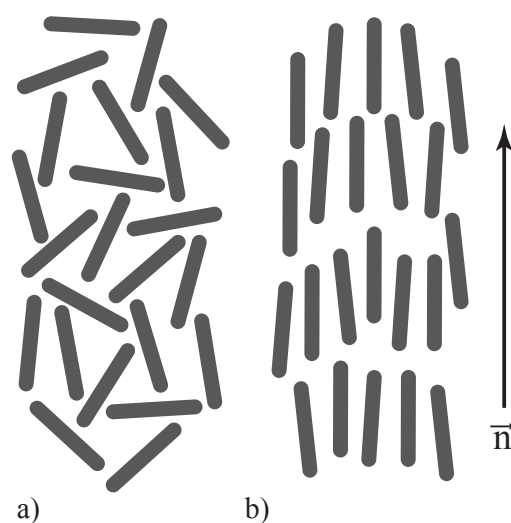


Abbildung 5.2.: **a)** Struktur einer isotropen Flüssigkeit und **b)** eines calamitischen Flüssigkristalls in der nematischen Phase.

Die Moleküle haben in der nematischen Struktur volle Rotationsfreiheit um die lange Molekülachse. Obwohl die Benzolringe selber eine flache Struktur haben, führt die Rotationsfreiheit zu einer effektiven Zylinderform, in einfachen Modellen kann das Molekül sogar mit einer Stäbchenform angenähert werden, wie es in Abbildung 5.2 gezeigt ist. Hier kann man erkennen, dass sich im Gegensatz zur isotropen Phase die lange Achse

der Moleküle im Mittel parallel ist, während sich die Moleküle aber frei entlang dieser Achse bewegen können. Sie können sich außerdem frei entlang der kurzen und auch der langen Achse drehen.

Wegen dieser hohen Beweglichkeit hat die nematische Phase eine geringe Viskosität, vergleichbar mit denen in einer isotropen Flüssigkeit. Wohingegen der Flüssigkristall im Gegensatz zu dieser wegen der Parallelität der Längsachsen einige physikalische Anisotropien zeigt, so z.B. bezüglich der optischen Eigenschaften (Doppelbrechung), der elektrischen und magnetischen Suszeptibilität und Leitfähigkeit und der Viskosität.

Da die Moleküle sich frei bewegen können, sind sie nicht exakt parallel, sie können sogar stark davon abweichen. Der Ordnungsparameter S beschreibt die Parallelität der Moleküle in der nematischen Phase:

$$S = \frac{1}{2} \langle 3 \cos^2 \beta - 1 \rangle. \quad (5.1)$$

Der kalamitische Flüssigkristall bildet in der nematischen Phase entlang der langen Molekülachse eine Vorzugsrichtung aus; das Mittel der Längsachsen nennt man den Direktor \vec{n} , wie er auch in Abbildung 5.2 gezeigt ist. Der Winkel zwischen der Moleküllängsachse und dem Direktor n wird mit β bezeichnet. Der Ordnungsparameter S kann Werte zwischen 0 und 1 annehmen, wobei in einer isotropen Flüssigkeit $S = 0$ und bei exakter Parallelität $S = 1$ ist.

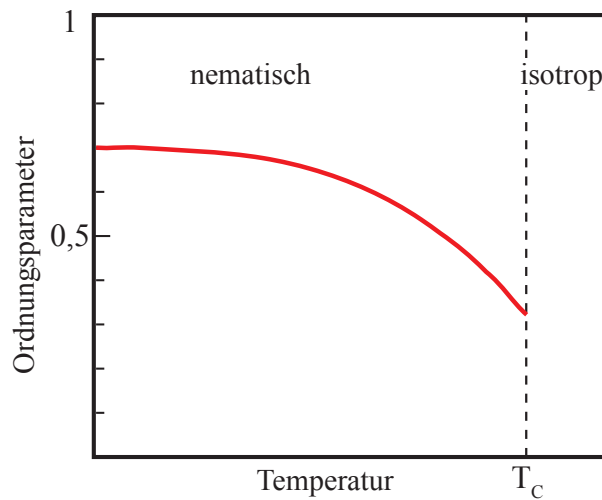


Abbildung 5.3.: Typischer Temperaturverlauf des Ordnungsparameters S eines nematischen Flüssigkristalls.

In Abbildung 5.3 ist der typische Temperaturverlauf des Ordnungsparameters S eines nematischen Flüssigkristalls gezeigt. Bei niedrigen Temperaturen hat er üblicherweise

einen Wert von 0,6 bis zu 0,7 und fällt mit steigender Temperatur bis zu einem Wert von etwa 0,3 in der Nähe des Klärpunktes T_C . [93]

5.1.3. Die Doppelbrechung im nematischen Flüssigkristall

Die Doppelbrechung im nematischen Flüssigkristall ist für diese Arbeit essentiell und soll deshalb hier ein eigenes Kapitel erhalten. Sie wird hervorgerufen durch die Parallelität der anisotropen Moleküle. Der Flüssigkristall ist im optischen Sinne uniaxial mit positivem Charakter, wobei der Direktor \vec{n} identisch mit der optischen Achse ist.

In einer optisch uniaxialen Struktur gibt es zwei Brechungsindizes; der Index des ordentlichen Strahles wird mit n_o und der des außerordentlichen Strahls mit n_e bezeichnet. Die optischen Eigenschaften eines doppelbrechenden Materials lassen sich in einem Brechzahl-Ellipsoiden (auch: Indikatrix) darstellen, im vorliegenden Fall eines uniaxialen Materials wird dieser zu einem Rotationsellipsoiden, wie er in Abbildung 5.4 für ein optisch positives Medium ($n_e - n_o > 0$) dargestellt ist.

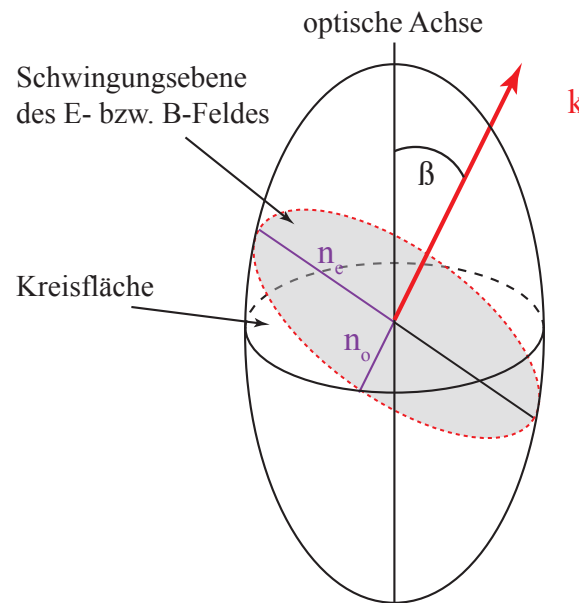


Abbildung 5.4.: Brechzahl-Ellipsoid eines optisch positiven doppelbrechenden Materials.

Die Rotationsachse der Indikatrix ist identisch mit der optischen Achse. Passiert eine elektromagnetische Welle den Kristall in irgendeiner Richtung (Ausbreitungsrichtung \vec{k}), so entsprechen die Brechungsindizes und die Schwingungsebenen der ordentlichen und der außerordentlichen Welle den Halbachsen der Ellipsenfläche um den Mittelpunkt der Indikatrix, die in Abbildung 5.4 grau unterlegt ist. Der \vec{k} -Vektor steht senkrecht auf

dieser Ellipsenfläche. In uniaxialen Materialien bleibt die Halbachse, die zu der ordentlichen Welle gehört, immer konstant und mit ihr der ordentliche Brechungsindex n_o . Der andere Brechungsindex n_e hat ein Extremum, wenn der Lichteinfall senkrecht zur optischen Achse verläuft. Bei einem optisch positiven Material wie unserem nematischen Flüssigkristall wird dieser Extremwert zu einem Minimum, und es wird $n_e = n_o$.

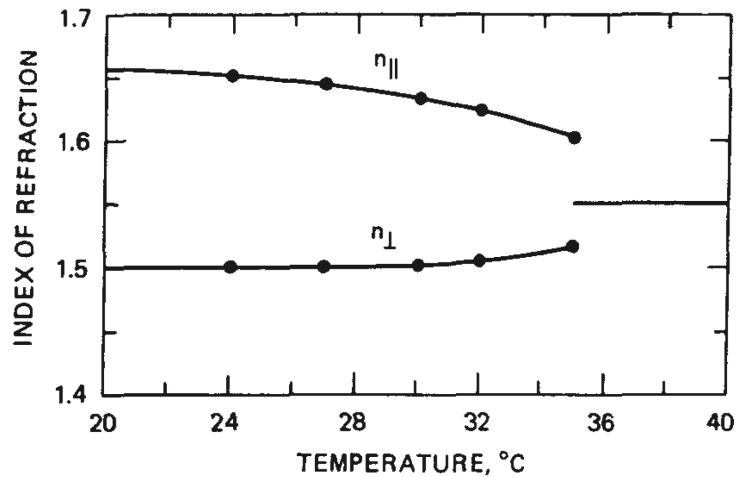


Abbildung 5.5.: Temperaturverlauf der Brechungsindizes $n_e = n_{\parallel}$ und $n_o = n_{\perp}$ des nematischen Flüssigkristalles 5CB bei $\lambda = 4,45 \mu\text{m}$ [94]

In Abbildung 5.5 ist der charakteristische Temperaturverlauf der Brechungsindizes des Flüssigkristalls 4-Cyano-4'-pentylbiphenyl (auch: 5CB), der in dieser Arbeit verwendet wird, in der nematischen Phase bis zum Klärpunkt gezeigt. Oberhalb des Klärpunktes verläuft der intrinsische Brechungsindex n_i annähernd konstant. Der außerordentliche Brechungsindex $n_e = n_{\parallel}$ ist größer als der ordentliche $n_o = n_{\perp}$, was einem positiv doppelbrechenden Material entspricht. Die Doppelbrechung nimmt mit steigender Temperatur ab, bis sie am Klärpunkt sprunghaft verschwindet. Diese Diskontinuität am Phasenübergang nematisch \leftrightarrow flüssig-isotrop, und die Tatsache, dass die Doppelbrechung bei T_C endlich ist, zeigen, dass es sich um einen Phasenübergang erster Ordnung handelt.

Für die Bestimmung der Brechungsindizes im Rotationsellipsoiden wurde angenommen, dass die Moleküle im Flüssigkristall vollkommen parallel ausgerichtet sind, was in der Realität wohl kaum der Fall sein wird. Das heißt, dass die so bestimmten Werte von n_o und n_e als Extremwerte anzunehmen sind. Das andere Extrem wäre in der nematischen Phase, dass die Moleküle vollkommen ungeordnet und ohne Vorzugsrichtung vorliegen. Dann wird auf eine einfallende Welle nur noch ein aus n_o und n_e gemittelter

Brechungsindex \bar{n} wirken. Dieser mittlere Brechungsindex

$$\bar{n} = \sqrt{\frac{1}{3}(n_e^2 + 2n_o^2)} \quad (5.2)$$

entspricht im Allgemeinen nicht n_i und ist nur leicht temperaturabhängig. Zwischen diesen Extrema $S = 1$ (vollkommen parallele Moleküle) und $S = 0$ (keine Vorzugsrichtung) lassen sich die Brechungsindizes nicht einfach bestimmen und können nur interpoliert werden.

5.1.4. Elastische Eigenschaften nematischer Flüssigkristalle

Nimmt man an, dass die elastischen Kräfte in einem Flüssigkristall klein sind im Vergleich zu den intermolekularen Kräften, und dass die elastischen Dimensionen groß sind im Vergleich zu der molekularen Dimension, so kann der Flüssigkristall als Kontinuum behandelt werden. Die Elastizität des Flüssigkristalls hängt zusammen mit lokalen Variationen der Richtung des Direktors. Elastische Drehmomente versuchen eine Deformation auszugleichen, so dass es zu elastischen Rückstellkräften analog zu einem festem Kristall.

Der nematische Flüssigkristall befindet sich im Grundzustand der freien Energie, wenn die Moleküle parallel ausgerichtet sind. Durch externe Kräfte, die an Grenzflächen auftreten, oder elektrische und magnetische Felder kann der Flüssigkristall verformt werden und die freie Energie nimmt zu. Es gibt drei Grundtypen von elastischen Deformationen im nematischen Flüssigkristall: Spreizung, Drehung und Biegung. Ordnet man diesen drei Deformationen jeweils eine elastische Konstante zu (k_{11} Spreizung, k_{22} Drehung und k_{33} Biegung), kann man die Zunahme der freien Energie berechnen über

$$E_F = \frac{1}{2} \left[k_{11}(\vec{\nabla} \vec{n})^2 + k_{22}(\vec{n} \vec{\nabla} \times \vec{n})^2 + k_{33}(\vec{n} \times \vec{\nabla} \times \vec{n})^2 \right]. \quad (5.3)$$

Die elastischen Konstanten haben die Einheit Energie pro Länge. Die Energie der molekularen Wechselwirkung beträgt etwa 10 kJ mol^{-1} und die Moleküle sind etwa 2 nm in ihrer längsten Ausdehnung, so dass die elastischen Konstanten in der Größenordnung von 10^{-11} N liegen, was in guter Übereinstimmung mit dem Experiment liegt. [93] Die Deformationsenergien sind also im Flüssigkristall um Größenordnungen kleiner als die im Festkörper, sie sind sogar kleiner als die mittlere thermische Energie $\frac{3}{2}k_B T \approx 2,5 \text{ meV}$, weshalb der Flüssigkristall schon durch kleinste äußere Kräfte deformiert werden kann.

Eine wichtige Rolle in dünnen Schichten aus nematischen Flüssigkristallen (bis zu $100 \mu\text{m}$) spielen elastische Kräfte an den Grenzflächen. An der Oberfläche eines Substrates richten sich die Moleküle einheitlich aus und die Orientierung kann bis in das Volumen fortgesetzt werden. Die Orientierung an der Oberfläche kann entweder homotrop (\vec{n} senkrecht zur Oberfläche), planar (\vec{n} parallel zur Oberfläche) oder geneigt sein. Im Volumen kann sich die Orientierung der Moleküle von diesen drei Grundorientierungen ausgehend kontinuierlich ändern.

Deformation durch elektrische Felder

Ein Flüssigkristall kann eine positive dielektrische Anisotropie ($\Delta\epsilon > 0$) besitzen, dann richtet sich der Direktor \vec{n} parallel zu einem äußeren Feld aus; oder er hat eine negative dielektrische Anisotropie ($\Delta\epsilon < 0$) und eine Ausrichtung von \vec{n} senkrecht zum Feld ist energetisch günstiger. In beiden Fällen richten sich die Moleküle des Flüssigkristalls im äußeren Feld aus, wenn im Anfangszustand die freie Energie noch nicht minimal ist. Das elektrische Feld führt zu einem Drehmoment auf die Moleküle, dem entgegen das Drehmoment der elastischen Kräfte im Flüssigkristall wirkt. Der Gleichgewichtszustand zwischen beiden Kräften entspricht dem Zustand mit der geringsten freien Energie. In Gleichung 5.3 muss also ein weiterer Term für die elektrische Energie eingefügt werden:

$$E_F = \frac{1}{2} \left[k_{11}(\vec{\nabla}\vec{n})^2 + k_{22}(\vec{n}\vec{\nabla} \times \vec{n})^2 + k_{33}(\vec{n} \times \vec{\nabla} \times \vec{n})^2 - \epsilon_0 \Delta\epsilon (\vec{E}\vec{n})^2 \right]. \quad (5.4)$$

Auf diese Weise kann die kritische Feldstärke E_0 berechnet werden, für die die elektrischen Kräfte die elastischen Rückstellkräfte übertreffen. Für einfache Geometrien in nematischen Flüssigkristallen lassen sich diese kritischen Feldstärken bestimmen. Für diese Arbeit interessant ist der Fall der planaren Verankerung der Moleküle an der Grenzfläche, eine positive dielektrische Anisotropie und ein elektrisches Feld senkrecht zum Direktor, wie es in Abbildung 5.6 gezeigt ist.

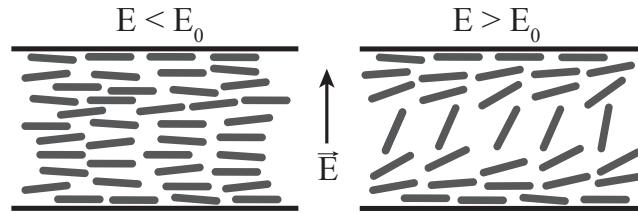


Abbildung 5.6.: Ausrichtung der Moleküle in einem nematischen Flüssigkristall mit positiver dielektrischen Anisotropie: Links die planare Ausgangsausrichtung, rechts der deformierte Fall oberhalb der kritischen Feldstärke.

Für kleine Störungen des Direktorfeldes kommt es in dem beschriebenen Fall nur zu einer Spreiz-Deformation. Für größere Feldstärken liegt weiterhin hauptsächlich eine Spreizung gemischt mit einer Biegung des Direktorfeldes vor. Die kritische Feldstärke im vorliegenden Fall lässt sich berechnen über

$$E_0 = \frac{\pi}{d} \left(\frac{k_{11}}{\epsilon_0 \Delta\epsilon} \right)^{\frac{1}{2}}, \quad (5.5)$$

wobei dafür angenommen wurde, dass die Wechselwirkung der Moleküle mit der Oberfläche stark ist und die elektrische Leitfähigkeit vernachlässigt werden kann. Da für die

Schwellspannung U_0 analog gelten muss, dass $E_0 = U_0/d$, ist die Schwellspannung unabhängig von der Schichtdicke d .

5.2. Einfluss der Flüssigkristalle auf die Resonatoren

Im letzten Kapitel wurden die Eigenschaften und Besonderheiten eines nematischen Flüssigkristalls vorgestellt. Hier soll nun beschrieben werden, wie diese Eigenschaften mit einem photonischen Resonator kombiniert werden können, um ein bei Raumtemperatur reversibel durchstimmbares, photonisches Bauteil zu erhalten.

Die doppelbrechenden Eigenschaften und die dielektrische Anisotropie eines Flüssigkristalls in der nematischen Phase und die Temperaturabhängigkeit seiner Brechungsindizes geben zusammengefasst die nötigen Zutaten, um kontrolliert Einfluss zu nehmen auf einen photonischen Mikroresonator: Das Einschlusspotential der optischen Mode in jedem Resonator ist abhängig vom Brechungsindex des Hintergrundes, wie schon in Kapitel 2.6 beschrieben ist. Bettet man den Resonator in einen Flüssigkristall ($n_{LC} > 1$) ein, wird durch die Änderung des Brechungsindex der Umgebung die Energie der photonischen Mode verschoben, denn die optische Weglänge der Mode ändert sich. Durch eine Einflussnahme auf die Brechungsindizes des Flüssigkristalles über die Temperatur oder über ein elektrisches Feld kann die Modenenergie eines im Flüssigkristall eingebetteten Resonators nun auch in situ verschoben werden. Dieser Effekt sollte reversibel sein, lässt sich die Ordnung im Flüssigkristall gezielt verändern.

Eine weitere Möglichkeit, die optische Weglänge des Resonators zu ändern, könnte sein, den Resonator direkt aus Flüssigkristallen herzustellen, wie es z.B. in der Arbeit von HUMAR et al. gemacht wurde [95]. Auf diese Weise wäre der Effekt einer Brechungsindexverschiebung auf die Modenenergie größer als in oben genanntem Fall. Ein Problem eines solchen Resonators ist die Lichteinkopplung, denn im Flüssigkristall ist im Allgemeinen keine Lichtquelle enthalten. Desweiteren wird das Licht im Inneren des Tropfens nur eingeschlossen, wenn der Brechungsindex des Flüssigkristalls höher ist als der der Umgebung. Da Brechungsindizes von nematischen Flüssigkristallen üblicherweise im Bereich von 1,5 für n_o bzw. 1,7 für n_e liegen [96], wird es schwierig, ein Material für die Umgebung zu finden, das einen kleineren Brechungsindex hat und zudem den Flüssigkristalltropfen stabilisieren kann. Da die Güte eines Resonators vom Brechungsindexkontrast zwischen Resonatormaterial und Hintergrund abhängt, ist hier keine hohe Güte zu erwarten.

In der Literatur finden sich Arbeiten, in denen photonische Bauelemente in Flüssigkristalle eingebettet wurden, um durch eine Änderung der Brechungsindizes des LC ihre Eigenschaften wie Reflektivität [79, 80] oder Transmission [81]–[82] zu beeinflussen. Z. B. ist es in diesen Arbeiten bereits gelungen, durch das Erhitzen eines nematischen Flüssigkristalls über seinen Klärpunkt die photonische Bandlücke eines eingebetteten photonischen Kristalls zu verschieben und somit die Transmissionseigenschaften zu verändern – dies sowohl für zweidimensionale photonische Kristalle [81, 97], als auch für

dreidimensionale [98, 82]. Weiterhin konnten DÜNDAR et al. [83] resonante Moden eines 2D photonischen Kristalls mit Defektoresonator durchstimmen, in dem sie den umgebenden Flüssigkristall ebenfalls über seinen Klärpunkt erhitzen. Die dabei gemessene Verschiebung war maximal 8 nm, wobei aber die Temperaturabhängigkeit des Brechungsindex des Resonatormaterials InGaAsP nicht in die Betrachtung mit einbezogen wurde. Ein elektrisches Feld wurde in den Arbeiten von SHIMODA et al. [80] und OZAKI et al. [79] genutzt, um das Maximum der Reflektivität eines mit Flüssigkristall infiltrierten, inversen Opal auf der Wellenlängenskala zu verschieben. Eine Kombination der Einflussnahme durch ein elektrisches Feld auf die Brechungsindizes des LC und der Einbettung eines photonischen Resonators mit aktiver Lichtquelle im Inneren steht allerdings noch aus.

Vorarbeiten dieser Arbeit [84]-[86] haben gezeigt, dass eine Mikrodisk eingebettet in den nematischen Flüssigkristall 4-Cyano-4'-pentylbiphenyl eine signifikante Modenverschiebung von etwa $-7,5$ nm bzw. 6 meV bei einer Temperaturerhöhung über den Klärpunkt $T_C = 34,6^\circ\text{C}$ zeigt. Wie in [86] beschrieben, konnte die Verschiebung dem Sprung eines der Brechungsindizes des Flüssigkristalls in der nematischen Phase am Phasenübergang bei T_C zugeordnet werden.

In den folgenden Abschnitten soll diese Technik nun erweitert werden, um einerseits direkt über ein äußeres elektrisches Feld die Moden einer Mikrodisk durchzustimmen, und um desweiteren einen eingebetteten photonischen Kristall mit Defektoresonator zu beeinflussen.

5.3. Präparation der Resonatorproben mit Flüssigkristallen

Die Herstellung der Mikrodisk und der photonischen Kristalle wird jeweils bereits in den Kapiteln 3.2 bzw. 3.3 beschrieben. Nach einer Funktionsprüfung der Proben durch das Aufnehmen von Photolumineszenzspektren werden die Resonatoren in der Arbeitsgruppe Physikalische Chemie von Prof. Dr. S.-H. Kitzerow mit dem Flüssigkristall 4-Cyano-4'-pentylbiphenyl (5CB von der Firma Merck) präpariert.

Der Flüssigkristall 5CB befindet sich bei Raumtemperatur in der nematischen Phase, sein Schmelzpunkt liegt bei $T_M = 18^\circ\text{C}$ und sein Klärpunkt bei $T_C = 34,6^\circ\text{C}$. Er hat eine positive dielektrische Anisotropie, so dass sich sein Direktor \vec{n} im äußeren Feld entlang der Feldlinien ausrichtet. Der Temperaturverlauf der Brechungsindizes n_o und n_e in der nematischen Phase wurde bereits in Abbildung 5.5 in Kapitel 5.1.3 gezeigt, wobei diese Brechungsindizes für eine Wellenlänge von $\lambda = 4,45\text{ }\mu\text{m}$ aufgetragen sind. In Abbildung 5.7 sind auf der rechten Seite nun die Brechungsindizes für Wellenlängen im sichtbaren Bereich gezeigt. Es sind sowohl Messwerte für die Wellenlängen 450 nm, 550 nm und 650 nm aufgetragen, als auch mit dem three-band Modell [29] und mit dem erweiterten Cauchy-Modell [30, 31] berechnete Werte.

Auf der linken Seite der Abbildung ist die Wellenlängenabhängigkeit der beiden Brechungsindizes n_o und n_e in der nematischen Phase bei $T = 25,1^\circ\text{C}$ gezeigt. Bei 900 nm

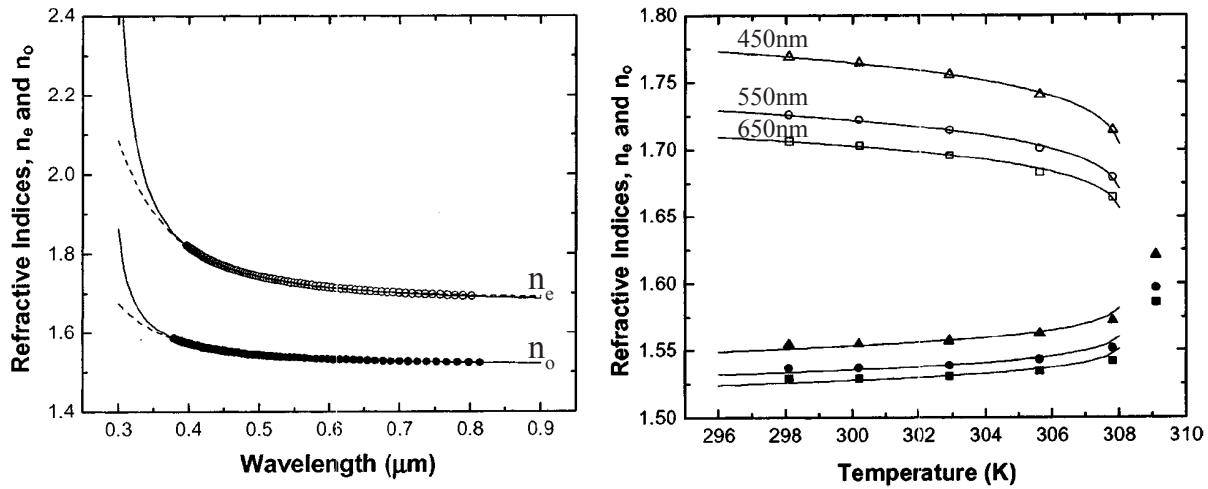


Abbildung 5.7.: Links: Wellenlängenabhängige Brechungsindizes von 5CB bei $T = 25,1^\circ\text{C}$, Linien für Modellrechnungen (three-band [29] und Cauchy [30, 31]). Rechts: Temperaturabhängigkeit der Brechungsindizes von 5CB für verschiedene λ , Linien Cauchy-Modellrechnungen. Original-Abbildungen aus [31].

haben n_e und n_o jeweils die Werte 1,69 bzw. 1,53. Die Brechungsindizes haben im nahen infraroten Bereich einen linearen, nahezu konstanten Verlauf, was auch bestätigt wird dadurch, dass sie bis zu einer Wellenlänge von $4,45\ \mu\text{m}$ nur noch bis auf die Werte 1,65 bzw. 1,5 fallen. Es kann also angenommen werden, dass im für die hier durchgeführten Experimentreihen interessanten Wellenlängenbereich von $1100 \dots 1300\ \text{nm}$ die Brechungsindizes bei $T = 25^\circ\text{C}$ $n_e = 1,69$ und $n_o = 1,53$ betragen. Die optische Anisotropie bei dieser Temperatur und dieser Wellenlänge beträgt etwa $\Delta n = 0,16$. Der Flüssigkristall ist im nahen Infraroten außerdem nahezu dispersionslos.

Zur planaren Ausrichtung des Flüssigkristalls in der Zelle wird die Probe mit den photonischen Resonatoren in eine Lösung aus N-Methyl-3-aminopropyltrimethoxysilan, Isopropanol und deionisiertem Wasser getaucht, danach mit Wasser gespült und getrocknet. Dies soll eine planare Verankerung des Flüssigkristalls auf dem GaAs sicherstellen. Die weniger empfindlichen Deckgläser werden mit Polyamid beschichtet und danach mit einem Filztuch in einer Richtung gerieben, wodurch parallele Mikrogräben in der Beschichtung entstehen. Die Flüssigkristalle ordnen sich später entlang dieser Gräben planar an und geben dem Volumen die Vorzugsrichtung vor.

Zur Einbettung der photonischen Resonatoren in den LC werden zuerst die Deckgläser mit seitlich angebrachter, $5\ \mu\text{m}$ dicker Abstandsfolie wie in Schritt (I) in Abbildung 5.8 gezeigt auf die Oberseite der Proben geklebt. Der Flüssigkristall wird dann an der Seite auf das überstehende Deckglas aufgetropft, so dass sich die Zelle durch die Kapillarkräfte von selbst mit dem LC füllt (II). Im letzten Schritt wird die so präparierte

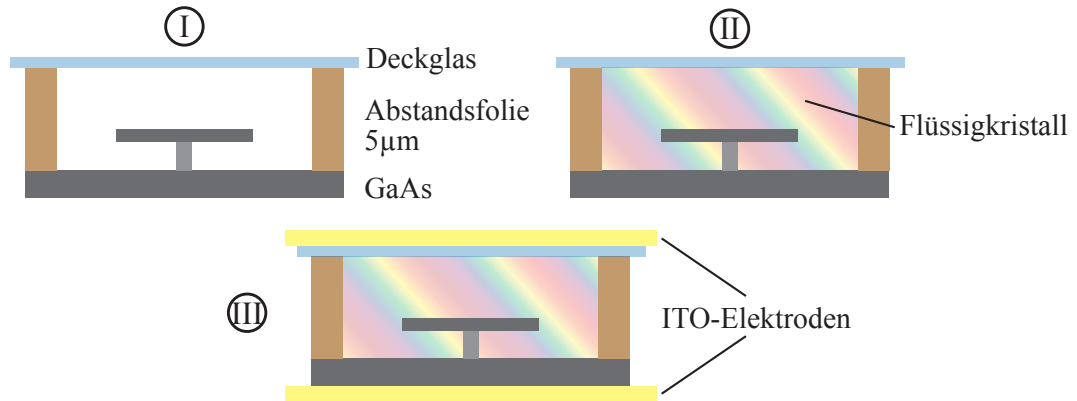


Abbildung 5.8.: Präparation der Flüssigkristalle auf einer Mikrodiskprobe. Die Einbettung der Proben mit photonischen Kristallen verläuft analog.

Probe zum Anlegen eines äußeren Feldes in Wachstumsrichtung zwischen zwei ITO-beschichteten Platten angeordnet (III). Zum Ausrichten der LC-Moleküle kann an die beiden Elektroden eine Wechselspannung (50 Hz) zwischen 0 und 230 V angelegt werden. Die Verwendung einer Wechselspannung ist nötig, da es sonst zu Elektromigration im Flüssigkristall kommen kann.

5.4. Mikrodisk mit Flüssigkristallen

Die in diesem Kapitel verwendeten Mikrodisk basieren alle auf dem Quantenpunktmaterial und werden durch optische Lithografie hergestellt; im Anschluss an eine Vorcharakterisierung werden die MDs in den Flüssigkristall 5CB eingebettet. Die Radien der MDs liegen etwa bei $3,3\,\mu\text{m}$. In Abbildung 5.9 sind ein PL-Spektrum einer in den LC eingebetteten MD und im Inset eine elektronenmikroskopische Aufnahme gezeigt. Das Spektrum der Quantenpunkte ist überlagert von schmalen photonischen Moden. Die markierten, annähernd äquidistanten¹ WGM hoher Intensität sind die Moden niedrigster radialer Quantenzahl. Ihre Satelliten niedrigerer Intensität sind jeweils höherer radialer Quantenzahl, liegen also weiter im Inneren der Mikrodisk und sind für Messungen zur Durchstimmbarkeit weniger attraktiv, da sie einen geringeren Überlapp mit dem Membranhintergrund besitzen.

¹Die Äquidistanz der Moden niedrigster radialer Quantenzahl wäre nur exakt für den Fall verschwindender Dispersion des Brechungsindizes des Membranmaterials.

Die gemessene Güte der photonischen Moden liegt im Bereich von $Q = 6500$. Obwohl die absolute Intensität der Photolumineszenz nach dem Einbetten in den LC durch Streuung abnimmt, wird die Güte der Moden nicht messbar beeinflusst.

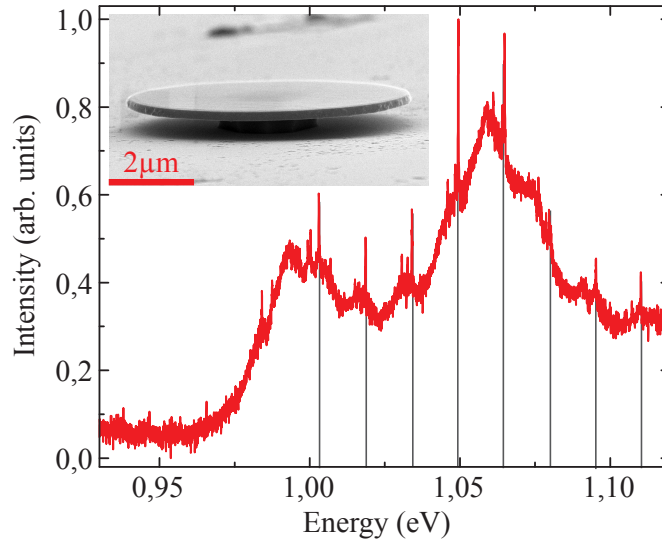


Abbildung 5.9.: PL-Spektrum einer in Flüssigkristalle eingebetteten MD, im Inset eine elektronenmikroskopische Aufnahme, aufgenommen unter 85° Verkippung.

Um die Absorption des Pumplaserlichtes und der Photolumineszenzstrahlung durch die ITO-beschichteten Deckgläser einschätzen zu können, wurden Absorptionsmessungen an diesen durchgeführt. Ein Transmissionsspektrum findet sich in Anhang A.3.

5.4.1. Elektrisches Durchstimmen der photonischen Moden

An eine in den Flüssigkristall eingebettete Mikrodiskprobe, die wie in Kapitel 5.3 zwischen zwei ITO beschichteten Gläsern als Elektroden angeordnet ist, wird eine regelbare Wechselspannung (50 Hz) angelegt. Die Spannung wird schrittweise von 0 V an erhöht, und in jedem Schritt wird ein PL-Spektrum der Mikrodisk aufgenommen. In Abbildung 5.10 sind die aufgenommenen Spektren für die Spannungen $0 \dots 38$ V aufgetragen. Die absolute Intensität der PL der Mikrodisk bleibt über den vermessenen Bereich konstant, was darauf schließen lässt, dass es nicht zu stärkerer Streuung durch das Ausrichten des Flüssigkristalls kommt.

Die angelegte Spannung bewirkt eine sukzessive Verschiebung der beobachteten photonischen Mode zu höheren Energien. Diese spektrale Verschiebung der Mode wurde ausgewertet und ist in Abbildung 5.11 (links) als relativer Wert über der angelegten Spannung aufgetragen (violette Dreiecke). Als Referenz wird außerdem eine Mikrodiskprobe ohne Flüssigkristall unter den selben Bedingungen vermessen und ausgewertet. Die Verschiebung ihrer WGM ist in der Auftragung mit den schwarzen Karos wiedergegeben.

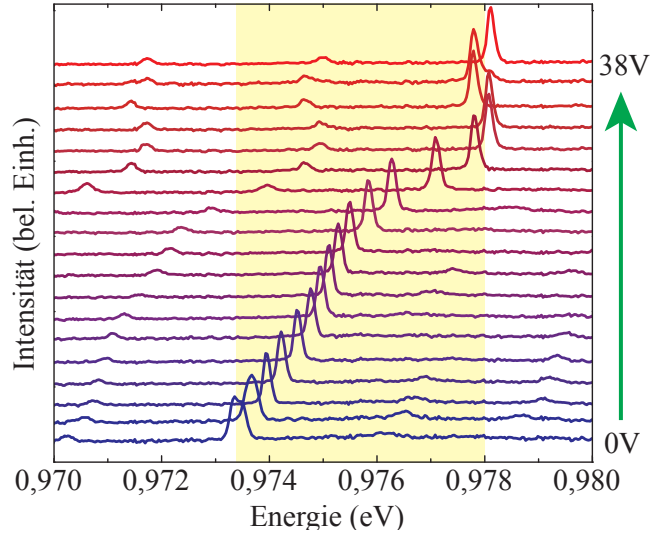


Abbildung 5.10.: Ausschnitte der PL-Spektren einer in LC eingebetteten Mikrodisk für eine zunehmende, in z -Richtung angelegte Wechselspannungen (50 Hz).

Die Mode der Referenzprobe verändert ihre Energie bis zu einer angelegten Spannung von 230 V nicht messbar, so dass die Verschiebung der WGM der Probe mit Flüssigkristall eindeutig dem Einfluss der LC-Moleküle zugeordnet werden kann. Die Wirkung des äußeren Feldes auf die photonische Mode sättigt bei etwa $U_S = 30$ V, was einem elektrischen Feld von $E_S = 462$ V/cm entspricht. Angenommen wird dabei, dass die beiden Elektroden einen Plattenkondensator mit $650\text{ }\mu\text{m}$ Plattenabstand bilden, dessen Feld am Ort des die MD umgebenden Flüssigkristalls homogen ist.

In der gezeigten Abbildung ist die Modenenergie nur bis zu einer angelegten Spannung von 45 V aufgetragen, gemessen wurde sie aber bis 100 V: Über der Sättigungsspannung schiebt die Mode nicht messbar weiter. Die maximale Energieänderung der photonischen Mode liegt bei Sättigung bei $\Delta E = 4,75$ meV.

Im rechten Teil von Abbildung 5.11 ist die Güte der ausgewerteten WGM spannungsabhängig aufgetragen. Die ersten beiden Messpunkte bei der geringsten Spannung liegen aus messtechnischen Gründen deutlich unter den anderen Güten. Darüber ist die gemessene Güte der Mode über den gesamten Spannungsbereich bis 100 V konstant und liegt weiterhin bei etwa 6500. Die gemessenen Abweichungen von diesem Wert nach unten oder oben lassen sich statistischen Schwankungen zuordnen. Das bedeutet, dass weder die Streuung im Flüssigkristall noch die Lebensdauer der Photonen im Inneren des Resonators durch das Anlegen eines äußeren Feldes signifikant verschlechtert werden.

Zusammenfassend lässt sich an dieser Stelle feststellen, dass das Einbetten der MD in den LC eine Möglichkeit liefert, die resonante WGM elektrisch durchzustimmen; diese spektrale Verschiebung ist reversibel, mit steigender Spannung blauverschiebt die Mode. Die Güte und die absolute Intensität der Mode werden nicht beeinflusst.

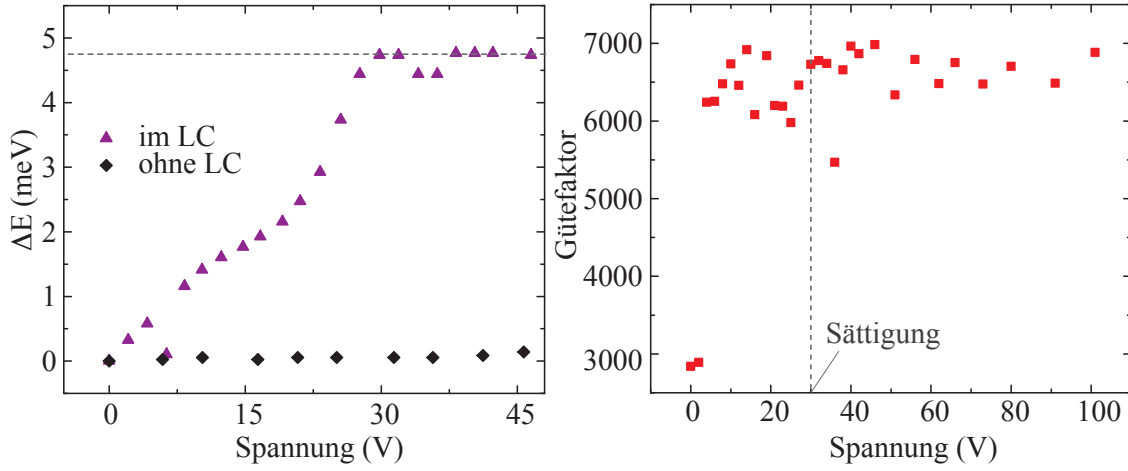


Abbildung 5.11.: Links: Abhängigkeit der Energie einer WGM von der in z -Richtung angelegten 50 Hz-Wechselspannung für eine in den Flüssigkristall 5CB eingebettete Mikrodisk (violette Dreiecke) und für eine MD ohne Flüssigkristalle als Referenz (schwarze Karos). Rechts: Gütefaktor der Mode in Abhängigkeit der angelegten Spannung weit über die Sättigung hinaus.

Obwohl durch das Messen einer Referenzprobe die Modenverschiebung schon eindeutig dem Einfluss des Flüssigkristalls zugeordnet werden kann, bleibt die Aufgabe, die Richtung der Durchstimmbarkeit und den Einfluss der beiden Brechungsindizes des LC n_o und n_e zu verstehen. Wenngleich die Situation des eingebetten Resonators in den Flüssigkristall auf den ersten Blick leicht zu durchschauen erscheint, erfordert es doch mehr Aufwand, zu verstehen, was genau zu der vorliegenden Energieverschiebung der WGM führt.

Wie bereits in Kapitel 5.1.3 besprochen, ist der nematische LC wegen der anisotropen Form der Moleküle doppelbrechend, wenn die Moleküle eine Vorzugsrichtung haben. Die Position des Moleküls zum k -Vektor der elektromagnetischen Welle der WGM bestimmt den Brechungsindex, den die Mode sieht. Da die Mikrodisk ein dreidimensionaler Resonator ist, an dem die Moden sowohl lateral in xy -Richtung als auch senkrecht in z -Richtung herauslecken können. Wäre der LC überall in die gleiche Richtung ausgerichtet, würde die Mode also in z -Richtung einen anderen Brechungsindex sehen, als an den MD-Kanten. Durch die Vorbehandlung der GaAs-Oberfläche mit N-Methyl-3-aminopropyltrimethoxysilan soll aber eine planare Verankerung der Moleküle auf dem Substrat erreicht werden. Ob die Moleküle an der Kante der MD nun senkrecht zu denen auf der Mikrodiskoberseite stehen, oder sich die Ausrichtung der letzteren bis an die Kante fortsetzt, ist zu diesem Zeitpunkt nicht bekannt. Es ist also nicht klar, in welche Richtung sich die Brechungsindizes lateral und in Wachstumsrichtung durch das Anlegen der Spannung bewegen. Die letzte Unbekannte ist, wie sich die Verschiebung der photonischen Mode aus den Einflüssen in lateraler und in z -Richtung zusammen-

setzt. In den folgenden Kapiteln werden Simulationen der Situation und Messungen des Direktorfeldes eines Flüssigkristall, in den eine Mikrodisk eingebettet wurde, vorgestellt, um mehr Klarheit bringen.

5.4.2. FDTD Simulationen

FDTD (*Finite-Difference Time-Domain*) Simulationen wurden von Stefan Declair aus der Gruppe von Jens Förstner an der Universität Paderborn durchgeführt. Um das einbettende, anisotrope Medium in der Simulation wiederzugeben, wird ein dimensionsloser Ordnungsparameter o eingeführt, der Werte zwischen -1 und 1 annehmen kann und dessen Wert die Ausrichtung der LC-Moleküle widerspiegelt. Der Wert $o = -1$ ist dem Fall zugeordnet, dass die Moleküle in xy -Richtung ausgerichtet sind, beim Wert $o = 1$ verläuft ihre lange Achse in z -Richtung. Der Wert $o = 0$ des Ordnungsparameters entspricht dem Fall, dass die Flüssigkristallmoleküle vollkommen ungeordnet sind (vergl. die erläuternden Zeichnungen der Situationen in Abb. 5.12 auf der rechten Seite). Zwischen diesen beiden Extremwerten wird der Tensor der effektiven dielektrischen Konstante $\underline{\underline{\varepsilon_r}}$ linear interpoliert und es wird angenommen, dass der dielektrische Tensor nur Diagonalelemente enthält, was der verwendete Algorithmus voraussetzt.

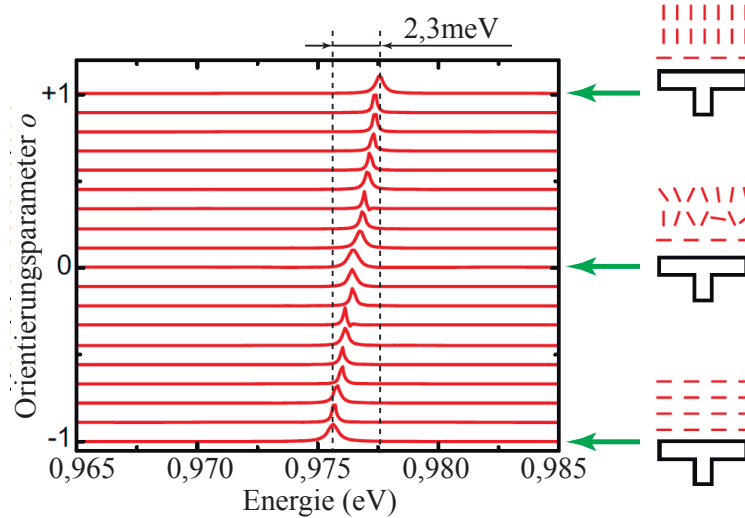


Abbildung 5.12.: Mit FDTD simulierte Verschiebung einer WGM in einer Mikrodisk eingebettet in eine optisch anisotrope Matrix, in der sich die Brechungsindizes in z - und in xy -Richtung unterschiedlich ändern, entsprechend der angenommenen Orientierung der LC-Moleküle. Originalabb. aus [86]

In der Simulation wird der Ordnungsparameter sukzessive geändert, um die Ausrichtung der LC-Moleküle im äußeren elektrischen Feld nachzubilden. Die Ergebnisse der Rechnung sind in Abbildung 5.12 gezeigt, wo die Position einer resonanten Mode für

verschiedene Werte von o aufgetragen ist. Die geringste Energie besitzt die Mode bei der planaren Ausrichtung der Moleküle ($o = -1$). Wird o auf den Wert null – also den ungeordneten Fall – hochgefahren, schiebt sie linear zu höheren Energien. Richtet man von diesem Fall ausgehend die Moleküle langsam in z -Richtung aus, nimmt die Modenenergie weiter linear zu. Bei der vollkommen senkrechten Ausrichtung ($o = 1$) ist die maximale spektrale Verschiebung $\Delta E_{sim} = 2,3 \text{ meV}$.

Vergleicht man diese Ergebnisse mit denen der Messung, und behält dabei im Auge, dass die Ausrichtung der Moleküle zumindest im Sättigungsfall mit eingeschaltetem E -Feld als senkrecht ($o = 1$) bekannt ist, gibt die Simulation mindestens korrekt wieder, dass sich die LC-Moleküle vom ungeordneten Fall senkrecht ausrichten. Ob die Verankerung am Anfang der Messung planar war ($o = -1$) oder überhaupt keine Vorzugsrichtung der Moleküle vorlag ($o = 0$), kann hier noch nicht mit Sicherheit gesagt werden.

Da der Wert der Modenverschiebung zwischen dem ungeordneten Fall und dem Fall $o = 1$ in der Simulation mit $1,2 \text{ meV}$ etwa um den Faktor 4 geringer ist als im Experiment, kann davon ausgegangen werden, dass am Anfang des Experiments bei $U = 0$ zumindest eine teilweise planare Verankerung der Moleküle auf der GaAs-Oberfläche vorgelegen hat. In dem Fall der vollkommen planaren Ausrichtung ist die maximale Verschiebung in der Simulation mit $\Delta E_{sim} = 2,3 \text{ meV}$ immer noch um den Faktor 2 geringer als im Experiment ($\Delta E = 4,75 \text{ meV}$). Dieser Wert korrespondiert mit der Abweichung der FDTD Simulationen für die photonischen Kristalle in Kapitel 6.1.2, die dort $2,5$ beträgt. Die Diskrepanz zwischen Simulation und Experiment kann damit erklärt werden, dass die Moden im realen Resonator durch Streuung weiter in den Hintergrund herauslecken können, als das im perfekten Resonator in der Simulation der Fall ist.

Einen weiteren Punkt kann man aus dieser Simulation lernen: In der Simulation wurde die Ausrichtung der LC-Moleküle als überall identisch angenommen. Das bedeutet aber, dass der Brechungsindex in xy -Richtung im Intervall $o = -1 \dots 1$ abnimmt ($n_{||} \rightarrow n_{\perp}$) während er zur gleichen Zeit in z -Richtung zunimmt. Durch diese beiden Änderungen kommt es für die Mode zu zwei konkurrierenden Einflüssen. In xy -Richtung sollte die Mode rotverschoben, in z -Richtung aber blauverschoben.

Da im Experiment eine Energiezunahme gemessen wird, kann aus diesem Vergleich geschlossen werden, dass der Einfluss der Brechungsindexänderung auf die Mode in z -Richtung dominiert und den lateralen, konkurrierenden Einfluss unterdrückt. Eine quantitative Abschätzung kann hier noch nicht erfolgen, wird aber bei der schrittweisen Verschiebung einer WGM durch das Beschichten einer Mikrodisk mit Polyelektrolyten in Kapitel 7.4.2 nachgeholt werden.

5.4.3. Untersuchungen des Direktorfeldes

Um die Verankerung der Flüssigkristallmoleküle auf der Mikrodisk und den Verlauf des Direktorfeldes besser verstehen zu lernen, wurden von Martin Urbanski in der Arbeitsgruppe von Heinz-S. Kitzerow an der Universität Paderborn polarisationsmikroskopische Messungen und Simulationen des Direktorfeldes eines Flüssigkristalls unternommen, in

den Mikrodisk eingebettet sind. In einer Arbeit von URBANSKI ET AL. [99] sind die hier diskutierten Ergebnisse veröffentlicht, die Verwendung geschieht mit seiner freundlichen Genehmigung.

Experimentelle Durchführung

Der für diese Experimente verwendete Flüssigkristall ist MLC 6815, der bei Raumtemperatur in der nematischen Phase vorliegt. Die Verwendung eines von den anderen Experimenten verschiedenen Flüssigkristalls ist nötig, da für die konfokalen Fluoreszenz Polarisationsmikroskopie Messungen (FCPM) eine niedrige Doppelbrechung ($\Delta n = 0,0517$) nötig ist. [99] Bis auf diese Unterscheidung verläuft die Präparation der Mikrodisk Proben wie bei den vorhergehenden Experimenten, so dass auch hier eine planare Verankerung der LC-Moleküle auf der Probenoberfläche erwartet wird.

Für die optischen Polarisationsmessungen (POM) steht ein konfokales Mikroskop mit einer Weißlichtquelle und einer Avalanche Photodiode als Detektor zur Verfügung. Für die FCPM Messungen ist es außerdem mit einem Argon-Ionen-Laser ($\lambda = 488 \text{ nm}$) ausgerüstet. Das Laserlicht wird linear polarisiert. Vor dem Detektor befindet sich außerdem ein Polarisationsfilter parallel zur Polarisation des Lasers. Dem Flüssigkristall wird der dichroitische Farbstoff N,N'-bis(2,5- di-*tert*-butylphenyl)-3,4,9,10-perylendicarboximide (BTBP, 0,01 wt%) beigemischt. Werden die Farbstoffmoleküle angeregt, ist das Übergangsdipolmoment parallel zum Direktor \vec{n} des umgebenden Flüssigkristalls ausgerichtet. Für die Intensität des am Detektor ankommenden Lichtes gilt demnach:

$$I_{det} \propto \cos^4 \alpha, \quad (5.6)$$

wobei α der Winkel zwischen dem lokalen Direktor des LC und dem elektrischen Feldvektor des polarisierten Lichts bezeichnet.

Feldfreie Messungen

Die Messmethode der optischen Polarisationsmikroskopie beruht auf der Doppelbrechung im ausgerichteten Flüssigkristall. Durch die Polarisation des einfallenden Lichts kommt es zu unterschiedlichen Laufzeiten und damit zu Interferenz. POM-Aufnahmen der Mikrodisk ohne externes Feld sind in Abbildung 5.13 bei unterschiedlicher Ausrichtung der Probe und damit des Direktors gezeigt. Zu erkennen sind die verschieden hellen und dunklen Bereiche, die typisch für POM Aufnahmen sind. Links oben ist die Ausrichtung des Direktors mit einem weißen Balken indiziert, rechts oben die Polarisationsrichtung von Analysator und einfallendem Licht.

Verdreht man den Direktor des Flüssigkristalls jeweils um 45° relativ zu Polarisator und Analysator, ergeben sich die gezeigten zwei sehr ähnlichen Muster: Unter einem Winkel zwischen Direktor und Polarisationsrichtung des einfallenden Lichts von 45° (Abb. 5.13 b) oder 135° (Abb. 5.13 d), ist die POM-Abbildung hell und es zeigt sich kein weiterer Effekt der Mikrodisk auf den Flüssigkristall. Wenn der Direktor \vec{n} parallel zum

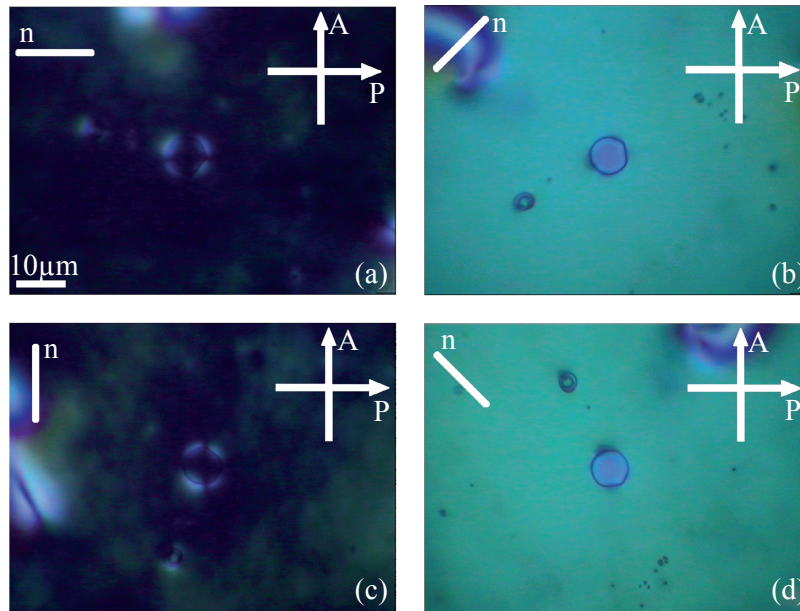


Abbildung 5.13.: Aufnahmen der optischen Polarisationsmikroskopie einer Mikrodisk eingebettet in den nematischen Flüssigkristall MLC-6815 bei unterschiedlicher relativer Ausrichtung des Direktors. Originalabbildung aus [99].

Polarisationsfilter oder zum Analysator ausgerichtet ist (Abb. 5.13 a+c), wird die Aufnahme hauptsächlich dunkel.

Darüber hinaus ergeben sich unter den beiden parallelen Ausrichtungen vier helle Bereiche, die die Mikrodisk symmetrisch umgeben. Es existieren bereits Veröffentlichungen, in denen ähnliche Strukturen an Tropfen eines nematischen Flüssigkristalls in Wasser [100] und an einem Wassertropfen mit planarer Verankerung in einem nematischen Flüssigkristall [101] nachgewiesen wurden. Die Autoren schließen daraus, dass sich bei nematischen Tropfen zwei diametral gegenüberliegende Punktdefekte bilden, auch *Boojums* genannt. Auch am Rand der Mikrodisk scheinen sich zwei gegenüberliegende Boojums zu bilden, obwohl die Mikrodisk die zirkuläre Symmetrie nur in zwei Dimensionen besitzt – und nicht in drei wie die Tropfen.

FCPM Messungen sollen weiteren Aufschluss darüber geben, wie die Reduzierung der zirkulären Symmetrie von drei auf zwei Dimensionen die Ausrichtung der LC-Moleküle beeinflusst. Durch eine Fokusveränderung ist es bei dieser Messmethode möglich, Informationen in z -Richtung über die Ausrichtung des Direktors zu erhalten. Durch ein gleichzeitiges Abrastern der Probe in x - oder y -Richtung erhält man so eine Seitenansicht des möglichen Direktorfeldes des LC. Die Ergebnisse der FCPM Messungen ohne externes elektrisches Feld sind in Abbildung 5.14 oben gezeigt: links die Aufsicht, rechts die durch die schrittweise Fokusveränderung gemessene Seitenansicht, zudem eine Simu-

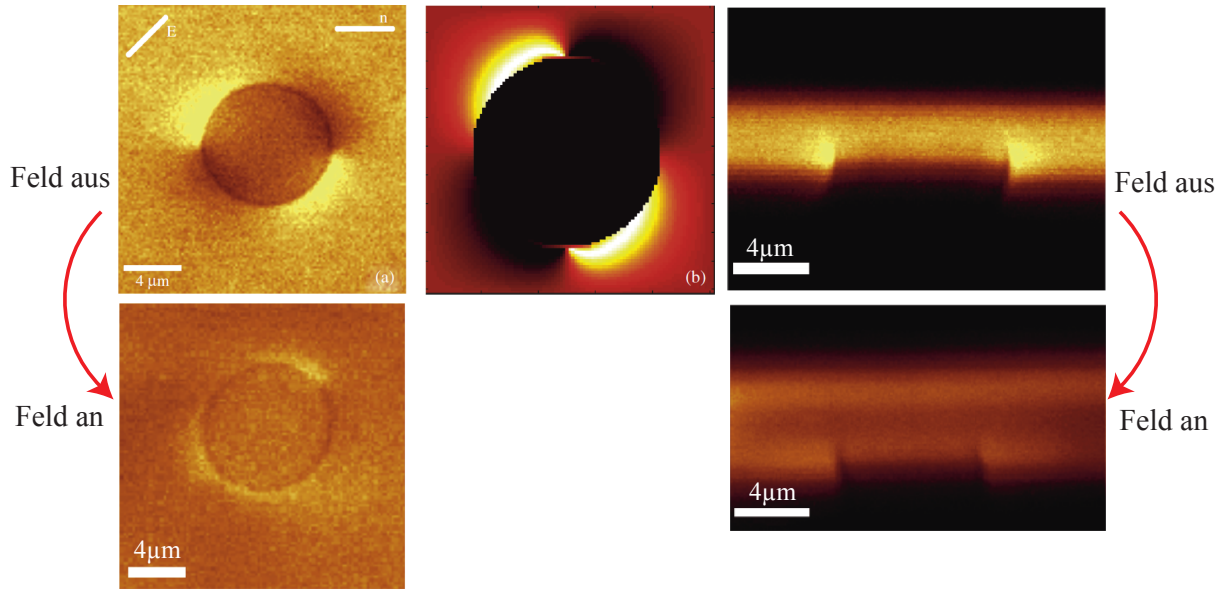


Abbildung 5.14.: FCPM Aufnahmen einer in einen nematischen LC eingebetteten MD, links in der Aufsicht, rechts von der Seite, in der Mitte die FCPM Simulation. Oben: ohne externes Feld, unten: mit einer angelegten Spannung von 100 V in z -Richtung. Originalabbildung aus [99].

lation in der Mitte. Für die Simulation wird angenommen, dass die Intensität bei der FCPM Messmethode proportional zu $\cos^4 \alpha$ ist.

Wie auch bei der POM Messung ist die Mikrodisk in der Aufnahme in Aufsicht von vier symmetrischen Flecken umgeben, mit dem Unterschied, dass hier zwei gegenüberliegende Flecken dunkel erscheinen und die übrigen zwei Flecken hell. In den Bereichen mit hoher FCPM Intensität liegt eine parallele Ausrichtung der LC-Moleküle zur Polarisation des Laserlichts vor, bei niedriger Intensität analog eine Ausrichtung senkrecht zur Polarisierung. Diese Ausrichtung setzt sich auch über den Membranrand zum Inneren der Mikrodisk hin fort. Die Simulation gibt die prinzipielle Ausrichtung des Direktors gut wieder. In der Seitenansicht zeigt sich, dass sich die parallele Ausrichtung in z -Richtung noch 1,5 μm über die Mikrodisk fortsetzt.

In Abbildung 5.15 sind Simulationen des Direktorfeldes des eine Mikrodisk umgebenden LCs gezeigt: im oberen Teil der Abbildung für den feldfreien Fall, links wurde die xy -Ebene simuliert, rechts die xz -Ebene. Für die Simulation des Direktorfeldes wird das Feld gesucht, bei dem die freie Energie im LC minimal ist. Die Simulation stimmt gut mit den Ergebnissen der POM und der FCPM Messungen überein.

In xy -Richtung ergibt sich bei der Simulation ein Direktorfeld, welches größtenteils parallel zur x -Achse verläuft, wobei auf gegenüberliegenden Seiten der Mikrodisk zwei Boojums entstehen, erkennbar an den endenden Direktorfeldlinien. In der Simulation des

Direktors in der xz -Ebene zeigt sich ebenfalls eine parallel Ausrichtung der Moleküle. Eine z -Komponente besitzt der Direktor nur in der direkten Nähe der Mikrodisk an den gegenüberliegenden Rändern.

Messungen mit elektrischem Feld

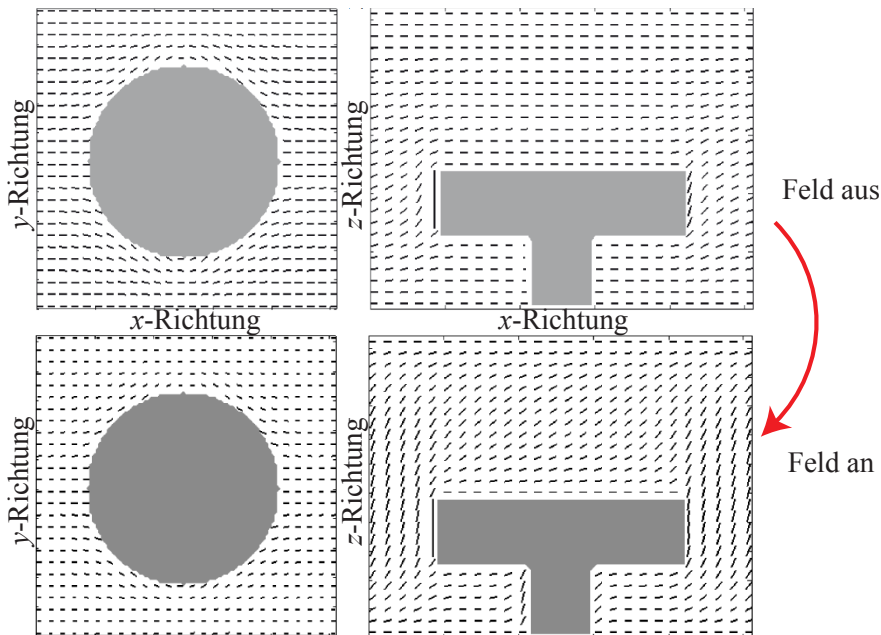


Abbildung 5.15.: Simulationen des Direktorfeldes eines nematischen Flüssigkristall mit eingebetteter MD, links in der Aufsicht, rechts von der Seite. Oben: ohne externes Feld, unten: mit elektrischem Feld in z -Richtung. Originalabbildung aus [99].

Die POM- und FCPM-Messungen sowie die Simulationen des Direktorfeldes werden nun auch mit einem externen elektrischen Feld in z -Richtung durchgeführt, um die Veränderung des Direktorfeldes zu untersuchen. Dafür wird eine Wechselspannung von 100 V angelegt. Die Ergebnisse der optischen Polarisationsmessung sind in Abbildung 5.16 gezeigt, links ohne externes Feld, rechts mit Feld. Durch das Einschalten des elektrischen Feldes verändern sich sowohl Farbe und Intensität in der POM Aufnahme, was laut URBANSKI et al. typisch ist für einen Fréedericksz-Übergang [99].

Die Ergebnisse der FCPM Messung mit externem Feld sind in Abbildung 5.14 unten wiedergegeben. In der Aufsicht werden die hellen und dunklen Flecken, die die Mikrodisk umgeben, gegenüber dem feldfreien Fall deutlich dunkler. Zudem nimmt auch im Hintergrund der Disk die Intensität ab, was auf einen Anstieg der z -Komponente im Direktorfeld zurückzuführen ist. Das heißt, die LC-Moleküle richten sich entlang des elektrischen Feldes in z -Richtung aus. Wiederum gibt die Simulation in Abb. 5.15 links

unten dieses Ergebnis gut wieder: An zwei Seiten der Mikrodisk bestehen weiterhin zwei Boojums, aber das Direktorfeld richtet sich verstärkt in z -Richtung aus.

In der Seitenansicht der FCPM-Messung in Abb. 5.14 unten hat sich das Direktorfeld stark verändert, wie es typisch ist für einen S -Typ Fréedericksz-Übergang. [99, 102] Die Fortsetzung der Direktorausrichtung in z -Richtung über die Mikrodisk hinweg scheint sich durch das Anschalten des elektrischen Feldes hingegen nicht zu verändern. Auch diese Ergebnisse sind in der Simulation (Abb. 5.15 unten rechts) sehr gut wiedergegeben.

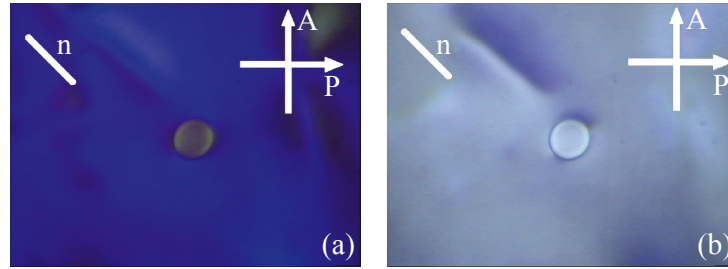


Abbildung 5.16.: Aufnahmen der optischen Polarisationsmikroskopie einer Mikrodisk eingebettet in den nematischen Flüssigkristall MLC-6815, links ohne externes Feld, rechts mit in z -Richtung angelegter Spannung von 100 V. Originalabbildung aus [99].

Fasst man die Ergebnisse der polarisationsmikroskopischen Messungen zusammen, zeigt sich im feldfreien Fall eine parallele Ausrichtung der Flüssigkristallmoleküle, wobei an zwei gegenüberliegenden Seiten der Mikrodisk zwei Boojums entstehen. Diese Punktdefekte sind ähnlich denen bei runden Partikeln mit planarer Verankerung in einem nematischen Flüssigkristall. Das Direktorfeld besitzt eine verschwindende z -Komponente, die Moleküle sind also planar auf der Mikrodiskoberfläche verankert. Nach dem Einschalten eines externen elektrischen Feldes in z -Richtung kommt es zu einer tangentialen Drehung der LC-Moleküle, wodurch die z -Komponente des Direktorfeldes stark ansteigt.

Diese Ergebnisse bestätigen sehr gut, was in den vorhergehenden Kapiteln aus den PL-Messungen (5.4.1) an der in den LC eingebetteten MD und der FDTD Simulation (Kap. 5.4.2) geschlossen wurde. Es kann also nun als sicher angenommen werden, dass in der feldabhängigen Messung in Kap. 5.4.1 die LC-Moleküle in der Nähe der MD vor dem Anlegen der elektrischen Spannung planar verankert sind und nur eine minimale z -Komponente besitzen, nach dem Hochfahren der Spannung im Sättigungsfall sind sie parallel zu den Feldlinien ausgerichtet. In z -Richtung spürt die photonische Mode also während des Ansteigens der Spannung den Brechungsindex n_{BG} des Hintergrundes um die volle optische Anisotropie des Flüssigkristalls $\Delta n = 0,16$ abnehmen.

5.4.4. Einfluss des Flüssigkristalls auf Mikrodisklaser

Um die Anwendbarkeit von in Flüssigkristallen eingebetteten Mikrodisks als elektrisch durchstimmbaren (Mikro-) Laser zu testen, werden verschiedene leistungsabhängige Messungen an MDs ohne und mit umgebendem LC durchgeführt. Die Mikrodisks in dieser Messung haben Radien im Bereich von $1,84\text{--}2,35\text{ }\mu\text{m}$ und wurden aus dem Quantenfilm-Probenmaterial hergestellt.

Vorcharakterisierung

Als Vorcharakterisierung der Mikrodisk wird pumpleistungsabhängig die Intensität einer resonanten Mode und ihre Halbwertsbreite aufgenommen. Die Ergebnisse sind in Abbildung 5.17 gezeigt. Gepumpt wird die Mikrodisk für diese Messung mit der gepulsten Pikosekunden Laserdiode bei $f = 5\text{ MHz}$. Über der Laserschwelle von $P_{th} = 505\text{ }\mu\text{W}$ steigt die Intensität überlinear an. Die Halbwertsbreite der WGM fällt von $0,8\text{ meV}$ unter der Laserschwelle sukzessive auf $0,15\text{ meV}$ beim Überschreiten von P_{th} . Bei höheren Pumpleistungen bleibt die FWHM konstant. Beide Tatsachen zusammen bestätigen, dass es gelungen ist, eine photonische Mode der Mikrodisk über die Laserschwelle zu pumpen. Die Güte der Resonatormode beträgt unter der Laserschwelle minimal $Q = 1600$ und steigt bis P_{th} auf 9000 an.

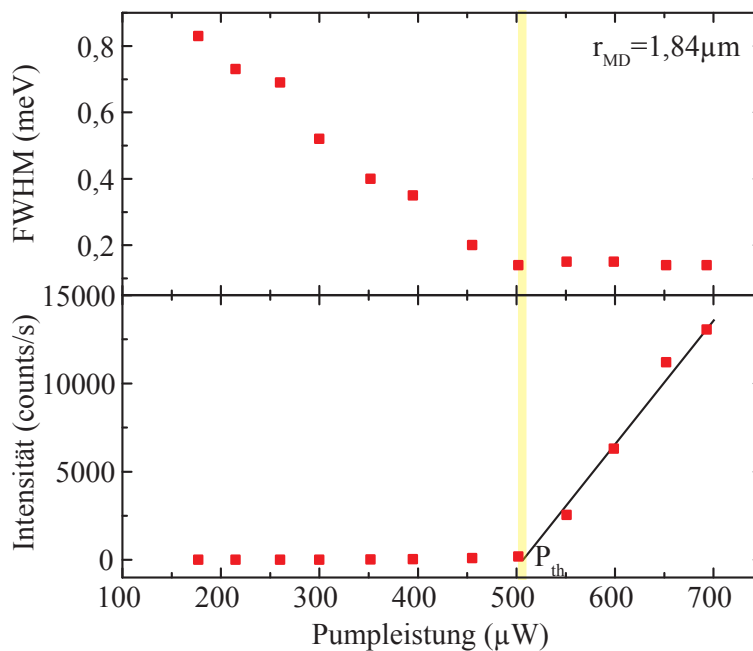


Abbildung 5.17.: Pumpleistungsabhängige Intensität und FWHM einer resonanten Mode einer Mikrodisk ($r = 1,84\text{ }\mu\text{m}$) ohne LC.

Modenverschiebung durch das Einbetten in Flüssigkristalle, Radiusabhängigkeit

Im Anschluss an diese Vorcharakterisierung werden die MD-Proben in den Flüssigkristall 5CB eingebettet und die Messungen wiederholt. Es zeigt sich, dass sich durch das Füllen mit dem LC der Brechungsindex des Mikrodisk-Hintergrundes verändert, und in der Folge die Frequenzen der photonischen Moden stark verschieben.

Der Brechungsindex des MD-Hintergrundes vor dem Befüllen mit LC beträgt eins, nach dem Füllen steigt n_{BG} an: Je nachdem, wie der Flüssigkristall sich auf der Mikrodisk ausrichtet, beträgt n_{BG} dann entweder $n_e = 1,69$ oder $n_o = 1,53$ oder eine Mischung dieser beiden Brechungsindizes. Durch diesen Anstieg von n_{BG} erwartet man eine Rotverschiebung der WGM, da der photonische Einschluss abnimmt.

Da das Füllen der Probe mit dem Flüssigkristall nicht sukzessive passiert, so dass man die spektrale Verschiebung der Mode dabei beobachten könnte, ist es nach dem Einbetten in den LC schwierig, die photonischen Moden mit den selben azimuthalen Quantenzahlen wie vor dem Füllen zu identifizieren. Deshalb ist es wichtig, die spektrale Verschiebung der Moden abschätzen zu können. Dafür wird hier auf Ergebnisse von Kapitel 7.4.2 vorgegriffen. Dort wird der Brechungsindex des Hintergrundes einer aus dem QW-Material hergestellten Mikrodisk durch Einbetten in Polyelektrolyte von $n_{BG} = 1$ auf 1,45 erhöht, dabei schiebt die Mode der MD spektral um $\Delta E = -15,1 \text{ meV}$. Da der Brechungsindex des hier verwendeten Flüssigkristalls zwischen $n_o = 1,53$ und $n_e = 1,69$ liegt, ist die Änderung des Hintergrundbrechungsindex im vorliegenden Experiment in etwa vergleichbar, und es kann angenommen werden, dass Richtung und Betrag der spektralen Verschiebung beim Einbetten in den LC ebenfalls in der Größenordnung von $\Delta E = -15 \text{ meV}$ liegt.

Mit dieser Abschätzung fällt es leichter, die Moden mit der selben azimuthalen Quantenzahl wie vor dem Füllen mit dem LC zu identifizieren und die spektrale Verschiebung auszuwerten. Die Moden verschieben zu geringeren Energien; der Betrag der Energieverschiebung $|\Delta E|$ der resonanten Mode der Mikrodisk hervorgehoben durch das Einbetten in den Flüssigkristall ist in Abhängigkeit des MD Radius in Abbildung 5.18 links aufgetragen. Die Energieverschiebung nimmt mit steigendem Mikrodiskradius ab, im gemessenen Bereich ist die Abhängigkeit linear. Bei einem Radius der Membran von $r_1 = 1,84 \mu\text{m}$ liegt die spektrale Verschiebung bei $|\Delta E| = 9 \text{ meV}$, bis zum maximal gemessenen Radius von $r_2 = 2,53 \mu\text{m}$ fällt $|\Delta E|$ auf $5,8 \text{ meV}$ ab.

Diese Abhängigkeit der Frequenzänderung der resonanten Moden einer MD bei Änderung des Hintergrundbrechungsindizes zeigt, dass die Form des Resonators einen starken Einfluss auf seine Durchstimmbarkeit hat. Es ist hier davon auszugehen, dass das elektromagnetische Feld der WGM in einer Mikrodisk mit geringerem Radius zu einem größeren Prozentanteil im Außenbereich der Membran liegt und dadurch einem stärkeren Einfluss unterliegt.

Wertet man den Energieabstand zwischen den WGM mit gleicher radialer ($N = 1$) und benachbarter azimuthaler Quantenzahl M aus, sollte dieser auf der Energieskala äquidistant sein: Unter einfachen geometrischen Betrachtungen folgte bei den Grundlagen

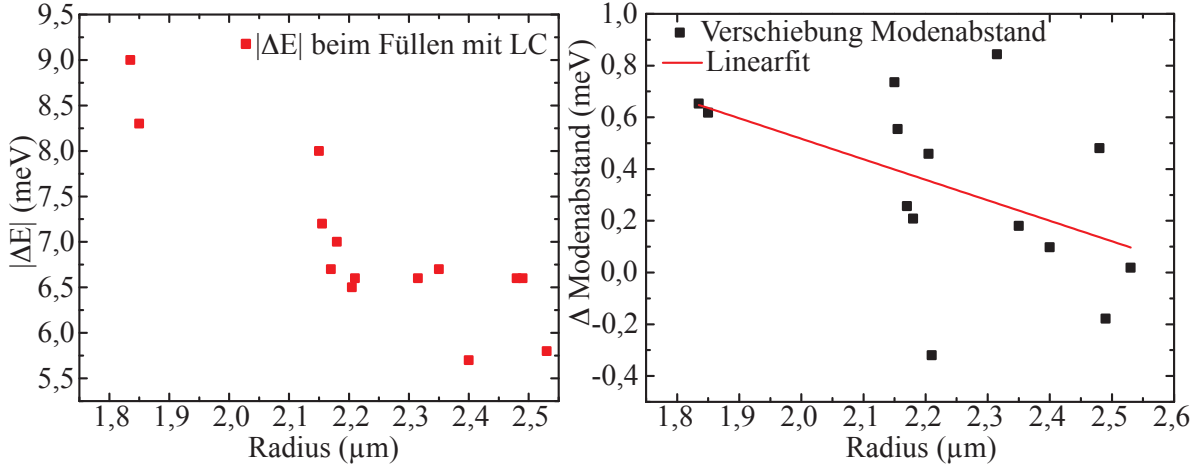


Abbildung 5.18.: Links: Betrag der vom Radius der MDs abhängige spektrale Modenverschiebung der WGM beim Einbetten in den Flüssigkristall. Rechts: Veränderung des Abstands benachbarter Moden gleicher radialer Quantenzahl durch das Einbetten in den LC, in rot der Linearfit der Daten.

Kap. 2.2 für die Energie einer WGM

$$E = \frac{\hbar c M}{n_{HL} R}, \quad (5.7)$$

wobei R hier nicht mehr der reale Radius der Mikrodisk sondern der effektive Radius R_{eff} des Resonators sein sollte, den die WGM spürt. Bildet man die Differenz der Energie zweier Moden benachbarter azimuthaler Quantenzahl (hier wegen der Verwechslungsgefahr ΔE_{IM} genannt), zeigt sich die Äquidistanz der Moden auf der Energieskala:

$$\Delta E_{IM} = \frac{\hbar c}{n_{HL} R_{eff}}. \quad (5.8)$$

Auch diese Größe ist abhängig vom effektiven Radius des Resonators und ist deshalb auch mit dem Brechungsindex des MD-Hintergrundes verknüpft. Beim Einbetten der Mikrodisk in den Flüssigkristall wird der Abstand der Moden kleiner, denn das Einschlusspotential nimmt ab. Die Rotverschiebung der Moden ist also gleichzeitig damit verknüpft, dass die Moden auf der Energieskala näher aneinander rücken.

Im vorliegenden Fall wird betrachtet, wie sich der Modenabstand ΔE_{IM} durch das Einbetten in den Flüssigkristall verändert. Dazu wird die Differenz $\Delta E_{IM}^{ohneLC} - \Delta E_{IM}^{mitLC}$ gebildet und in Abbildung 5.18 rechts über dem Radius der Mikrodisk aufgetragen. Diese Größe ist unabhängig von der azimuthalen Quantenzahl einer Mode und unterliegt deshalb nicht den Identifizierungsproblemen, die sich nach dem Befüllen stellen.

Der Modenabstand ist im Experiment üblicherweise nicht perfekt äquidistant, sondern unterliegt starken Schwankungen, die durch die Absorption in der emittierenden Schicht

hervorgerufen wird. Durch die Absorption wird lokal der Brechungsindex verändert. Dies schlägt sich auch in der Verschiebung von ΔE_{IM} durch das Befüllen mit dem LC nieder, wo die Datenpunkte stark rauschen. Der Trend, dass der Modenabstand bei höherem Brechungsindex des Hintergrundes n_{BG} abnimmt, ist aber deutlich, denn nur zwei Datenpunkte liegen im negativen Bereich. Nähert man die Daten mit einem Linearfit an, zeigt sich hier zudem die Abhängigkeit der Verschiebung von ΔE_{IM} vom Radius der Mikrodisk. Auch hier unterliegt die MD mit dem geringeren Radius dem größeren Einfluss durch den Hintergrund.

Einfluss des Flüssigkristalls auf das Laser-Regime

In diesem Abschnitt soll untersucht werden, wie das Einbetten der Mikrodisk in den Flüssigkristall das Verhalten als Laser beeinflusst. Dazu sind in Abbildung 5.19 die pumpleistungsabhängige Modenintensität und -halbwidths einer $r = 1,84 \mu\text{m}$ Mikrodisk jeweils vor und nach dem Befüllen der Probe mit LC gezeigt.

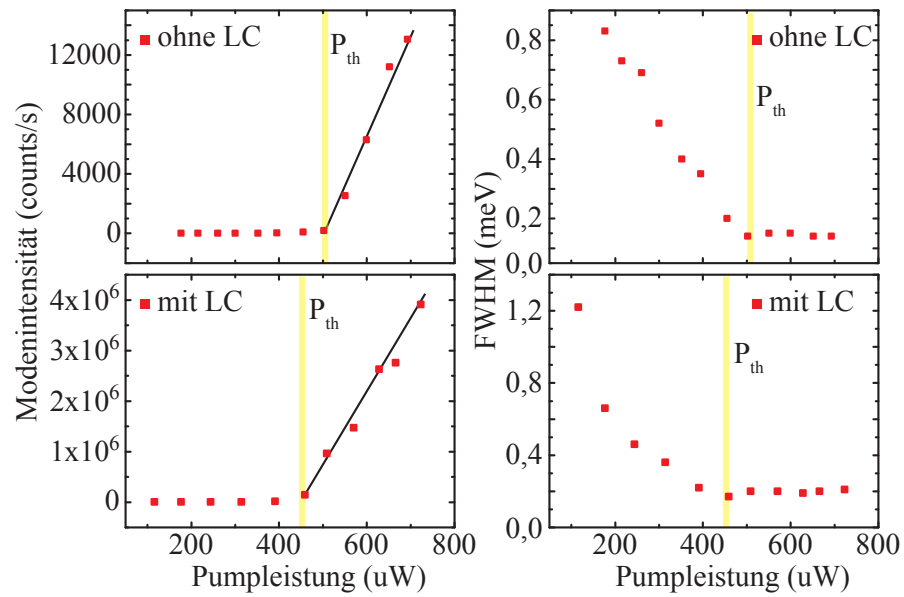


Abbildung 5.19.: Links: Pumpleistungsabhängig der Intensität der WGM einer Mikrodisk ($r = 1,84 \mu\text{m}$) ohne LC (oben) und mit LC (unten). Rechts: Halbwertsbreite der WGM als Funktion der Anregungsleistung oben: ohne LC und unten: mit LC.

Die Modenintensität steigt über der Laserschwelle auch nach dem Einbetten in den LC überlinear an, die Steigung ist etwas geringer als vorher. Auch das Verhalten der Linienhalbwidths ändert sich durch den umgebenden Flüssigkristall nicht signifikant, wenngleich der absolute Betrag der FWHM im LC über der Laserschwelle mit $0,2 \text{ meV}$ etwas höher liegt. Obwohl zu erwarten ist, dass es durch den Flüssigkristall zu höherer

Streuung kommt, welche die gemessene Laserschwelle des Resonators anhebt, ist bei der gezeigten Messung die Laserschwelle nach dem Einbetten in den LC mit $P_{th} = 449 \mu\text{W}$ niedriger als vorher ($P_{th} = 505 \mu\text{W}$). Es zeigt sich also, dass der die MD umgebende Flüssigkristall die Speisung der Mode im Laser-Regime nicht messbar negativ beeinflusst.

Da das Absinken der Laserschwelle nach dem Einbetten in den LC überraschend ist, wurde P_{th} von allen vermessenen Mikrodisk vor und nach dem Befüllen der Probe ausgewertet und ist in Abbildung 5.20 über dem Radius der MD aufgetragen, farblich codiert für MD ohne LC (schwarz) und mit LC (rot). Um die unterschiedlichen Trends der Daten zu verdeutlichen, wurden die Daten für die beiden Situationen jeweils linear angenähert, da der gezeigte Bereich des MD-Radius genügend klein ist, so dass ein linearer Zusammenhang zwischen P_{th} und Radius angenommen werden kann, während die Abnahme von P_{th} eigentlich proportional zu r^2 ist.[103]

Bei kleinen Radien (üblicherweise $0,75 - 1,25 \mu\text{m}$) steigt die Laserschwelle wieder an, BABA und SANO [103] und FUJITA et al. [104] führen das in ihren Arbeiten auf die bei geringen Radien dominant werdenden Verluste durch Oberflächenrekombinationen [105, 106] und ansteigende Streuung an Kantendefekten [107, 108] zurück, die mit der mit abnehmendem Modenvolumen exponentiell zunehmenden Güte konkurrieren. Die optimale Größe einer Mikrodisk bezogen auf die Laserschwelle hängt über die Oberflächenrekombinationsgeschwindigkeit mit der Dicke des Membranmaterials zusammen.

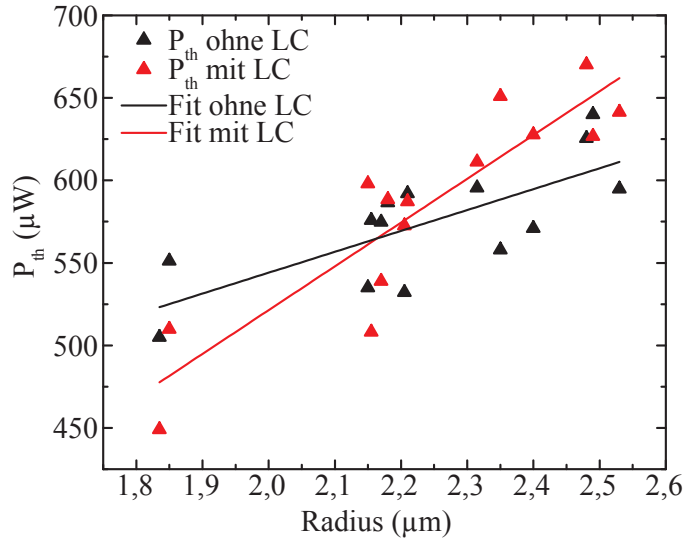


Abbildung 5.20.: Abhängigkeit der Laserschwelle der MDs vom Radius des Resonators. Schwarze Dreiecke: ohne LC, rote Dreiecke: mit LC. Die durchgezogenen Linien geben jeweils den Linearfit wieder.

Während die Laserschwelle durch den LC im mittleren Radiusbereich bei etwa $2,2 \mu\text{m}$ nicht messbar beeinflusst wird, steigt sie bei höheren Radien durch das Füllen mit dem Flüssigkristall deutlich an. Bei den geringsten Radien von $1,8 - 1,9 \mu\text{m}$ sinkt P_{th} hingegen

nach dem Einbetten in den Flüssigkristall ab. Während das Ansteigen der Laserschwelle bei größeren Radien auf Streuung sowohl des Pumplasers als auch des Photolumineszenzlichts im Flüssigkristall zurückgeführt werden kann, und damit kein intrinsischer Effekt ist, scheint das Absinken von P_{th} bei kleinen Radien diesem zu widersprechen.

Erklärt werden kann die unterschiedliche Steigung der Laserswellen mit und ohne LC mit einer Verschiebung der optimalen Größe der Mikrodisk im Flüssigkristall zu kleineren Radien, hervorgerufen dadurch, dass die Oberflächenrekombination und Streuung an den Kanten bei der MD im LC erst bei geringerem Modenvolumen dominant werden. Einerseits ist vorstellbar, dass das einbettende Material die Oberflächenrekombination des GaAs positiv beeinflusst, denn diese entsteht durch die unabgesättigten Bindungen (*dangling bonds*) an der GaAs Grenzfläche. Andererseits führt das Einbetten des Resonators in ein Material mit höherem Brechungsindex zu einem geringeren Einschlusspotential, wodurch die Mode sanfter eingeschlossen ist und nicht so rapide abfällt. Dies kann zu einer verbesserten Güte führen, wie es bereits bei Defektoresonatoren in 2D photonischen Kristallen bekannt ist. [47] In Bezug auf die PCs ist dies in den Grundlagen Kap. 2.3 besprochen. Hier würde eine Zunahme der Güte des Resonators zu einem Verzug der Dominanz von Oberflächenrekombination und Streuung führen. Vorstellbar ist außerdem, dass der veränderte Einschluss eine geringeren Streuung der photonischen Mode an Kantenunebenheiten hervorruft.

In diesem Kapitel wurde gezeigt, dass die hergestellten Mikrodisk über den Transparenzpunkt gepumpt werden können. Die Laserschwelle ist radiusabhängig und nimmt mit steigendem Radius zu. Das Einbetten der Resonatoren in den Flüssigkristall verschiebt die resonanten Moden zu niedrigeren Energien, wobei der Betrag der Energieänderung der WGM invers mit dem MD-Radius zusammenhängt. Auch der Abstand der Moden gleicher radialer und benachbarter azimuthaler Quantenzahl ist radiusabhängig. Mit zunehmender Resonatorgöße rücken die Moden immer näher zusammen, der Zusammenhang ist linear. Durch das Einbetten in den Flüssigkristall wird der Abstand zwischen den Moden ebenfalls vergrößert, denn es wird Einfluss auf den effektiven Radius der MD genommen. Die Laserschwelle der MD wird durch den LC unterschiedlich beeinflusst. Bei höheren Radien nimmt die Laserschwelle durch Streuung im LC zu, bei kleinen Radien nimmt P_{th} ab. Letzteres lässt sich durch veränderte Oberflächenrekombination, Streuung an den Kanten und verbesserte Güte durch einen sanfteren Einschluss erklären. Der kritische Radius, bei dem sich der Effekt umkehrt, liegt bei $2,15\text{ }\mu\text{m}$.

5.5. Photonische Kristalle mit Flüssigkristallen

In diesem Abschnitt soll gezeigt werden, dass die Kopplung eines photonischen Resonators mit einem nematischen Flüssigkristall auch bei einem photonischen Kristall angewendet werden kann. Der verwendete zweidimensionale photonische Kristall mit hexagonaler Symmetrie enthält eine L7-Kavität mit der Gitterkonstanten $a = 300\text{ nm}$ und dem Radius der Löcher $r = 80\text{ nm}$, eine elektronenmikroskopische Aufnahme einer

solchen Kavität ist im Inset von Abb. 6.1 gezeigt. Der PC zeigt unter kontinuierlicher Anregung bei $\lambda = 780$ nm wenige photonische Moden, die der spontanen Quantenpunktlumineszenz überlagert sind. Ein Spektrum der Photolumineszenz ist in Abbildung 5.21 unten gezeigt. Die Güte der Moden liegt bei $Q = 6060$.

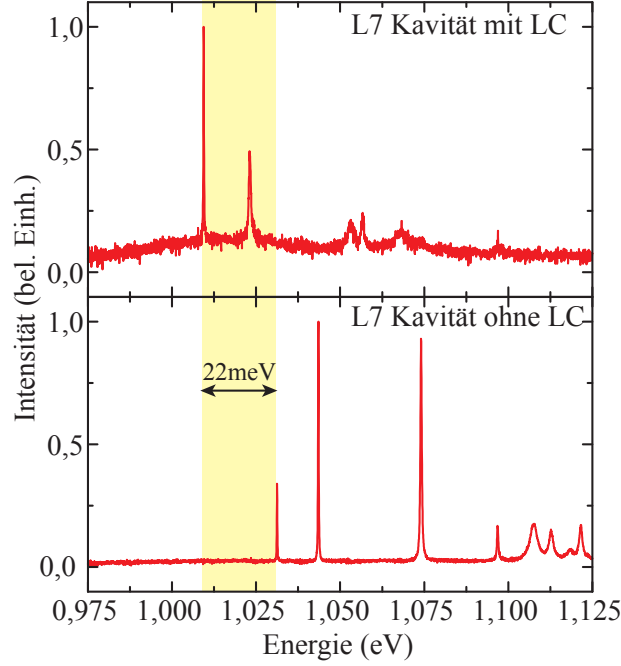


Abbildung 5.21.: Spektrum eines photonischen Kristalls mit L7-Defektresonator ohne LC (unten) und eingebettet im LC (oben).

Im Anschluss an diese Vorcharakterisierung wird der PC mit dem Flüssigkristall 5CB befüllt, und die Photolumineszenz wird erneut aufgenommen. Ein PL-Spektrum nach dem Befüllen mit dem LC ist in Abb. 5.21 oben gezeigt. Die Güte der Mode beträgt jetzt $Q = 5500$. Wie auch schon bei den Mikrodisk verschoben sich die photonischen Moden zu kleineren Energien. Die spektrale Verschiebung durch die Änderung des Brechungsindizes des MD-Hintergrundes beträgt hier $\Delta E = -22$ meV. Durch Streuung im Flüssigkristall nimmt die absolute Intensität der Lumineszenz der Probe ab, so dass das Hintergrundrauschen im Spektrum stärker wird.

Die Energieverschiebung der WGM in den MDs aus dem letzten Kapitel hervorgerufen durch das Einbetten in den LC (vergl. Abb. 5.18) beträgt maximal $\Delta E_{MD} = -9$ meV und ist invers vom Radius des Resonators abhängig. Es ist also naheliegend, dass das Modenvolumen der WGM die Durchstimmbarkeit beeinflusst. Das Volumen einer resonanten Mode in einer Mikrodisk mit einem Radius im Bereich von $2 \mu\text{m}$ beträgt nach SRINIVASAN et al. [109] etwa

$$V_{eff,MD} = 2 (\lambda_1/n_{HL})^3, \quad (5.9)$$

bei den besprochenen MDs beträgt die Wellenlänge etwa $\lambda_1 = 950$ nm.

Das Modenvolumen der resonanten Mode der geringsten Energie in einer L7-Kavität kann nach CHOI et al. [4] berechnet werden über

$$V_{eff,PC} = 1,3 (\lambda_2/n_{HL})^3, \quad (5.10)$$

wobei die Wellenlänge in diesem Fall $\lambda_2 = 1150$ nm. Aus den Verhältnissen der Wellenlänge folgt, dass $\lambda_2 = 1,2 \times \lambda_1$ und damit für das Modenvolumen des photonischen Kristalls

$$\begin{aligned} V_{eff,PC} &= 1,3 (1,2\lambda_1/n_{HL})^3 \\ \Rightarrow V_{eff,PC} &= 2,25 (\lambda_1/n_{HL})^3. \end{aligned}$$

Im Rahmen dieser Abschätzung sind die Modenvolumina der Moden im photonischen Kristall und in der Mikrodisk also etwa gleich. Die stärkere Verschiebung beim Einbetten des PCs in den Flüssigkristall muss also an anderen Effekten liegen.

Die photonischen Mode in der Kavität des PCs ist in lateraler Richtung durch die photonische Bandlücke eingeschlossen, die hervorgerufen wird durch die dielektrische Periodizität. Da nach HENNESSY et al. [50] Änderungen des Lochradius eines photonischen Kristalls auch 8 – 10 Perioden von der Kavität entfernt den Einschluss noch stark beeinflussen, ist davon auszugehen, dass das elektrische Feld der Mode erst nach einigen Perioden auf null abfällt. Dies bedeutet aber auch, dass sich beim PC an dieser Stelle stärker Einfluss nehmen lässt auf die Mode als bei der MD, was auch in Abb. 2.7 auf der rechten Seite zu sehen ist. Der Abbildung kann man entnehmen, dass sich die TE-Bandlücke bei Änderung des Brechungsindexkontrastes stark verschiebt. Der höhere Einfluss des lateralen Einschlusses auf die WGM im photonischen Kristall gegenüber der Mikrodisk kann die höhere Energieänderung der Mode im PC beim Einbetten in den LC erklären.

An dem in in LC gefüllten photonischen Kristall wird nun in z -Richtung eine Spannung angelegt, um die LC-Moleküle im elektrischen Feld auszurichten. Während die Spannung schrittweise erhöht wird, werden bei jedem Schritt PL-Spektren der Probe aufgenommen, um die Verschiebung der WGM der Kavität zu dokumentieren. Die spektrale Verschiebung der Mode geringster Energie des oben beschriebenen PCs ist in Abbildung 5.22 gezeigt.

Die Mode schiebt zu höheren Energien, was konsistent ist mit der E -Feld-abhängigen Energieänderung der WGM der Mikrodisk, wobei die Modenverschiebung hier mit maximal $\Delta E = 0,5$ meV um den Faktor zehn unter der maximalen Verschiebung im Fall der MD liegt. Die Verschiebung sättigt beim PC bei etwa 15 V, bei der Mikrodisk liegt dieser Wert mit 30 V doppelt so hoch.² Vergleichsmessungen unter den selben Bedingungen aber ohne elektrisches Feld bestätigen, dass die spektrale Modenverschiebung im PC nicht durch Erhitzung des LCs oder andere E -Feld-unabhängige Effekte hervorgerufen wird.

²Der Abstand der Elektroden ist bei beiden Experimenten gleich.

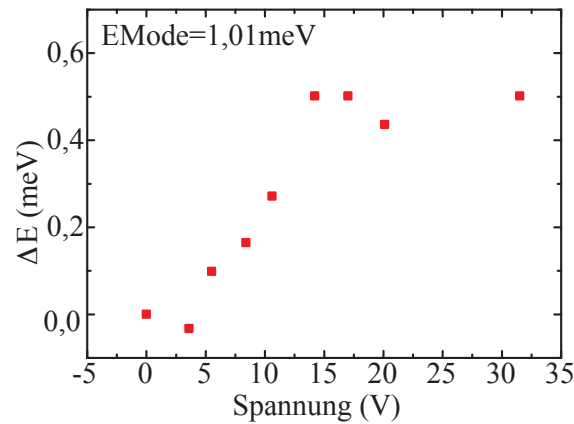


Abbildung 5.22.: Verschiebung einer photonischen Mode des photonischen Kristalls mit L7-Kavität im äußeren elektrischen Feld in z -Richtung.

Obwohl die Energieänderung der WGM im photonischen Kristall durch das Füllen mit dem LC doppelt so hoch ist wie bei der Mikrodisk, bleibt die Verschiebung durch das Ausrichten der LC-Moleküle im elektrische Feld um den Faktor zehn hinter der MD zurück. Dies kann darauf zurückgeführt werden, dass sich die Flüssigkristallmoleküle wegen der stark inhomogenen Oberflächen des PCs nicht homogen verankern können. Bei der Messung des Direktorfeldes bei den Mikrodisk wurde gezeigt, dass sich die Verankerung der Moleküle normalerweise noch weit ins Kontinuum fortsetzt.

6. Permanentes Durchstimmen photonischer Kristalle

6.1. Durchstimmen mit Siliziumdioxid

Die in diesem Kapitel verwendeten Strukturen sind zweidimensionale photonische Kristalle mit hexagonaler Symmetrie und eingebautem L7-Defektoresonator, die Lichteinkopplung in den Resonator geschieht über Quantenpunkte. Die Herstellung und der Aufbau der PCs ist in Kapitel 3.3 genau beschrieben, hier sind die Gitterkonstante des PCs $a = 300\text{ nm}$ und der Lochradius $r = 80\text{ nm}$. Ein Beispielspektrum eines solchen photonischen Kristalls ist in Abbildung 6.1 gezeigt, im Inset sieht man außerdem eine elektronenmikroskopische Aufnahme einer Kavität. Ziel soll es hier sein, die photonischen Moden in den Kavitäten schrittweise permanent durchzustimmen, um eine Möglichkeit zu erhalten, die Mode auf eine bestimmte Wellenlänge einzustellen.

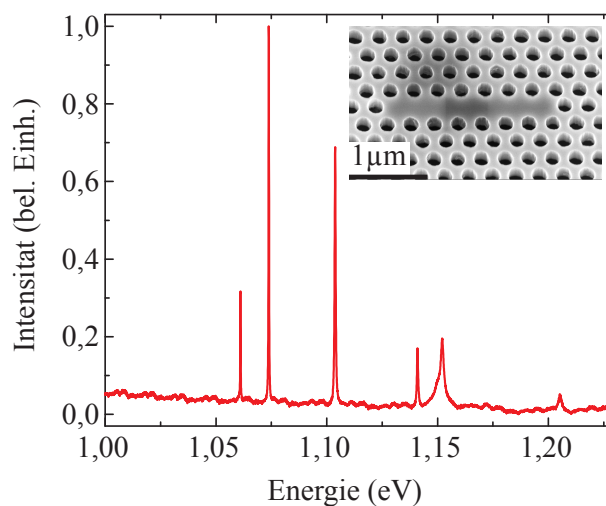


Abbildung 6.1.: Spektrum eines photonischen Kristalls mit L7-Kavität, im Inset eine elektronenmikroskopische Aufnahme.

6.1.1. Experimentelle Durchführung

Das erste Verfahren ist das schrittweise Aufdampfen von SiO_2 mittels Elektronenstrahlverdampfen. Das SiO_2 mit einem Brechungsindex von 1,5 wird so den effektiven Brechungsindex des Hintergrundes des Resonators anheben, der anfangs gleich eins ist.

Zum Aufbringen der SiO₂-Schichten wird die vorcharakterisierte Probe mit den photonischen Kristallen jeweils in das Vakuum der Aufdampfanlage aufgebracht, wo pro Schritt 3 nm SiO₂ aufgedampft werden. Da das Siliziumdioxid mit 1713°C einen sehr hohen Schmelzpunkt hat, müssen die Spannung des Verdampfers auf $U = 7,5$ kV und der Strom auf $I = 0,02$ A eingestellt werden, um stabile Aufdampfraten (~ 2 Å/s) zu erhalten. Die Aufdampfdauer für eine Schichtdicke von 3 nm liegt so nur im Bereich von Sekunden. Das bedeutet aber auch, dass man beim Aufbringen von Schichten von wenigen Nanometern an die Grenzen des Machbaren beim Elektronenstrahlverdampfens stößt.

Nach jedem Aufdampfschritt wird bei Raumtemperatur eine Photolumineszenzmessung an den photonischen Kristallen durchgeführt, um die Position der Moden zu dokumentieren.

6.1.2. Auswirkung auf Modenenergie und Güte

Die Position einer Resonatormode in der Kavität des photonischen Kristalls ist über der Schichtdicke des SiO₂ in Abbildung 6.2 links aufgetragen, die experimentalen Daten werden von den blauen Quadraten wiedergegeben. Die Mode rotverschiebt mit zunehmender Dicke des SiO₂, d.h. dass durch das Beschichten das Modenvolumen zunimmt, wie es auch schon von den Mikrodisk bekannt ist. Die Verschiebung sättigt nach 40 nm, die Mode hat zu diesem Zeitpunkt etwa -8 meV verschoben. Pro Beschichtung mit 3 nm SiO₂ schiebt die Mode im Schnitt etwa $\Delta E_{Mode}(\text{SiO}_2) = -0,6$ meV.

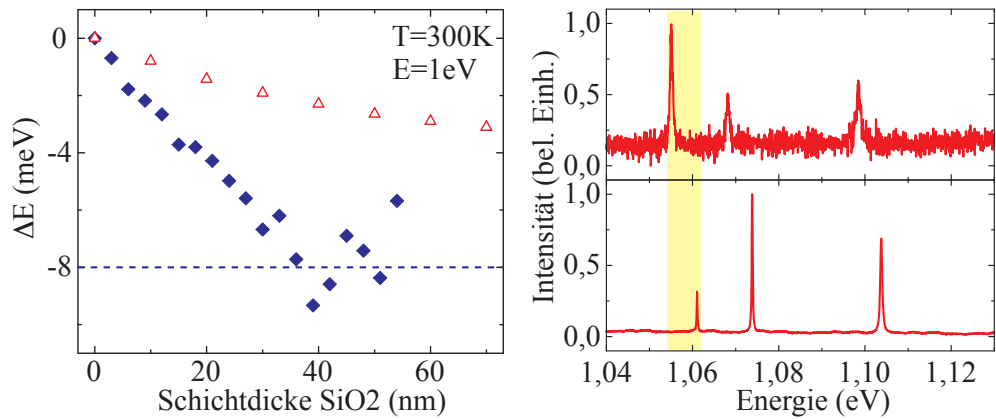


Abbildung 6.2.: Links: Verschiebung einer Mode im photonischen Kristall mit steigender Schichtdicke SiO₂. Blaue Quadrate: experimentelle Daten, rote Dreiecke: FDTD Simulationen. Rechts: Spektren vor dem Beschichten (unten) und mit 40 nm SiO₂ (oben).

Die photonische Mode im Inneren der L7-Kavität wird mit dem FDTD (*Finite-Difference Time-Domain*) Verfahren simuliert, um die Abhängigkeit der Modenenergie

von der Schichtdicke SiO_2 zu verifizieren.¹ Für die Simulation wird eine Membrandicke von 240 nm mit einem Brechungsindex von 3,41 angenommen. Schrittweise wird dann auf einer Seite der Membran ein Bereich mit geänderten Brechungsindex 1,5 und zunehmender Dicke angesetzt, um die SiO_2 -Schicht zu simulieren. Zur effektiven Analyse der Zeitdaten aus der FDTD Simulation wird die Filter-Diagonalisierungsmethode *Harmonic Inversion* verwendet.[110]

In Abb. 6.2 links sind die Simulationsdaten der Modenverschiebung mit den roten Dreiecken dargestellt. Die simulierte photonische Mode gibt das Verhalten der realen Mode gut wieder, sie sättigt aber erst nach einer Schichtdicke von etwa 70 nm und hat dabei mit $-3,1$ meV eine um etwa den Faktor 2,5 geringere Verschiebung. Zu erklären ist diese Diskrepanz mit der geringeren Güte (siehe dazu auch Abb. 6.3) der Mode im Experiment gegenüber der Simulation. Das bedeutet, dass ein größerer Teil des elektrischen Feldes der Mode – hervorgerufen z.B. durch Streuung an den nicht perfekten Ätzkanten – aus der Membran herauslecken kann. Eine Einflussnahme auf die Mode über den Resonatorhintergrund führt so zu einem größeren Effekt. Dies spiegelt auch die Simulationen im Kapitel der Mikrodisks im Flüssigkristall in 5.4.2 wieder.

Auf der rechten Seite von Abb. 6.2 sind zwei Spektren des photonischen Kristalls gezeigt: Das untere Spektrum ist vor der Beschichtung aufgenommen, das obere Spektrum nach der Sättigung bei einer Schichtdicke von 55 nm SiO_2 . Die absolute Intensität der Lumineszenz der resonanten Mode ist gegenüber dem Hintergrund durch die Beschichtung stark abgefallen, so dass das Spektrum jetzt stark verrauscht ist. Zudem ist die Modengüte abgefallen, weshalb diese Größe über den gesamten Beschichtungsprozess ausgewertet und in Abbildung 6.3 über der Schichtdicke des SiO_2 aufgetragen wurde (blaue Quadrate). Außerdem wird die Güte der Mode ebenfalls in den Simulationsdaten ausgewertet und ist durch die roten Dreiecke in der Abbildung repräsentiert.

Die Güte der photonischen Mode beträgt am Anfang des Experiments etwa 4000, in der Simulation ist sie mit 11000 wiederum um den Faktor 2,5 größer, dies liegt – wie oben schon beschrieben – an Streuung in der realen Kavität. Nach 55 nm SiO_2 fällt die Güte der WGM im Experiment um 3000 auf ein Viertel des ursprünglichen Wertes ab. Parallel zu diesen experimentellen Daten verlaufen die Simulationsdaten, in denen die Güte auch um etwa 3000 auf den Wert 8000 abfällt.

Ein Grund für die abnehmende Güte, der aber nur im Experiment vorlag, ist die schlechte Bedeckung des Resonators mit SiO_2 , hervorgerufen durch die äußerst niedrige Aufdampfrate am Rande der Auflösungsgrenze. In der Folge kam es zu schlechter Qualität des aufgedampften Siliziumdioxids, was sowohl das einfallende Pumplaserlicht als auch das Photolumineszenzlicht des photonischen Kristalls verstärkt streut. Da dies aber nur die experimentellen Daten beeinflusst und in der Simulation nicht beachtet wurde, ist davon auszugehen, dass dieser Effekt vor allem die absolute Modenintensität mindert, nicht aber die Lebensdauer des Photons im Inneren des Resonators.

¹Die Simulationen werden ebenfalls von Stefan Declair aus der Gruppe von Jens Förstner an der Universität Paderborn durchgeführt.

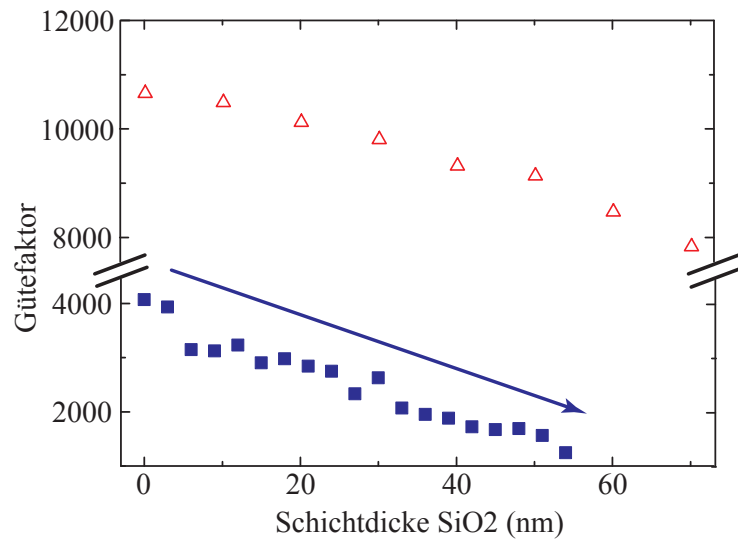


Abbildung 6.3.: Abhängigkeit der Modengüte im photonischen Kristall von der Schichtdicke des SiO₂. Blaue Quadrate: experimentelle Daten, rote Dreiecke: FDTD Simulationen. Man beachte die für die Übersichtlichkeit der Auftragung unterbrochene y -Achse.

Ein noch größerer Effekt auf die Güte ist dadurch zu erwarten, dass das Aufdampfen des Materials mittels Elektronenstrahl nur auf der Oberseite des Resonators eine Schicht abscheidet. Die photonische Mode sieht dadurch in z -Richtung ein unsymmetrisches Brechungsindexprofil. Die Lage Quantenpunkte liegt nun zudem nicht mehr in der Mitte des Resonators und damit nicht mehr beim Maximum des elektrischen Felds, was zu einer verminderten Speisung der Mode führt.

Auch in der Simulation wurde der Resonator durch das schrittweise Aufbringen einer Schicht des Brechungsindex 1,5 unsymmetrisch. Die Verschiebung des Maximums der WGM aus der Resonatormitte heraus ist in Abbildung 6.4 deutlich zu erkennen. In dieser Simulation ist die kumulierte Energie, die dominiert ist von der fundamentalen Mode des Resonators, im Schnitt durch die Membran aufgetragen über der z -Koordinate. Deutlich zu erkennen ist in dieser Auftragung die Verschiebung des Maximums des elektrischen Feldes aus der Resonatormitte heraus mit zunehmender Schichtdicke. D.h. sowohl in der Simulation als auch im Experiment führt die Asymmetrie des Resonators in z -Richtung zu der zahlenmäßig gleichen Abnahme der Güte.

Diese Effekte zusammengekommen – Streuung, unsymmetrischer Resonator, Modenspeisung verringert – führen zu der starken Abnahme der Gütefaktoren. Es ist also wünschenswert, diese drei Faktoren in den Griff zu bekommen, um die Methode des permanenten Durchstimmens zu verbessern. Um die Streuung zu verringern, reicht es aus, die Qualität der Beschichtung anzuheben. Da die Schrittweite von 3 nm beim Elektronenstrahlverdampfen schon etwa der minimalen Schichtdicke entspricht, muss man auf eine

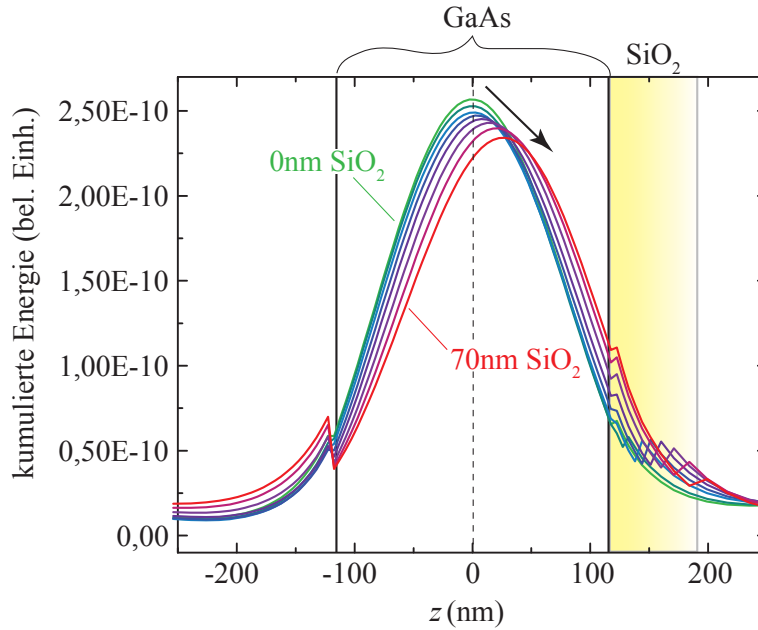


Abbildung 6.4.: Kumulierte Energie der Mode im Schnitt durch die Membran, aufgetragen über der z -Koordinate für verschiedene Schichtdicken SiO₂, FDTD Simulation.

andere Beschichtungsmethode zurückgreifen. Um die Mode nach dem Beschichten nicht in einen unsymmetrischen Resonator zu zwingen, sollte die neue Methode die Membran von allen Seiten gleichmäßig beschichten. Dadurch wäre im selben Schritt auch erreicht, dass das Maximum des elektrischen Felds der WGM auch bei einer hohen Schichtdicke mit der Lage der Quantenpunkten zusammenfällt.

Im nächsten Kapitel wird eine Beschichtungsmethode diskutiert, die diese Eigenschaften mitbringt: die Atomlagenabscheidung.

6.2. Atomlagenabscheidung von Tantalpentoxid

Die photonischen Kristalle, die in diesem Kapitel zur Verwendung kommen, sind H₂-Kavitäten mit einer Gitterkonstanten von $a = 410\text{ nm}$ und einem Lochradius von $r = 125\text{ nm}$. Ein PL-Spektrum der unbeschichteten Probe ist in Abbildung 6.5 gezeigt. Im Inset ist zudem eine elektronenmikroskopische Aufnahme des Resonators zu sehen. Der photonische Kristall soll hier nun mit Hilfe der Atomlagenabscheidung (ALD) konform beschichtet werden, um die Resonatormode permanent durchstimmen zu können.

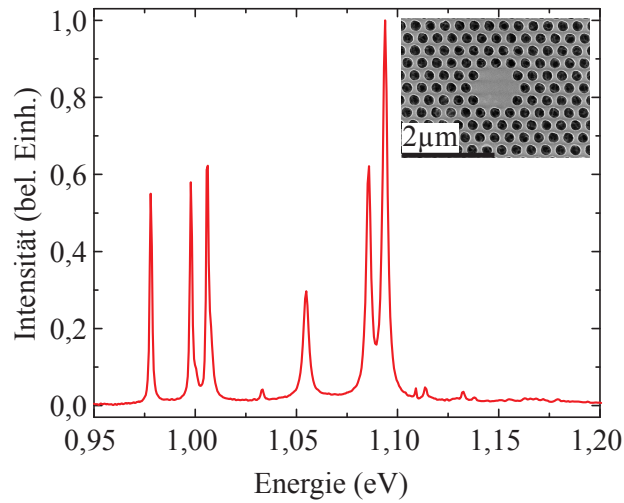


Abbildung 6.5.: PL-Spektrum des H₂-photonischen Kristalls vor der Beschichtung, im Inset eine elektronenmikroskopische Aufnahme der Kavität.

6.2.1. Prinzip der Atomlagenabscheidung

Die Atomlagenabscheidung ist ein Depositionsverfahren, mit dem sich verschiedene Materialien sowohl amorph als auch kristallin mit Atomlagengenauigkeit selbstregulierend auf unterschiedlichste Substrate aufbringen lassen. In unserem Fall wird Tantalpentoxid (Ta₂O₅) als Beschichtungsmaterial verwendet.

In einem Heiwand-ALD-Reaktor wird die mit photonischen Kristallen strukturierte und vorcharakterisierte Probe auf 250°C aufgeheizt. Als Trgergas dient Stickstoff, die Precursorgase sind Ta(OEt)₅ und H₂O₂ (30 %). Fr jede Lage wird ein Zyklus von vier Schritten durchlaufen: Zuerst wird das erste Precursorgas zur Probe eingelassen und bildet selbstregulierend auf der Probenoberflche eine monomolekulare Schicht. Der nchste Schritt ist das Splen mit N₂, wonach dann das zweite Precursorgas eingelassen wird. Die Molekle des Precursors zwei reagieren mit Precursor eins auf der Probe, wodurch eine monomolekulare Schicht Ta₂O₅ entsteht. Danach wird wieder mit N₂ gesplt, um die Mglichkeit fr einen weiteren Zyklusdurchlauf zu haben.

Weil die Precursorgase von allen Seiten an die Membran gelangen knnen, ist das Verfahren der Abscheidung hier konform: Auch in den Lchern wird Material abgeschieden. Der Brechungsindex von Ta₂O₅ betrgt $n_{Ta_2O_5} = 2,21$. [28]

Da in diesem Experiment die ALD in einer Kooperation am Max Planck Institut in Halle durchgefhrt wird, werden die Schrittweiten wieder auf 2 – 3 nm eingestellt, es sei aber darauf hingewiesen, dass die Schichten auch weitaus dnner abgeschieden werden knnen, ohne dass die Qualitt darunter leidet.

6.2.2. Ergebnisse der Atomlagenabscheidung

AFM Messungen der Probenoberfläche werden vor der ersten und nach der letzten Beschichtung aufgenommen, um die Qualität der Schichten zu dokumentieren. Die Aufnahmen sind für das reine GaAs-Substrat links und die mit Ta_2O_5 beschichtete Probe rechts in Abbildung 6.6 gezeigt. Die Rauigkeit für das epitaktische GaAs ist $0,27 \text{ nm}$ und für die mit Ta_2O_5 beschichtete Probe $1,4 \text{ nm}$, sie hat sich also durch das Beschichten etwa verfünffacht. Die Oberfläche ist aber für die Mode mit einer minimalen Wellenlänge im GaAs von etwa 350 nm immer noch annähernd glatt.

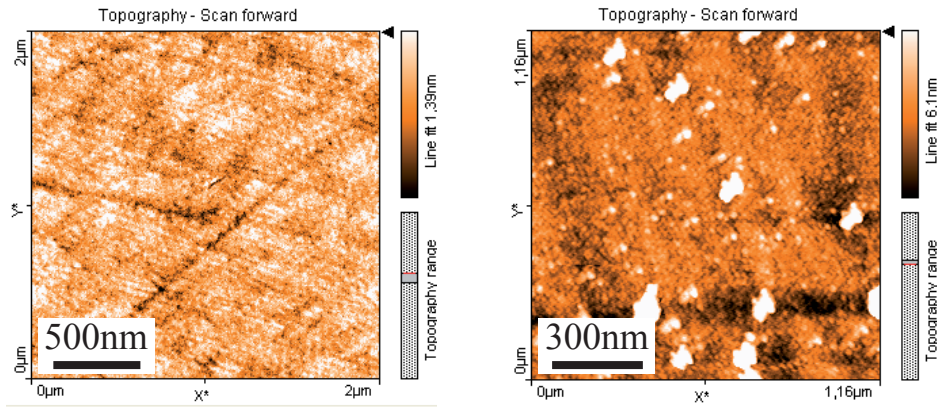


Abbildung 6.6.: AFM Aufnahmen von links: der unbeschichteten GaAs-Oberfläche und rechts: der mittels ALD mit Ta_2O_5 beschichteten Probe.

Wie auch schon bei der Beschichtung mit SiO_2 im letzten Kapitel wird die Energie einer resonanten Mode im photonischen Kristall nach jeder Deposition aufgenommen. Die Messergebnisse sind in Abbildung 6.7 dokumentiert. Auf der linken Seite ist die Modenenergie schichtdickenabhängig aufgetragen. Die WGM verschiebt wiederum wegen der Zunahme des Hintergrund-Brechungsindizes und der damit verbundenen Vergrößerung des Modenvolumens zu niedrigeren Energien. Pro Beschichtungsschritt mit 3 nm Ta_2O_5 beträgt die Verschiebung $\Delta E_{\text{Mode}}(\text{Ta}_2\text{O}_5) = -2,2 \text{ meV}$ und ist damit etwa um den Faktor 3,5 höher als bei der Beschichtung mit SiO_2 . Nach der letzten Beschichtung beträgt die Schichtdicke 9 nm , wobei eine Verschiebung von $6,5 \text{ meV}$ erreicht ist.

Die verbesserte Durchstimmbarkeit der Mode bei der ALD von Ta_2O_5 gegenüber dem Verdampfen von SiO_2 lässt sich auf mehrere Faktoren zurückführen. Zwei davon lassen sich quantitativ abschätzen:

1. Das Tantalpentoxid hat mit $2,21$ einen um ca. 50% höheren Brechungsindex als das Siliziumdioxid. Die Eindringtiefe der photonischen Mode in den Hintergrund der Membran ist invers proportional zur Brechungsindexdifferenz $\Delta n_{\text{GaAs}} - n_{\text{BG}}$ zwischen Membran und Hintergrund analog zum endlichen Potentialtopf. Dies gilt, wenn der Resonator vollkommen in das Material eingebettet ist, die Dicke der

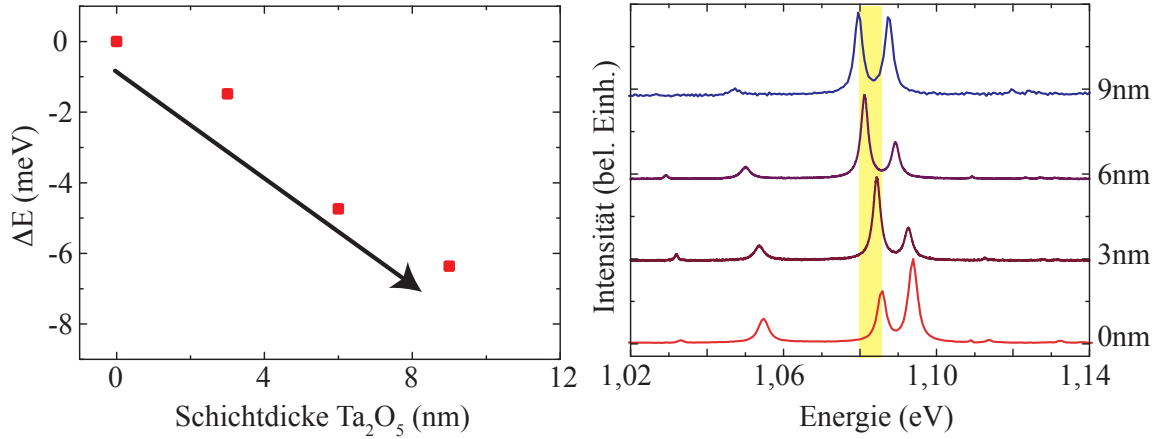


Abbildung 6.7.: Links: Verschiebung einer resonanten Mode im photonische Kristall mit H2-Kavität in Abhängigkeit der Schichtdicke ALD-Tantalpentoxid. Rechts: Ausschnitte der PL-Spektren nach jedem Beschichtungsschritt.

Schicht also unendlich. Da hier nur der anteilige Unterschied der Modenverschiebung zwischen den beiden Fällen SiO₂ und Ta₂O₅ untersucht werden soll und keine absoluten Eindringtiefen, ist es berechtigt, die Näherung für die prozentuale Differenz der Modenverschiebung ΔE_{Mode} bzw. $\Delta \lambda_{Mode}$ für die einzelnen Beschichtungsmaterialien auch für eine schrittweise Beschichtung anzusetzen. Das bedeutet, dass man davon ausgeht, dass sich eine Änderung des Brechungsindexkontrastes anteilig gleich auf die Eindringtiefe in den Hintergrund auswirkt, egal ob man eine unendlich dicke Schicht aufbringt oder nur wenige Nanometer.

Nimmt man nun realistischerweise an, dass die Änderung der Modenwellenlänge pro Beschichtungsschritt maximal so groß sein kann, wie wenn sie proportional zur Eindringtiefe wäre, ergibt sich für den oberen Extremwert also die Abhängigkeit $\Delta \lambda_{Mode} \propto (n_{GaAs} - n_{BG})^{-1}$. Nach Einsetzen der beiden unterschiedlichen Brechungsindexkontraste für die beiden Situationen kann man mit Hilfe des Verhältnisses aus der durchschnittlichen Verschiebung pro 3 nm SiO₂ auf die theoretische Verschiebung für das Ta₂O₅ schließen:

$$\Delta \lambda_{theo,1}(Ta_2O_5) = \frac{n_{GaAs} - n_{SiO_2}}{n_{GaAs} - n_{Ta_2O_5}} \times \Delta \lambda_{Mode}(SiO_2) = 1,02 \text{ nm}.$$

Umgerechnet in Energie bedeutet dies eine Modenverschiebung von

$$\Delta E_{theo,1}(Ta_2O_5) = 0,95 \text{ meV}.$$

Dieser Wert liegt immer noch deutlich unter der Verschiebung im Experiment mit $\Delta E_{Mode}(Ta_2O_5) = -2,2 \text{ meV}$.

2. Zusätzlich zum schlechteren Einschluss der Mode in der Kavität nach der Beschichtung mit Ta_2O_5 gegenüber dem SiO_2 schiebt die Mode bei der ALD stärker, weil die Membran von allen Seiten beschichtet wird und nicht nur von der Oberseite bedampft wie beim Siliziumdioxid. Damit verdoppelt sich die theoretische Modenverschiebung, denn man beeinflusst die Mode auf der Ober- wie auf der Unterseite, und man erhält:

$$\Delta E_{theo,2}(\text{Ta}_2\text{O}_5) = 2 \times \Delta E_{theo,1}(\text{Ta}_2\text{O}_5) = -1,90 \text{ meV}.$$

Dieser Wert von $\Delta E_{theo}(\text{Ta}_2\text{O}_5)$ gibt schon überraschend gut die reale Verschiebung (2,2 meV) wieder, wenngleich die Mode im Experiment immer noch etwas stärker schiebt; es müssen also noch andere Effekte auftreten. Bereits diskutiert wurde, dass die Bedeckung der Probe mit Siliziumdioxid beim Verdampfen nicht perfekt ist, was eine geringere Modenverschiebung in diesem Experiment verursacht haben könnte, denn der effektive Brechungsindex des Hintergrundes wäre so geringer.

Desweiteren muss beachtet werden, dass bei der ALD auch Material in den Löchern des photonischen Kristalls abgeschieden wird, und damit für die photonische Bandlücke der Brechungsindexkontrast verändert wird. In Abbildung 2.7 in den Grundlagen Kapitel 2.3 wurde gezeigt, dass die Bandlücke für TE-Moden in einem zweidimensionalen photonischen Kristall mit Abnahme des Brechungsindexkontrasts kleiner wird, sich also auch die Energie der im Resonator eingeschlossenen Mode verschiebt. Ein schwächerer Einschluss bedeutet hier wiederum eine Rotverschiebung der Mode wegen der Vergrößerung des effektiven Resonatorvolumens.

Diese Effekte zusammengefasst erklären zufriedenstellend die höhere Modendurchstimmbarkeit pro Beschichtungsschritt bei der ALD mit Ta_2O_5 . Sie lassen außerdem erwarten, dass die bei Sättigung maximal erreichbare Verschiebung hier deutlich über der Sättigungsverschiebung beim Verdampfen des SiO_2 (max. -8 meV) läge. Nimmt man an, dass sich die Sättigungsverschiebung um den gleichen Faktor 3,5 erhöht, wie die Modenverschiebung pro Abscheidungsschritt, kann eine maximale Modendurchstimmbarkeit von etwa -28 meV für die ALD erwartet werden.

In Abb. 6.7 sind auf der rechten Seite Ausschnitte der PL-Spektren des photonischen Kristalls nach jedem Beschichtungsschritt gezeigt. Zu erwähnen ist an dieser Stelle, dass in dem gemessenen Bereich keine Verschlechterung der Resonatorgüte festgestellt wird, was darauf schließen lässt, dass die Schichten Tantalpentoxid von hoher Qualität und symmetrisch abgeschieden sind.

7. Durchstimmen von Mikrodisks mit Polyelektrolyten

7.1. Grundlagen und Eigenschaften von Polyelektrolyten

7.1.1. Deposition von Polyelektrolyten

Lange Zeit war es nur möglich, monomolekulare Schichten mit Hilfe der Langmuir-Blodgett Technik abzuscheiden. Diese Technik wurde bereits in den dreißiger Jahren des letzten Jahrhunderts von BLODGETT und LANGMUIR entwickelt [111, 112]: Bringt man amphiphile Moleküle (z.B. Fettsäure) auf eine Wasseroberfläche, bildet sich an der Grenzfläche Wasser-Luft eine monomolekulare Schicht der Moleküle – wenn die kritische Konzentration zur Bildung von Mizellen nicht überschritten wurde.

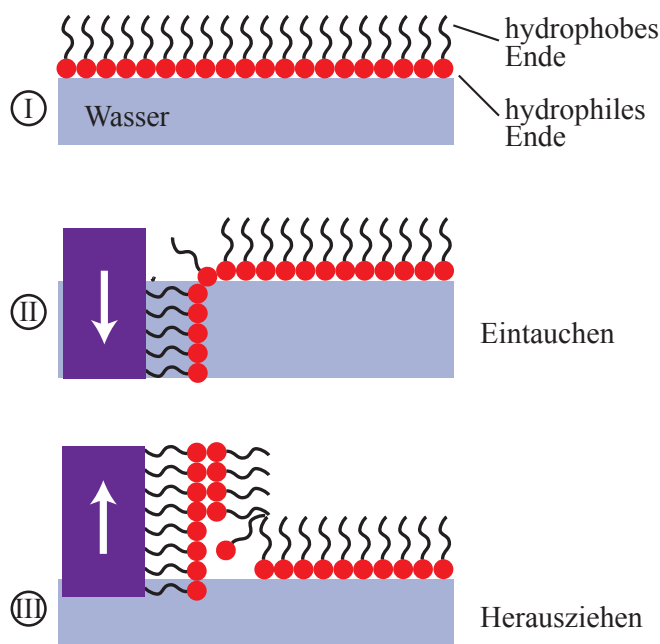


Abbildung 7.1.: Abscheidung monomolekularer Schichten von amphiphilen Molekülen mittels Langmuir-Blodgett Technik.

Die amphiphilen Moleküle haben ein hydrophiles und ein hydrophobes Ende und richten sich dementsprechend auf der Wasseroberfläche favorisiert, wie in Abbildung 7.1 (I)

gezeigt, aus. Durch Eintauchen oder Herausziehen eines Festkörpers kann schrittweise eine monomolekulare Schicht abgeschieden werden, wobei die Moleküle beim Eintauchen mit der hydrophilen Seite nach außen haften bleiben (II), beim Herausziehen dann mit der hydrophoben Seite nach außen (III). Die Nachteile dieser Technik sind, dass nur ganz bestimmte Moleküle auf diese Weise abgeschieden werden können, und dass die Schichten oftmals fehlerhaft sind, weil die Haftung durch Van-der-Waals-Kräfte auf der Oberfläche nur sehr gering ist.

Layer-by-Layer Deposition

In den 90er Jahren des letzten Jahrhunderts wurde die Layer-by-Layer (LbL) Deposition entwickelt [113]-[116], bei welcher (mindestens) zwei unterschiedlich geladene Molekülararten durch Adsorption alternierend abgeschieden werden.

Die Moleküle, die für diese Technik zur Verfügung stehen, reichen von kleinen, organischen oder anorganischen Molekülen über Makromoleküle, Biomakromoleküle so wie Proteine oder DNA bis hin zu Kolloiden wie metallischen oder oxidischen Kolloiden oder Latexpartikeln [117, 118]. Die LbL-Deposition basiert auf nicht-kovalenten, elektrostatischen Wechselwirkungen zwischen Kationen bzw. Anionen in Lösung und einer polaren Substratoberfläche. Ein typisches Beispiel für mit LbL-Deposition abscheidbare Moleküle sind Polyelektrolyte¹ in wässriger Lösung.

Wie in Abbildung 7.2 gezeigt, werden die Polyanionen von einer positiv geladenen Substratoberfläche angezogen und lagern sich durch die elektrostatische Wechselwirkung dort an. Dieser Prozess ist durch die Abstoßung der Moleküle untereinander selbstregulierend und beschränkt sich auf eine Monolage. Durch die Bildung der geladenen Monolage wird die Oberflächenladung des Substrates abgeschirmt und die Oberfläche wird (nach einem Waschschrift in Reinstwasser) attraktiv für die Polykationen, die sich ebenfalls auf Grund der elektrostatischen Anziehung der Polyanionen auf der Oberfläche anlagern und eine Monolage bilden. Nach einem weiteren Waschschrift ist das Substrat bereit für weitere Schichten. Für die Depositionsschritte wird das Substrat lediglich einige Minuten bis Stunden in die entsprechende Lösung getaucht.

Die Nutzung von Polyelektrolyten für die LbL Deposition ist laut DECHER [118] besser geeignet als die kleineren Moleküle, weil die großen Polymer-Moleküle besser über Defekte brücken können. Der lineare Wachstum der Filmdicke mit den Depositionsschritten ist hauptsächlich von den Eigenschaften der Polyelektrolyte abhängig und nicht vom Substrat oder der Substratladungsdichte, so dass die Wachstumsgeschwindigkeit der Schichten und die Rauigkeit für unterschiedliche Substrate meist ähnlich ist.

Die Oberflächeneigenschaften von so präparierten Filmen ändern sich jeweils mit der oben liegenden Schicht, so z.B. Kontaktwinkel, chemische Zusammensetzung und ξ -Potential. Die Filme sind normalerweise nicht doppelbrechend, weil sie in der Wachstumsrichtung isotrop sind. Eine definierte Multilagen-Struktur kann üblicherweise nicht

¹Wasserlösliche Moleküle mit großer Kettenlänge und entweder kationischen oder anionischen dissoziierbaren Gruppen

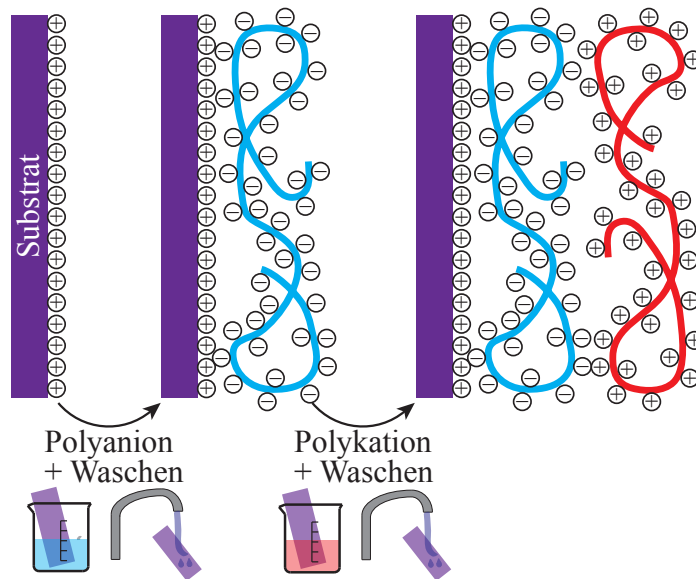


Abbildung 7.2.: Layer-by-Layer Deposition von Polyelektrolyten auf einer positiv geladenen Substratoberfläche.

gemessen werden, weil die Schichten nicht eindeutig voneinander getrennt, sondern ineinander verschmiert aufwachsen. Zudem weisen die Schichten im Allgemeinen wegen der hohen ionischen Bindungsenergie gute Alterungseigenschaften, Lösungsmittelbeständigkeit und thermische Stabilität auf, obwohl das System nicht im thermodynamischen Gleichgewicht ist. [119]

Aufschleudern von Polyelektrolytschichten

Die Layer-by-Layer Deposition von Polyelektrolyten, die auf der Selbstdiffusion der Moleküle zur Substratoberfläche beruht, ist stark abhängig vom pH-Wert der Lösung, von der Adsorptionszeit, der Polyelektrolyt-Konzentration, dem Anteil von zugefügten Salzen und der Waschdauer, weshalb die Reproduzierbarkeit der Schichtgüte stark schwanken kann. In 2003 haben deshalb CHIARELLI et al. [120] und CHO et al. [121] fast zeitgleich Arbeiten über das Aufschleudern von Polyelektrolyt-Doppelschichten veröffentlicht, was die genannten Reproduzierbarkeitsprobleme verbessert und zudem die Prozesszeit stark verkürzt.

Im Gegensatz zur LbL Deposition wird beim Aufschleudern die Lösung der Polyanionen oder -kationen auf das sich drehende Substrat getropft, so dass die Kontaktzeiten sehr kurz sind. Die Anordnung auf der Oberfläche und das Entfernen von nur schwach gebundenen Polymergruppen passieren hier sehr schnell, und auch das Wasser wird fast instantan herausgeschleudert, so dass die molare Konzentration der Polyelektrolytmole-

küle größer wird. Zudem schirmt die Anwesenheit der Wassermoleküle bei der LbL Deposition die elektrostatische Wechselwirkung ab. Beide Effekte führen dazu, dass – bei gleicher molarer Anfangskonzentration – die Schichtdicke bei aufgeschleuderten Schichten schneller zunimmt als bei durch LbL Deposition abgeschiedenen Schichten (in der zitierten Arbeit um den Faktor sechs) [121]. Überraschenderweise ist auch die Oberflächenrauigkeit beim Schleuderprozess um mehr als den Faktor zwei geringer, was die Autoren durch die Scherkräfte der Luft beim Schleudern erklären.

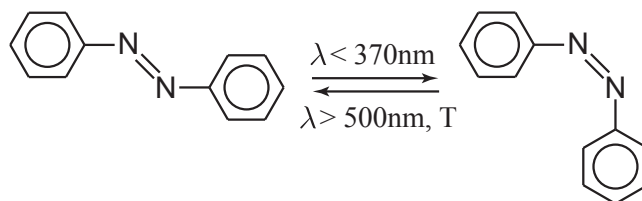
CHIARELLI et al. [120] finden in ihrer Arbeit, dass beim Aufschleudern der Polyelektrolyte ein linearer Wachstum der Schicht nur erreicht werden kann, wenn das Substrat zwischen den Schleuderschritten im Ofen oder auf der Heizplatte getrocknet wird, um die Wasserschicht auf der Filmoberfläche zu entfernen, was sie ebenfalls mit der Abschirmung der elektrostatischen Wechselwirkung erklären. Zudem ist die Wachstumsgeschwindigkeit stark abhängig von der Konzentration des Polykations und des Polyanions, was darauf schließen lässt, dass die wichtige bindungsbeeinflussende Wechselwirkung hier auch die Anziehung von positiven und negativen Ladungen ist und nicht nur physikalische Deposition.

In den Arbeiten von CHIARELLI et al. [120, 122] wird für unterschiedliche Polyelektrolyt-Systeme beschrieben, dass der Schichtwachstum bei den ersten vier aufgeschleuderten Doppelschichten geringer ist als bei höherer Schichtanzahl; man findet zwei lineare Zuwachsraten: eine für die ersten vier bis fünf Doppellagen und eine für die restlichen (in den genannten Arbeiten bis zu 20). Dieser Effekt tritt ebenso bei den mit LbL Deposition abgeschiedenen Schichten auf, wie z.B. BERTRAND et al. beschrieben haben [119]. Erklären lässt sich die Änderung der Wachstumsgeschwindigkeit in beiden Fällen mit der nach wenigen Doppellagen abgeschlossenen Abschirmung der Oberflächenladung des Substrates durch die Polyelektrolytschichten.

7.1.2. Cis-trans-Isomerie

Azobenzene-Derivate können durch Bestrahlung mit UV-Licht $\lambda < 370$ nm vom thermodynamisch stabileren Bindungszustand *trans* in die *cis* Konfiguration gebracht werden, wie es in Abbildung 7.3 gezeigt ist [123]. Dieser Übergang ist reversibel und kann entweder durch Bestrahlen mit Licht der Wellenlänge $\lambda > 450$ nm rückgängig gemacht werden, oder durch Erhitzen. Die Isomerisation tritt aber nur auf in teilweise ungeordneten Systemen, da die Querschnittsfläche des *cis*-Isomers mehr Raum einnimmt als die des *trans*-Isomers [124].

In polarisiertem Licht kommt es nur bei den Molekülen zu einer *trans-cis-trans* Isomerisation, deren Chromophore parallel zum elektrischen Feldvektor ausgerichtet sind. Ist außerdem gegeben, dass die Moleküle im *trans*-Zustand alle möglichen Molekülausrichtungen einnehmen können – also dass die Moleküle nicht in eine Ausgangslage gezwungen werden –, ist es möglich, die Moleküle in polarisiertem Licht auszurichten und damit eine optische Anisotropie in einer Schicht Polyelektrolyt zu erzeugen [125]–[129]. Die induzierte Doppelbrechung liegt üblicherweise im Bereich $\Delta n < 0,10$ [128, 129].

Abbildung 7.3.: Reversible *cis-trans* Photoisomerisation von Azobenzen.

Die Dauer des Schreibprozesses zur Erzeugung der Doppelbrechung hängt stark von der Herstellungsart der Polyelektrolytschicht bzw. der Einbindung der Moleküle und der Vergangenheit der Schicht ab. Sind die Moleküle mobil, richten sie sich in Sekunden aus [126]; in einer LbL-Schicht sind die Moleküle üblicherweise aber stark ionisch gebunden und in Folge dessen unbeweglich, weshalb die Schreibzeiten hier in der Größenordnung Stunden liegen. Wird die LbL-Schicht nach der Relaxation erneut ausgerichtet, ist der Schreibprozess diesmal hingegen kürzer. FERREIRA et al. [127] erklären dies in ihrer Arbeit damit, dass beim ersten Bestrahlen mit polarisiertem Licht die Struktur der Schicht verändert wird. Die Strukturänderung lässt sich durch Erhitzen rückgängig machen.

Wird das polarisierte Licht ausgeschaltet, welches die Moleküle ausgerichtet hat, tritt bei einigen Molekülen sofort Relaxation auf, der Großteil bleibt aber ausgerichtet [129] oder relaxiert erst nach Stunden [127]. Die Dauer des Relaxationsprozesses hängt ebenfalls stark von der Beweglichkeit der Moleküle in der Schicht ab. FERREIRA et al. [127] finden, dass bei niedrigen pH-Werten präparierte LbL-Schichten langsamer relaxieren als bei hohen pH-Werten präparierte, was sie damit erklären, dass in letzteren die Molekülbeweglichkeit durch geringere ionische Bindung beweglicher ist.

7.2. Präparation der Polyelektrolyte

In der vorliegenden Arbeit sollen die resonanten Moden einer Mikrodisk durch schrittweises Aufschleudern der Polyelektrolyte PEI [Polykation Poly(ethyleneimine)] und PAZO [Polyanion Poly{1-4[4-(3-carboxy-4-hydroxyphenylazo)benzenesulfonamido]-1,2-ethanediy l sodium salt}] durchgestimmt werden. Die Polyelektrolyte stammen von der Firma Aldrich und werden verwendet wie geliefert. Das Polykation PEI hat ein molares Gewicht von 43,07 g/mol, das Polyanion PAZO 369,33 g/mol. Von beiden Molekülen wurden ein-millimolare (1 mM) Lösungen in Reinstwasser hergestellt.

Vor dem Aufbringen der Polyelektrolytschichten wird die GaAs Probe mit den bereits strukturierten und vorcharakterisierten Mikrodisk in Reinstwasser gesäubert und auf der Heizplatte bei 110 °C 60 s getrocknet, um das Wasser auf der Oberfläche vollständig zu entfernen. Zur Herstellung der Einzelschichten wird mit einer Pipette ein Tropfen

7. Durchstimmen von Mikrodisk mit Polyelektrolyten

der Lösung des entsprechenden Polyelektrolytes auf die sich mit 5000 1/min drehende Mikrodiskprobe getropft. Der Probe wird erlaubt, sich danach weitere 60 s mit der selben Geschwindigkeit zu drehen. Danach wird die Probe zum Trocknen erneut auf die 110 °C heiße Platte gelegt und dort 60 s (PEI) bzw. 180 s (PAZO) belassen.

Die erste auf dem GaAs aufgeschleuderte Schicht ist das Polykation (PEI), da das GaAs-Substrat durch die nicht abgesättigten Bindungen an der Oberfläche eine negative Oberflächenladung besitzt.

Über das System der beiden Polyelektrolyte PEI und PAZO existieren bereits zahlreiche Veröffentlichungen, sowohl zur LbL-Deposition [119, 130], als auch zum Aufbringen mittels Aufschleudern [120, 122], außerdem wurde bereits die Photoisomerie einer LbL-Schicht aus PEI/PAZO [131] untersucht, wobei aber keine Doppelbrechung festgestellt wurde. In einer LbL-Schicht aus PAZO und einem anderen Polykation [PAH poly(allylamine hydrochloride)] wurde hingegen photoinduzierte Doppelbrechung nachgewiesen, ebenso in einer reinen PAZO Schicht [127].

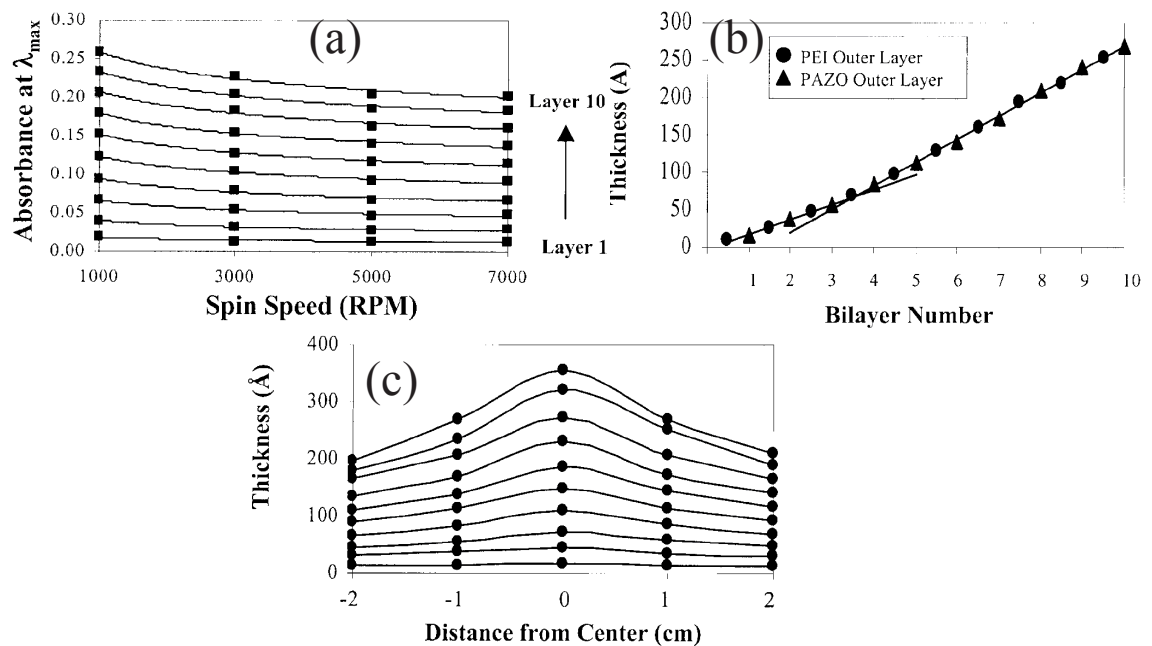


Abbildung 7.4.: Eigenschaften von mit Aufschleudern auf Glassubstrate aufgetragenen PAZO/PEI Doppelschichten: (a) UV-vis Absorption in Abhängigkeit der Aufschleudergeschwindigkeit. (b) Schichtdicke der Doppelschichten. (c) Abhängigkeit der Schichtdicke von der Position auf der Probe. Abbildungen aus [120].

In Abbildung 7.4 sind einige Messungen der Arbeit von CHIARELLI et al. [120] an den aufgeschleuderten Schichten aus PAZO und PEI gezeigt. In (a) ist die UV-vis Absorption der Doppelschichten in Abhängigkeit der Schleudergeschwindigkeit für verschiedene Schichtnummern aufgetragen. Annehmend, dass die Absorption direkt proportional zur Polyelektrolytmenge auf der Probe ist, kann man folgern, dass die aufgebrachte Schichtdicke mit steigender Drehzahl geringer wird. Diese Abhängigkeit ist aber relativ gering, verringert sich doch nach zehn Schichten die Enddicke bei einer Versiebenfachung der Drehzahl nur um 5 nm.

In (b) ist die mit Einwellenlängen-Ellipsometrie gemessene Schichtdicke über der Anzahl der Doppelschichten aufgetragen. Der Wachstum ist linear – mit Ausnahme der sprunghaften Änderung der Wachstumsrate bei etwa der fünften Schicht, was bereits in Kapitel 7.1.1 diskutiert wurde. Die Wachstumsrate beträgt hier etwa 2,5 nm/Doppelschicht.

In (c) ist die resultierende Schichtdicke für verschiedene Anzahlen Doppellagen über der Position auf dem Glassubstrat aufgetragen, wobei hier die Probe mit einer Kantenlänge von 4 cm um mehr als den Faktor zehn größer ist als die in dieser Arbeit verwendeten Proben mit einer Kantenlänge von etwa 3 mm. Die Schichtdicke hängt nach der zehnten Schicht sehr stark vom Abstand von der Probenmitte ab, in der Mitte ist die Schicht um 150 nm dicker als am Rand. Dies erscheint auf den ersten Blick überraschend, ist aber eine Folge der höheren Umdrehungsgeschwindigkeit am Rand der Probe, wodurch es auch zu einer höheren Geschwindigkeit der Luft gegenüber der Polyelektrolytlösung kommt.

7.3. Charakterisierung der Polyelektrolytschichten auf GaAs

Da bisher keine Arbeiten zu auf GaAs-Oberflächen durch Layer-by-Layer Deposition oder Aufschleudern abgeschiedenen Polyelektrolytschichten existierten, soll der Prozess zuerst charakterisiert werden. Dabei wird sowohl die Schichtqualität als auch die Wachstumsgeschwindigkeit untersucht.

In einem ersten Schritt werden einige Doppellagen der ausgewählten Polyelektrolyte PEI und PAZO auf einem ebenen, epitaktischen GaAs Substrat abgeschieden und Aufnahmen am Rasterkraftmikroskop (AFM) und Ellipsometriemessungen gemacht. Abbildung 7.5 zeigt auf der linken Seite eine AFM-Aufnahme der unbehandelten GaAs Oberfläche mit einer Rauigkeit von 0,27 nm. Auf der rechten Seite ist die Oberfläche einer mit 15 Doppellagen der Polyelektrolyte beschichteten GaAs Probe gezeigt, die Rauigkeit hat sich hier auf 2,3 nm fast verzehnfacht, was auch in den AFM-Abbildungen deutlich wird.

Die Polyelektrolytoberfläche ist wulstig. Die Größenordnung der Unebenheiten sind verglichen mit der Wellenlänge (im Medium mit $n_{PEL} \approx 1,5$: $\lambda_{min} = 600$ nm) zu vernachlässigen. Auch die in Abbildung 7.6 gezeigten Ellipsometriescans, die mit einem Einwellenlängen-Ellipsometer ($\lambda = 532$ nm) an einer Schicht aus 15 Doppellagen PEL

7. Durchstimmen von Mikrodiskens mit Polyelektrolyten

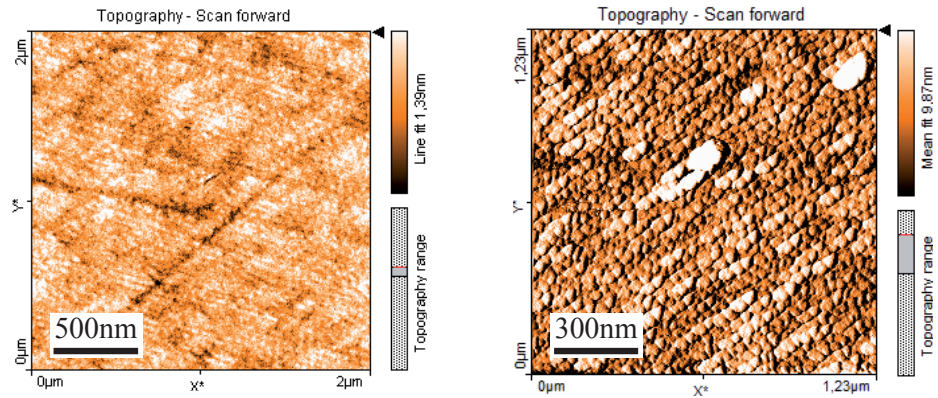


Abbildung 7.5.: AFM-Aufnahmen von links: einer epitaktischen GaAs Oberfläche und rechts: einer mit 15 Doppellagen der Polyelektrolyte beschichteten GaAs Probe.

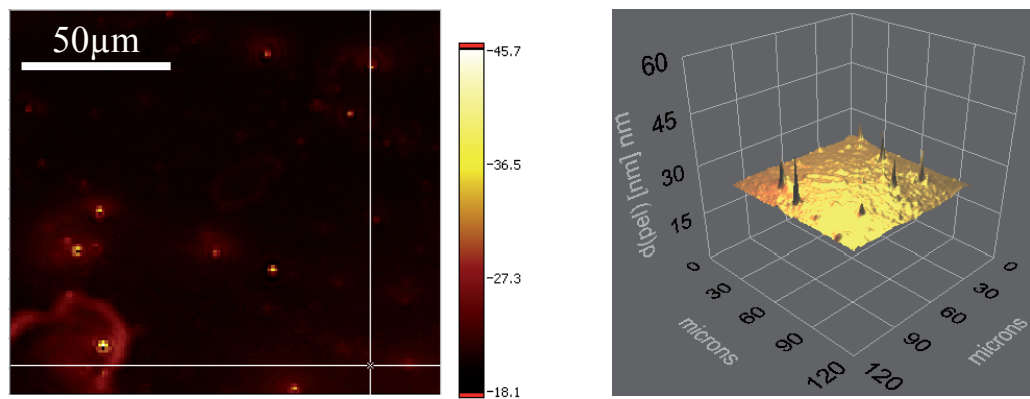


Abbildung 7.6.: Ellipsometrie Oberflächenscans (Einwellenlängen-Ellipsometrie, $\lambda = 532 \text{ nm}$) von 15 Doppellagen Polyelektrolyten auf einem unstrukturierten GaAs Substrat.

auf einem GaAs Substrat aufgenommen wurden, zeigen keine bemerkenswerte Rauigkeit der Oberfläche.

Um das Schichtwachstum darzustellen, werden sowohl auf einer unstrukturierten Probe als auch – um evtl. Unterschiede durch die Strukturierung deutlich zu machen – auf einer mit Mikrodisk vorstrukturierten Probe PEL-Doppelschichten aufgeschleudert und im Anschluss jeder zweiten Doppellage Ellipsometriemessungen durchgeführt. Das Ellipsometer (MM-16 der Firma *Horiba Jobin Yvon*) war in diesem Fall spektral, der vermessene Wellenlängenbereich $\lambda = 430 \dots 826 \text{ nm}$. Die gemessenen Winkel Δ und ψ der Ellipsometrie werden mit dem Cauchymodell angepasst. Die Brechungsindizes werden für den Fit mit $n_{\text{GaAs}} = 3,4$ für das GaAs und $n_{\text{PEL}}(532 \text{ nm}) = 1,46$ bzw. $n_{\text{PEL}}(633 \text{ nm}) = 1,45$ für den Brechungsindexverlauf der Polyelektrolytschichten angenommen [132].

Die aus der Anpassung resultierenden Ellipsometrieschichtdicken für beide Proben sind in Abbildung 7.7 gezeigt. Das Schichtwachstum ist für beide Proben linear, wobei er bei den ersten 3 – 4 Schichten etwas geringer ist als später, dies führen CHIARELLI et al.[120] auf die Oberflächenladung zurück, die bei höherer Schichtdicke abgeschirmt wird und bei den ersten Schichten zu einer höheren Packungsdichte führt.

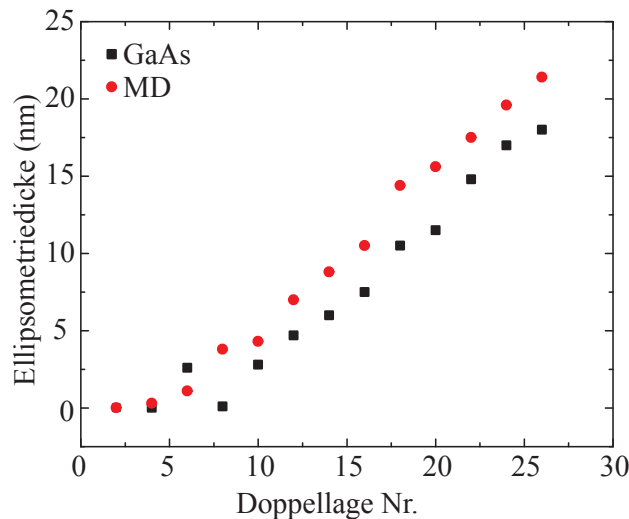


Abbildung 7.7.: Ellipsometriedicke für PEI/PAZO Doppelschichten aufgeschleudert auf GaAs Substrat (schwarze Quadrate) bzw. einer mit Mikrodisk strukturierten Probe (rote Punkte).

Insgesamt ist das Wachstum der mit Mikrodisk strukturierten Probe mit gemittelt $0,82 \text{ nm/Doppellage}$ etwas höher als der der GaAs Probe ($0,69 \text{ nm/Doppellage}$). Zurückzuführen ist dies auf die Oberflächenrauigkeit der strukturierten Probe, die bei den ersten PEL-Schichten zu einer besseren Haftung der Moleküle auf dem GaAs führt. Dies erklärt auch, warum der Wachstum dann bei höheren Schichtdicken parallel verläuft.

7.4. Mikrodisk mit PEL: Der optisch durchstimmbare Laser

7.4.1. Vorcharakterisierung der Mikrodisk

In den vorhergehenden Kapiteln wurde bereits beschrieben, dass es möglich ist, durch das schrittweise Aufbringen eines Materials mit einem Brechungsindex $n \neq 1$ auf einen photonischen Resonator die Moden im Inneren durchzustimmen. Außerdem kann man die Mode, wenn der Brechungsindex des Materials veränderbar ist, darüber beeinflussen. Mit den Polyelektrolyten soll beides versucht werden, wobei hier zuerst auf das permanente Durchstimmen eingegangen werden soll.

Dazu wird eine Mikrodisk Probe hergestellt, deren MDs vor der ersten Beschichtung spektroskopisch vorcharakterisiert wird: Unter gepulster Anregung ist es möglich, die mit Elektronenstrahlolithografie hergestellten Resonatoren in das Laser-Regime zu pumpen, so dass zu den einfachen Spektren auch anregungsleistungabhängige Messungen aufgenommen werden.

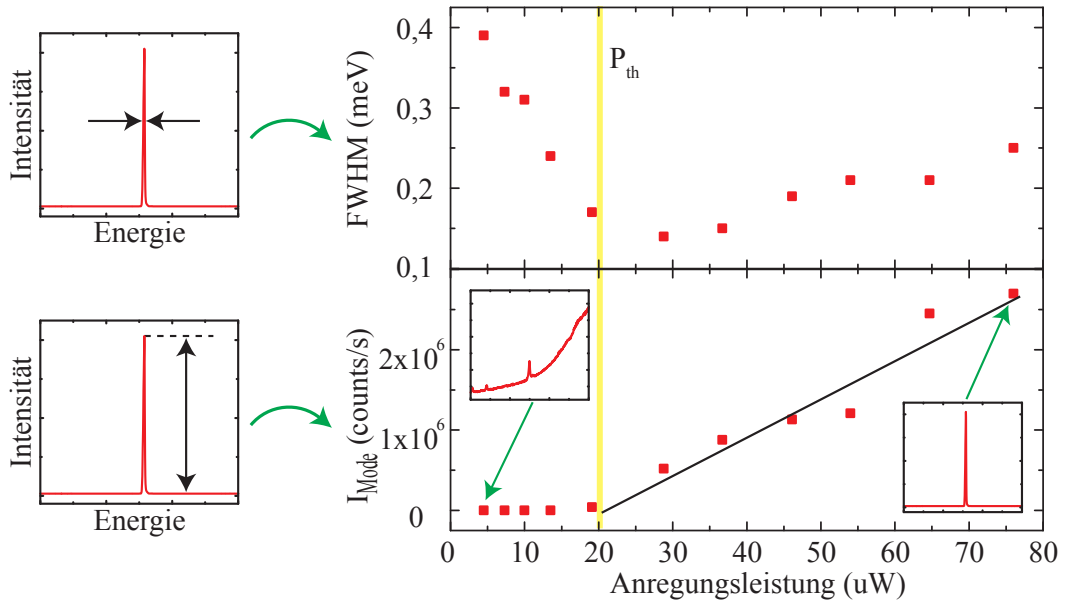


Abbildung 7.8.: Lasing einer $r = 1,51 \mu m$ Mikrodisk. Unten: Modenintensität in Abhängigkeit der Anregungsleistung, oben: Halbwertsbreite der WGM der selben MD. Im Inset Ausschnitte des PL-Spektrums unter der Laserschwelle (links) und über der Laserschwelle (rechts).

In Abbildung 7.8 sind die Modenintensität und die Linienbreite der lasenden Mode über der Anregungsleistung einer noch nicht mit PEL beschichteten Mikrodisk mit dem Radius $r = 1,51 \mu m$ aufgetragen. Über der Laserschwelle von $P_{th} = 20,4 \mu W$ steigt die Modenintensität superlinear an, zum gleichen Zeitpunkt fällt die FWHM der Mode auf knapp ein Drittel ab. Für die Bestimmung der Linienhalbwertsbreiten wurde die Mode

in den einzelnen Spektren mit einem Lorentzfit angenähert. Diese beiden Größen sind hinreichend, um zu zeigen, dass die gemessene Mode die Laserschwelle überschreitet.

7.4.2. Permanentes Durchstimmen der Resonatormoden

Im Anschluss an diese Vorcharakterisierung werden schrittweise jeweils zwei PEL-Doppelschichten – beginnend mit PEI – aufgeschleudert. Nach jedem Schritt wird die Probe wieder spektroskopisch vermessen, so dass die Verschiebung der WGM über den gesamten Beschichtungsprozess dokumentiert ist.

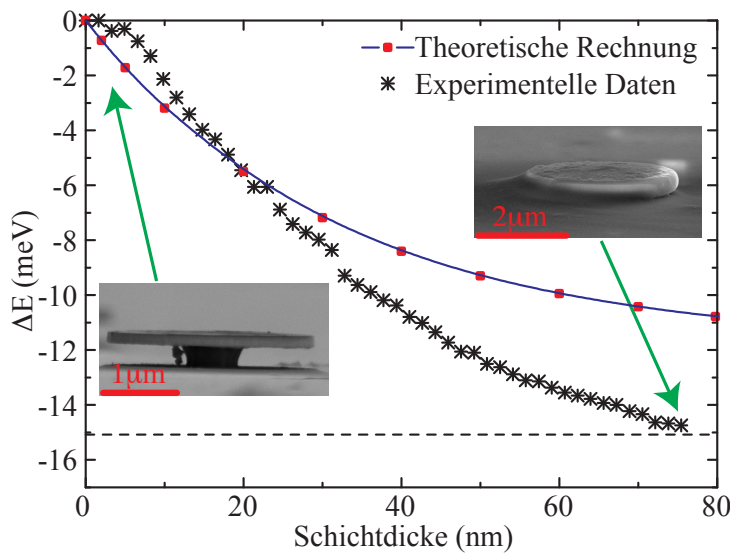


Abbildung 7.9.: Spektrale Modenverschiebung in Abhängigkeit der Schichtdicke der aufgetragenen Polyelektrolyte. Schwarze Sternchen für experimentelle Daten, rote Quadrate für die Rechnung. In den Insets elektronenmikroskopische Aufnahmen der Mikrodisk vor dem Beschichten (unter 90 % aufgenommen) und mit 95 Doppellagen PEL (unter 85 % aufgenommen). Originalabbildung aus [133].

Elektronenmikroskopische Aufnahmen der unbeschichteten Mikrodisk und der Mikrodisk beschichtet mit 95 Doppelschichten sind in den Insets in Abbildung 7.9 gezeigt. Die PEL Beschichtung umhüllt die MD homogen von allen Seiten. Die Gütefaktoren der WGMs werden über den Beschichtungsprozess ausgewertet, die Güte nimmt im Rahmen des Auflösungsvermögens des PL-Messplatzes nicht signifikant ab.

Die Verschiebung einer ausgewählten Mode über der Schichtdicke (bestimmt mit den Daten aus Abbildung 7.7) ist in Abbildung 7.9 aufgetragen (schwarze Sternchen), die Mikrodisk hat wiederum den Radius $r = 1,51 \mu\text{m}$. Da der effektive Brechungsindex des Hintergrundes, der sich aus dem der PEL Schicht und der Luft zusammensetzt, steigt, verschiebt die Mode während der Beschichtung zu niedrigeren Energien, denn das Modenvolumen nimmt zu. Die Verschiebung sättigt nach etwa 95 Doppelschichten,

was einer Schichtdicke von 77,4 nm entspricht; ab diesem Wert wird keine Änderung des effektive Brechungsindex des Hintergrunds mehr erreicht.

Eine Rechnung zur Abschätzung der spektralen Verschiebung der WGM wurde von Prof. Cedrik Meier durchgeführt durch Lösung der Helmholtz Gleichung für einen zwei-dimensionalen Wellenleiter

$$\left[\frac{d}{dz} - (k_{||} - n(z)k_0^2) \right] H_z(z) = 0, \quad (7.1)$$

wobei die Emissionswellenlänge einer Mode in der Mikrodisk vor dem Beschichten $k_0 = 2\pi/\lambda_0$ benutzt wird. Da die WGM auf Grund der Quantenfilmmmission TE-artig sind, wird hier mit der Komponente $H_z(z)$ des magnetischen Feldes entlang der Membranebene z gerechnet. Der Wachstum der PEL Schicht wird in die Rechnung über eine schrittweise Änderung des Brechungsindexprofils einbezogen. Obwohl diese analytische Näherung des Problems nur das Schichtwachstum in vertikaler Richtung beachtet, in lateraler Richtung aber vernachlässigt, hat sie gegenüber der FDTD-Simulation den Vorteil, dass auch monomolekulare Schichten berechnet werden können, während die FDTD-Simulation eine räumliche Diskretisierung erfordert.

Die Ergebnisse der Rechnung (rote Quadrate) sind in Abbildung 7.9 zusammen mit den experimentellen Daten aufgetragen. Unter einer Schichtdicke von 40 nm stimmen Experiment und Rechnung sehr gut überein; oberhalb dieser Schichtdicke ist die spektrale Modenverschiebung im Experiment höher als in der Rechnung. Die Diskrepanz kann damit erklärt werden, dass die Rechnung die Änderung des Brechungsindizes in lateraler Richtung außerhalb der Mikrodisk vernachlässigt. Die reale Verschiebung der Mode setzt sich aber zusammen aus einer Rotverschiebung auf Grund der Änderung in vertikaler und einer Rotverschiebung auf Grund der Änderung in lateraler Richtung.

Die maximale Energieänderung der WGM im Experiment ist $\Delta E = -15,1$ meV; in der Rechnung ergibt sich eine Energieverschiebung von $\Delta E_{theo} = -11,5$ meV. Diese Rechnung und der Vergleich mit den experimentellen Daten lässt nun eine Abschätzung zu, welchen Anteil die beiden unterschiedlichen Verschiebungen auf die resultierende spektrale Verschiebung der Mode haben. Die berechnete Energieänderung beträgt 76 % der experimentellen Daten. Die fehlenden 24 % der Verschiebung werden durch den Einfluss des Hintergrundbrechungsindizes der MD auf die Mode in xy -Richtung hervorgerufen. Das bedeutet, dass sich die spektrale Verschiebung der WGM der Mikrodisk zusammensetzt aus 76 % dem Einfluss in lateraler Richtung und 24 % dem Einfluss in xy -Richtung.

Die Sättigung der Modenverschiebung nach etwa 80 nm wird von der Rechnung sehr gut wiedergegeben.

7.4.3. Temperaturbeständigkeit

Um die Anwendbarkeit der Polyelektrolytbeschichtungen auch für Tieftemperaturexperimente – wie der Kopplung photonischer Resonatoren mit einzelnen Quantenpunkten – zu zeigen, wird eine mit PEL beschichtete Mikrodiskprobe einem Kühl- und Heizzyklus

im Mikroskopkryostaten unterzogen, wobei während des Zyklus ständig Spektren der MD aufgenommen werden. Die Position einer photonischen Mode in Abhängigkeit der Proben­temperatur ist in Abbildung 7.10 gezeigt. Von Raumtemperatur ausgehend wird die Probe in 50 K-Schritten bis auf eine minimale Temperatur von 5 K abgekühlt, nach dem Erreichen der minimalen Temperatur wird langsam bis auf Raumtemperatur wieder aufgeheizt.

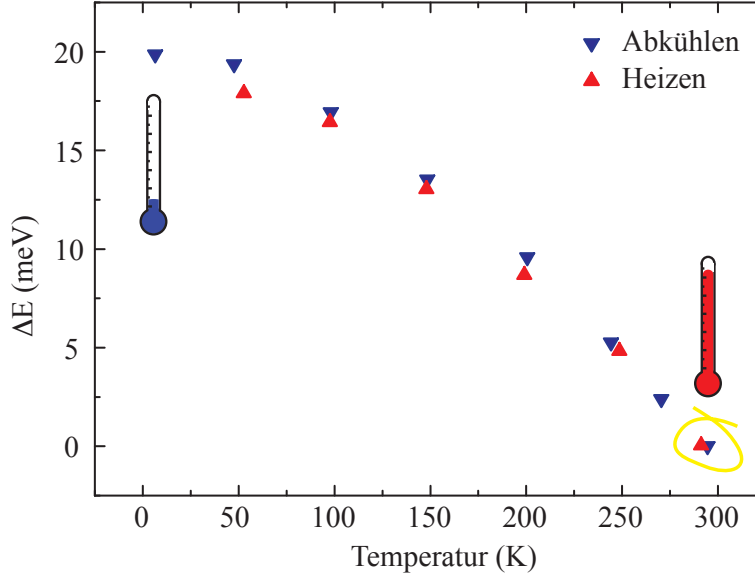


Abbildung 7.10.: Temperaturshift einer photonischen Mode in einer mit PEL beschichteten MD während eines Kühl-/Heizzyklus von RT bis 5 K.

Von 300 K bis 5 K verschiebt die photonische Mode um 20 meV zu höheren Energien auf Grund der Temperaturabhängigkeit des Brechungsindizes des Membranmaterials $n_{GaAs}(T)$, die hauptsächlich auf der Abnahme der thermischen Ausdehnung mit abnehmender Temperatur beruht. Die Verschiebung der photonischen Mode durch die Änderung von n_{GaAs} beruht auf zwei konkurrierenden Effekten: Einerseits ändert sich die Modenwellenlänge im Material durch den niedrigeren Brechungsindex, dadurch sieht die Mode ein kleineres Resonatorvolumen. Andererseits nimmt der Brechungsindexkontrast mit dem Hintergrund ab, wodurch es zu einem größeren Modenvolumen kommt. Den größeren Einfluss hat hier die Abnahme des Brechungsindizes des Resonators, hieraus resultiert die spektrale Verschiebung der WGM zu höheren Energien.

Das bemerkenswerte Resultat dieser Messung ist aber, dass die photonische Mode nach dem Aufheizen auf die Ausgangstemperatur genau auf ihre Ausgangslage zurückkehrt, was darauf schließen lässt, dass die Polyelektrolytschichten auf der Mikrodisk sowohl bei sehr tiefen Temperaturen, als auch im Hochvakuum (10^{-6} mbar) stabil sind und es zu keiner messbaren Strukturänderung durch Ausgasungen oder Wasserentzug kommt.

Somit konnte gezeigt werden, dass das schrittweise und einfach durchzuführende Aufbringen der PEL Doppelschichten für ein breites Spektrum von Experimenten mit photonischen Resonatoren anwendbar ist, bei denen die WGM permanent durchgestimmt werden müssen, denn diese finden fast ausschließlich bei tiefen Temperaturen statt.

7.4.4. Einfluss auf das Lasen im Resonator

Im Abschnitt 7.4.1 wurde bereits gezeigt, dass die unbeschichteten Mikrodisk bei Raumtemperatur über den Transparenzpunkt gepumpt werden können, und eine oder mehrere Moden dadurch in das Laser-Regime gebracht werden können. Desweiteren wurde festgestellt, dass die Gütefaktoren durch das Beschichten mit Polyelektrolyten im Auflösungsvermögen des PL-Messplatzes nicht signifikant abnehmen. Es kann also angenommen werden, dass auch bei den beschichteten MDs Moden noch zum Lasen gepumpt werden können. Um dies zu bestätigen, werden pumpleistungsabhängige Intensitätskurven über den gesamten Beschichtungsprozess alle zehn Doppelschichten aufgenommen.

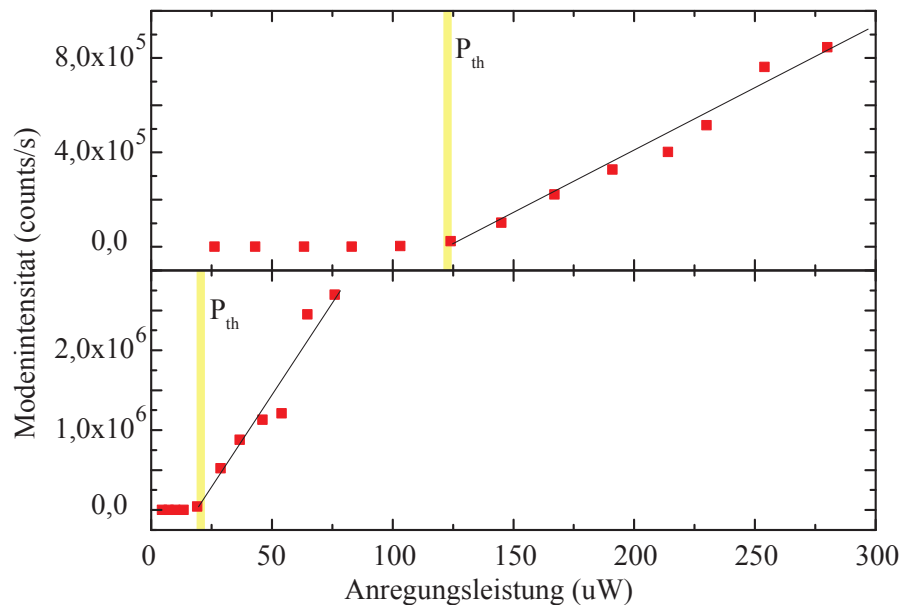


Abbildung 7.11.: Unten: Abhängigkeit einer WGM einer unbeschichteten MD von der Pumpleistung. Oben: Die selbe Auftragung für die MD mit 95 Doppelschichten PEL.

Ein Vergleich der Modenintensität über der Pumpleistung vor und nach dem Beschichten mit 95 Doppellagen ist in Abbildung 7.11 gezeigt. Unten ist noch einmal die Pumpleistungsabhängigkeit der Intensität der WGM vor dem Beschichten aufgetragen, darüber die gleiche Auftragung nach dem Beschichten. Nicht nur die Laserschwelle P_{th} ist von $20,4 \mu\text{W}$ auf $123,2 \mu\text{W}$ gestiegen, die Lasermode scheint nun auch schon bei

$1,0 \cdot 10^6$ counts zu sättigen. Zurückzuführen ist das frühere Sättigen auf Absorption und Streuung in der dicken Polyelektrolytschicht.

Um den Anstieg der Laserschwelle weiter zu untersuchen, wird sie über den gesamten Beschichtungsprozess ausgewertet und in Abbildung 7.12 über der Anzahl der PEL-Doppellagen aufgetragen. Erwähnt werden muss zu dieser Auftragung, dass die azimuthale Quantenzahl der lasenden Mode während des Beschichtungsprozesses nicht die gleiche bleibt: Wegen der Verschiebung der Modenenergie verändert sich der Überlapp mit der Quantenfilmmission, so dass bei einer bestimmten Schichtdicke eine konkurrierende Mode besser gespeist wird und damit beginnt zu lasen.

Bestimmt man die Schichtdicke mit der Ellipsometriemessung aus Abb. 7.7, ergibt sich die maximale Schichtdicke hier zu 77,4 nm. Es zeigt sich, dass P_{th} linear mit der PEL-Schichtdicke d_{PEL} ansteigt. Bis zur Sättigung der Modenverschiebung bei 95 Doppellagen hat sich die Laserschwelle um den Faktor sechs erhöht. Dies lässt sich ebenfalls durch mit zunehmendem d_{PEL} steigender Streuung und Absorption im PEL erklären, wodurch die absolute Intensität sowohl des Pumplasers auf der Probe als auch der gemessenen PL-Intensität abgesenkt wird, wohingegen die PEL-Schicht die Güten der Moden nicht signifikant beeinflusst, wie bereits in Kapitel 7.4.2 beschrieben ist.

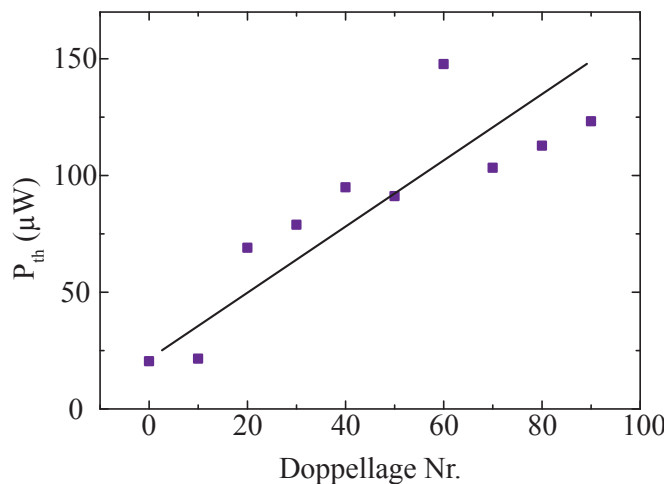


Abbildung 7.12.: Abhängigkeit der Laserschwelle der Mikrodisk von der Anzahl der PEL-Doppellagen.

Die Streuverluste in der PEL Schicht können mit dem Lambert-Beerschen Gesetz abgeschätzt werden. Um zu bestätigen, dass das Ansteigen der Laserschwelle mit steigender PEL Schichtdicke durch Streuung und nicht durch intrinsische Effekte hervorgerufen wird, sollen hier die Verluste beim Pumplaserlicht mit den Verlusten bei der Photolumineszenzintensität der Probe verglichen werden.

Wie oben schon beschrieben, steigt die Laserschwelle nach dem Aufbringen von 77,4 nm PEL um den Faktor sechs an. Ist dieser Effekt nur durch Streuung des Pumplasers her-

vorgerufen, wird dieser also im Polyelektrolyten auf 1/6 abgeschwächt. Das selbe sollte für die PL-Intensität gelten. Die absolute gemessene Intensität einer photonischen Mode vor dem Beschichten mit PEL wird bei einer beliebigen Pumpleistung unterhalb der Laserschwelle (hier $P_1 = 19 \mu\text{W}$) abgelesen, wozu auch die Hintergrundlumineszenz des Quantenfilms abgezogen wird. Die Intensität beträgt $I_1 = 40893 \text{ counts/s}$. Bei der sechsfachen Pumpleistung ($P_2 = 119 \mu\text{W}$) wird nach dem PEL-Beschichten wieder die absolute Intensität der Mode aufgenommen, sie beträgt nun $I_2 = 8768 \text{ counts/s}$, was dem 4,7-fachen des Ausgangswertes entspricht. Dieser Wert liegt ausreichend nahe an dem Verlust des Pumplaserlichtes, um Streuung als einzigen Verursacher für das Ansteigen der Laserschwelle anzunehmen.

Nähert man den Faktor der Abschwächung in der PEL Schicht der Dicke $d = 77,4 \text{ nm}$ mit $P_0/P(d) = 5$ an, lässt sich der Absorptionskoeffizient η des Polyelektrolyten über das Lambert-Beersche Gesetz berechnen:

$$P(d) = P_0 \cdot e^{-\eta d}. \quad (7.2)$$

Hier ergibt sich nach dem Umstellen und Einsetzen für den Absorptionskoeffizienten einer Schicht aus PEI/PAZO Doppellagen:

$$\eta = \frac{1}{d} \ln \left(\frac{P_0}{P(d)} \right) = 3,0 \cdot 10^7 \text{ m}^{-1}.$$

7.4.5. Optisches Durchstimmen der photonischen Mode

Bei den Grundlagen der Polyelektrolyte in Abschnitt 7.1.2 wurde die *cis-trans*-Isomerie von AZO-basierten Molekülen bereits beschrieben. Das hier verwendete Polyanion PAZO hat – wie der Name bereits vermuten lässt – einen AZO-Teil, der sich durch Beleuchtung mit UV-Licht $\lambda < 370 \text{ nm}$ umklappen lässt.

Es wurde bereits von URBAS et al. und WHITE et al. [134]-[136] gezeigt, dass passive photonische Strukturen wie Braggreflektoren auf Basis von Flüssigkristallen photoadressierbar werden, wenn man den Flüssigkristallen Moleküle hinzufügt, die einen AZO-Teil haben, oder die Flüssigkristallmoleküle mit AZO-Gruppen funktionalisiert werden. So konnten auch optische Anisotropien [125] und Doppelbrechung [128, 127] im LC optisch ein- oder ausgeschaltet werden. Darüber hinaus haben IKEDA und TSUTSUMI [137] den Phasenübergang nematisch \rightarrow flüssig-isotrop durch Bestrahlen mit UV-Licht ausgelöst. Außerdem wurden bereits Oberflächengitter optisch in eine feste Schicht aus Polyelektrolyten geschrieben [129]. Diese Möglichkeiten, die Photoisomerie zu nutzen, waren bisher aber alle passiv in der Reaktion auf die Photoisomerie. Keines der Experimente zielte darauf ab, die Emission einer aktiven Lichtquelle durchzustimmen. Das Ziel ist also, durch das Einbetten einer optisch aktiven Mikrodisk in den Polyelektrolyten ein vollständig optisch arbeitendes, schaltbares Bauteil zu erreichen.

Um die Photoisomerie im Polyelektrolyten auszulösen, wird eine Xenonlampe benutzt, deren Spektrum durch einen Infrarotfilter und einen Bandpassfilter auf den Wellenlängenbereich $\lambda = 340 \dots 380 \text{ nm}$ beschränkt und auf die Probe kollimiert wird. Die auf

der Probenoberfläche ankommende Leistung beträgt so noch etwa $0,02 \text{ mW/cm}^2$. Die spektrale Position der WGM der Mikrodisk wird während des Bestrahlungsprozesses aufgenommen, die Verschiebung zweier Moden in Abhängigkeit der Bestrahlungsdauer ist in Abbildung 7.13 aufgetragen.

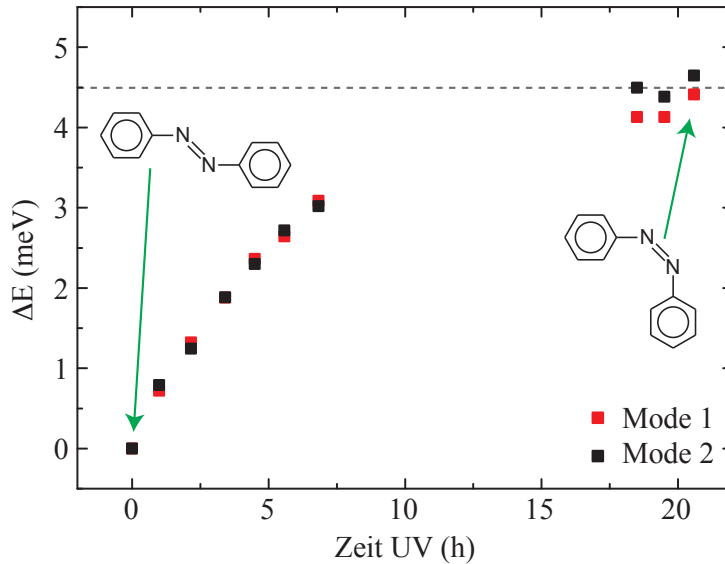


Abbildung 7.13.: Verschiebung der WGM einer mit $77,4 \text{ nm}$ PEL beschichteten MD bei Bestrahlung mit UV-Licht $\lambda = 340 \dots 380 \text{ nm}$, $0,02 \text{ mW}$.

Die Moden schieben während der Bestrahlung zu höheren Energien, die Verschiebung ΔE ist im Rahmen der Messgenauigkeit für beide WGM gleich. Der Schreibprozess sättigt nach etwa 20 h , die maximale Verschiebung ist dabei $\Delta E = 4,5 \text{ meV}$. Auch FERREIRA et al. [127] und DANTE et al. [131] messen in ihren Arbeiten Schreibzeiten in der Größenordnung von Stunden, wobei ihre Messungen an PEI/PAZO Doppellagen durchgeführt wurden, die mit dem LbL-Verfahren deponiert worden waren. Die Autoren erklären die hohen Schreibzeiten damit, dass die ionischen Wechselwirkungen zwischen den Polyanionen und Polykationen in der Schicht die AZO-Teile der Moleküle davon abhalten, sich leicht umzuklappen. Es muss in der Schicht erst Raum geschaffen werden, der das Umklappen erlaubt. Dies führt zu hohen Schreibzeiten beim ersten Schreibprozess, denn die Struktur der Schicht muss erst verändert werden. Da die mit dem Aufschleuderverfahren abgeschiedenen Polyelektrolytschichten noch dichter gepackt sind, sind die Schreibzeiten, die im vorliegenden Experiment gefunden werden, noch höher.

Um zu kontrollieren, ob die Isomerisation nur durch das UV-Licht ausgelöst wird, wird die Probe vor der Sättigung mehrere Stunden mit cw Laserlicht der Wellenlänge 532 nm bestrahlt, wodurch aber keine messbare Modenverschiebung auftritt. Ebenso wird auch nach Stunden im Dunkeln keine weitere Verschiebung der WGM gemessen, was darauf schließen lässt, dass der mit UV-Licht geschriebene Zustand relativ stabil ist.

Die Verschiebung der photonischen Moden in der Mikrodisk wird ausgelöst durch die Änderung des Gleichgewichts zwischen den Zuständen *cis* und *trans* des PAZO Moleküls: Durch die Bestrahlung mit UV-Licht, welches von Molekülen im thermisch stabileren Zustand *trans* absorbiert wird, werden die AZO-Teile der Moleküle umgeklappt und das Gleichgewicht zwischen den beiden Zuständen verschiebt sich kontinuierlich zum thermisch weniger stabilen *cis*-Zustand. Dieser hat ein anderes Absorptionsverhalten [131] und in der Folge auch einen anderen (komplexen) Brechungsindex $n^*(\omega) = n'(\omega) + in''(\omega)$, wobei $n''(\omega)$ den Extinktionskoeffizienten im absorbierenden Material wiedergibt. D.h. die Verschiebung des Gleichgewichts zwischen den beiden Molekülzuständen verändert den Brechungsindex des Hintergrundes der MD, womit rein optisch Einfluss auf die WGM genommen werden kann.

Um zu verifizieren, dass die Richtung der Modenverschiebung mit der Änderung des komplexen Brechungsindizes n^* übereinstimmt, müssen noch weitere Betrachtungen erfolgen: In einer Arbeit von LVOV et al. [138] findet man die Absorptionsspektren von PAZO enthaltenden PEL-Doppellagen für verschiedene Schichtdicken. Auch weit entfernt auf der Wellenlängenskala vom Absorptionsmaximum des PAZO Moleküls bei 360 nm steigt die Absorption mit steigender Schichtdicke noch leicht an. In der zitierten Arbeit ist die Absorption bis zu einer maximalen Wellenlänge von 700 nm gezeigt, die Daten lassen aber eine Extrapolation bis zur für uns interessanten Wellenlänge von 900 . . . 1000 nm zu. Es ist also davon auszugehen, dass auch in diesem Wellenlängenintervall noch eine signifikante Absorption im PAZO Molekül stattfindet.

DANTE et al. [131] haben zudem gezeigt, dass die Absorption nach der Bestrahlung mit UV-Licht stark abfällt, da die Moleküle dadurch in den *cis* Zustand gebracht werden. Auch diese steigende Absorption lässt sich zu den hier relevanten Wellenlängen extrapolieren. Die sinkende Absorption geht einher mit einem sinkenden komplexen Brechungsindex n^* , da dieser über den Extinktionskoeffizienten n'' mit der Absorption

$$A = 1 - T = 1 - e^{-2n''z\frac{\omega}{c_0}} \quad (7.3)$$

verknüpft ist (unter der Annahme, dass die Reflexion $R = 0$ ist). Der niedrigere Brechungsindex im Außenraum der Mikrodisk führt zu einem erhöhten Einschluss der Mode. Konsistenterweise blauverschiebt die Mode der Mikrodisk also, bzw. schiebt zu höherer Energie.

In diesem Kapitel wurde gezeigt, dass Polyelektrolyte geeignet sind, voll optisch arbeitende, durchstimmbare Laser auf Basis von Mikrodisk herzustellen, obwohl der Schreibprozess noch relativ langsam ist, ist der angeregte Zustand sehr stabil. Das Verfahren lässt sich auch bei tiefen Temperaturen und im Vakuum anwenden.

8. Zusammenfassung und Ausblick

Ziel dieser Arbeit war es, neuartige Möglichkeiten zu finden, die resonanten Moden von Mikrodisk und zweidimensionalen photonischen Kristallen von außen spektral durchzustimmen, und darüberhinaus, die Abhängigkeit der photonischen Moden von externen Einflüssen besser zu verstehen.

Durch das Einbetten einer Mikrodisk in einen nematischen Flüssigkristall wurde eine Kopplung des elektromagnetischen Feldes der Welle und der Ausrichtung der LC-Moleküle erreicht, so dass die WGM in der MD durch ein externes elektrisches Feld um 4,5 meV blauverschoben werden konnte. Das selbe Experiment an einem photonischen Kristall ergab lediglich eine Verschiebung der Mode um 0,5 meV. FDTD Simulationen und Direktorfeldmessungen geben Aufschluss über die Anfangs- und die finale Ausrichtung der LC-Moleküle: Ohne externes Feld sind die Moleküle planar auf der Mikrodisk Unter- und Oberseite verankert. Der Direktor hat eine verschwindende z -Komponente und setzt sich noch mindestens $1,5\text{ }\mu\text{m}$ ins Kontinuum des LCs fort. Beim Anlegen des elektrischen Feldes richten sich die Moleküle sukzessive parallel zu den Feldlinien aus. Dieses Verständnis des Direktorfeldes liefert ein vertieftes Verständnis über die Einflüsse der Änderung des Brechungsindex des MD-Hintergrundes auf die resonante Mode. Die Energieänderung der WGM wird dominiert von der Änderung des Brechungsindex in vertikaler Richtung.

Der Einfluss des Flüssigkristalls auf die Laserschwelle und auf die Modenenergie ist vom Radius der Mikrodisk abhängig. Für die Laserschwelle wird ein kritischer Radius von $2,2\text{ }\mu\text{m}$ gefunden, unterhalb dessen die Laserschwelle durch das Einbetten der MD in den LC abnimmt. Es wird angenommen, dass der umgebende Flüssigkristall einerseits zu einem sanfteren Einschluss der Mode führt, dadurch können bei photonischen Kristallen höhere Gütefaktoren realisiert werden [45]. Zudem könnte der Flüssigkristall die Oberflächenrekombinationsgeschwindigkeit beeinflussen, und der durch den veränderten Brechungsindexkontrast geringere Einschluss könnte zu einer Abnahme der Streuung der Mode an den Mikrodiskanten führen. Diese Effekte sind dafür verantwortlich, dass die Laserschwelle bei niedrigen MD-Radien durch das Einbetten in den LC abnimmt, während bei der MD ohne LC der optimale Radius höher liegt, weil früher schon Oberflächenrekombination und Streuung an den Kanten dominant werden.

Ein 2D photonischer Kristall mit hexagonaler Symmetrie und L7-Kavität wurde zum spektralen Durchstimmen der resonanten Mode schrittweise mit SiO_2 bedampft, wodurch die WGM spektral um -8 meV verschiebt. Durch die Beschichtung nimmt die Güte der Moden bis zur Sättigung bei einer Schichtdicke von 40 nm auf $\frac{1}{4}$ ab, dies ist auf Streuung durch eine schlechte Schichtqualität und das unsymmetrische Beschichten nur auf der Membranoberseite zurückzuführen. Sowohl Richtung der Modenverschiebung als auch

Abnahme der Güte werden durch FDTD Simulationen bestätigt, wobei der Betrag der Verschiebung im Experiment etwa doppelt so hoch ist.

Um den negativen Einfluss des unsymmetrischen vertikalen Brechungsindexprofils als Folge des Aufdampfens von Siliziumdioxid zu umgehen, wurde im nächsten Experiment die Atomlagenabscheidung als Beschichtungsprozess gewählt. Die Schichten zeigen bei AFM Messungen eine Rauigkeit von 1,4 nm und umgeben den Resonator homogen. Bei einer Schichtdicke von 9 nm Ta₂O₅ schiebt die Mode um $-6,5$ meV, die Güte der Moden nimmt dabei nicht messbar ab.

Polyanion PAZO und Polykation PEI wurden mit einem einfachen Aufschleuderverfahren als monomolekulare Polyelektrolyt-Doppelschichten sowohl auf GaAs Substrat als auch auf strukturierten MDs abgeschieden und der Schichtwachstum untersucht. Die Rauigkeit von 15 Doppelschichten liegt bei 2,3 nm, der Wachstum ist auf beiden Proben linear, auf der ebenen GaAs Oberfläche ergibt sich ein Schichtwachstum von 0,69 nm/Doppellage, auf der Mikrodiskprobe von 0,82 nm/Doppellage. Elektronenmikroskopische Untersuchungen bestätigen, dass die Mikrodisk durch die Beschichtung homogen vom PEL eingeschlossen wird.

Die Energieänderung einer WGM der MD wurde in Abhängigkeit der steigenden Schichtdicke aufgenommen, die Mode verschiebt bis zur Sättigung bei 80 nm PEL-Schichtdicke um $-15,1$ meV. Theoretische Rechnungen, die nur die Veränderung des Brechungsindexprofils in vertikaler Richtung beachten, geben den Punkt der Sättigung sehr gut wieder, die Höhe der spektralen Verschiebung ist mit $-11,5$ meV aber etwas geringer als im Experiment, was darauf zurückgeführt werden kann, dass die Effekte in lateraler Richtung vernachlässigt wurden. Der Vergleich von Rechnung und Experiment lässt schließen, dass die Verschiebung der Mode zu etwa 75 % hervorgerufen wird von den Einflüssen in vertikaler Richtung und zu 25 % in lateraler Richtung.

Die Laserschwelle steigt durch das Beschichten mit 95 Doppellagen PEL auf das Sechsfache des ursprünglichen Wertes an, da es in der PEL Schicht zu erhöhter Streuung und Absorption kommt, die Zunahme von P_{th} ist also kein intrinsischer Effekt des Resonators. Die Stabilität der Polyelektrolyte auf der Mikrodisk für Tieftemperaturmessungen wie z.B. Kopplungsexperimente mit einzelnen Quantenpunkten wurde gezeigt durch einen Kühl-/Heizzyklus, nach dem die photonische Mode wieder auf ihre spektrale Ausgangslage zurück schiebt, was bestätigt, dass es bei den tiefen Temperaturen nicht zu Ausgasungen oder Strukturänderungen kommt.

Das in den PEL Doppelschichten verwendete Polyanion PAZO kann durch Bestrahlung mit UV-Licht photoisomerisiert werden, dadurch kommt es in der PEL Schicht zu einer Strukturänderung, denn die AZO-Gruppe des Moleküls klappt unter der UV-Exposition um, dadurch wird durch die Photoisomerisation die Absorption in der Schicht verringert. Dies führt zu einem geringeren komplexen Brechungsindex des Mikrodiskhintergrundes, wenn die MD im PEL eingebettet ist, und damit zu einem verbesserten Einschluss der WGM. Unter Bestrahlung mit UV-Licht der Wellenlänge 340...380 nm, 0,02 mW blauverschiebt dadurch die resonante Mode um 4,5 meV, die Sättigung wird nach 20 Stunden erreicht, was auf die starke ionische Wechselwirkung zwischen den Anionen

und Kationen in der Schicht zurückzuführen ist, die das Umklappen der AZO Gruppe behindert. Durch das Einbetten der MD in eine PEL Schicht kann also ein vollständig optisch arbeitender durchstimmbarer Mikrodisklaser realisiert werden.

Es konnten in dieser Arbeit also eine Reihe neuer Verfahren zum Durchstimmen der photonischen Moden von Mikroresonatoren entwickelt und untersucht werden. Es wurde gezeigt, dass durch das Einbetten einer Mikrodisk in einen nematischen Flüssigkristall ein elektrisch durchstimmbarer Mikrolaser erzeugt werden kann, und durch die Beschichtung mit Polyelektrolyten ein vollständig optisch arbeitender durchstimmbarer Mikrolaser. Zum Vergleich zu der in Kapitel 2.6 gezeigten Übersichtstabelle 2.6 wird die nun erweiterte Tabelle 8 hier noch einmal gezeigt.

Verfahren	MDs	PCs	Temp.bereich		rev.	Auflösung		aktiv	Nachteile
			5K	RT		hoch	niedrig		
Temperatur	X	X	X		X	X		X	kurze Lebensd.
L.trägerinjektion		X	X		X	X		X	
schrittweise Ätzen		X	X	X			X		
Nanooxidieren		X	X	X		X			$\Delta E < 4$ nm hoher Aufwand
Monolagen Ads.	X	X	X		X	X		X	
LC + Temp.	X	X		X	X	X		X	
LC + E-Feld	X	X		X	X	X		X	Abnahme Güte
Bedampfen SiO ₂		X	X	X		X			
ALD Ta ₂ O ₅		X	X	X		X			
PEL Aufschleudern	X		X	X		X			
PEL Isomerie	X		X	X	X	X		X	

Tabelle 8.1.: Übersicht über Verfahren zum Durchstimmen der Resonanzen in einer Mikrokavität, die in dieser Arbeit neu eingeführten Verfahren sind mit rot hervorgehoben.

Wie anfangs gefordert, wurden hauptsächlich Verfahren entwickelt, die auch bei Raumtemperatur arbeiten können, die eine hohe Auflösung haben und zudem Verfahren, die in einer permanenten Verschiebung der Mode resultieren. Wert gelegt wurde auch darauf, neue Verfahren für die Verwendung bei Mikrodisk zu entwickeln.

Für weitergehende Experimente, die auch physikalische Erkenntnisse über die Einflüsse auf die photonischen Moden der Resonatoren liefern, eignen sich besonders das Einbetten der Kavitäten in Flüssigkristalle und das Beschichten mit photochromen Materialien, die eine Photoisomerie durchlaufen können.

Der Einfluss des Flüssigkristall auf die Laserswellen der lasenden Moden der Mikrodisk sollte noch weiter untersucht werden, dazu ist es sinnvoll, systematisch die Radien von Mikrodisk mit und ohne LC zu reduzieren. Um den unterschiedlichen Einfluss der Streuung und Oberflächenrekombinationsgeschwindigkeit auf den minimalen Radius zu verifizieren sollten Mikrodisk mit noch geringeren Radien charakterisiert werden.

Um optisch durchstimmbare Mikrodisklaser zu realisieren, die schneller arbeiten, als das hier mit der Verwendung der mit AZO-Gruppen funktionalisierten Polyelektrolyte gelungen ist, wird die Verwendung von Diarylethenen vorgeschlagen, die unter Bestrahlung mit UV-Licht eine *Open-Closed*-Ring Isomerisation durchlaufen können. Die Photoisomerisation hat gegenüber der trans-cis-Isomerisation den Vorteil, dass die Schichtstruktur nicht verändert werden muss. Dadurch ist diese Isomerisation des Diarylethens um Größenordnungen schneller.

Eine Erhöhung der Energieänderung der resonanten Mode kann man hier zudem dadurch erwarten, dass man den Emissionsbereich der WGM bei höherer Energie – und damit näher am Absorptionsmaximum des einbettenden photochromen Materials – wählt. Um die Energie der resonanten Moden zu erhöhen, könnte man zu einem anderen Materialsystem wechseln.

A. Anhang

A.1. MBE-Wachstumsparameter

In den folgenden Tabellen sind die Wachstumsparameter der drei verwendeten Probenmaterialie beschrieben.

Quantenpunkt-Material mit 33% Aluminiumanteil

Material Nr. 12780

Orientierung (100)

Schicht	Wiederholung	Temperatur [°C]	Dauer [s]	Dicke [nm]
GaAs:Si	Do: 16×	660,0	1537,7	299,9
Al _{0,33} Ga _{0,67} As		630,0	17,1	5,0
Al _{0,33} Ga _{0,67} As		660,0	1695,2	495,0
GaAs		660,0	615,4	120,0
InAs		582,0	4,0	0,0
GaAs		572,0	41,0	8,0
GaAs		660,0	574,4	112,0

Quantenpunkt-Material mit 70% Aluminiumanteil

Material Nr. 12850

Orientierung (100)

Schicht	Wiederholung	Temperatur [°C]	Dauer [s]	Dicke [nm]
GaAs:Si	Do: 12×	650,0	1427,9	299,9
Al _{0,70} Ga _{0,30} As		620,0	7,2	5,0
Al _{0,70} Ga _{0,30} As		650,0	710,2	495,0
GaAs		650,0	571,4	120,0
InAs		572,0	4,0	0,0
GaAs		562,0	38,1	8,0
GaAs		650,0	533,3	112,0

Quantenfilm-Material

Material Nr. 13608

Orientierung (100)

Schicht	Temperatur [°C]	Dauer [s]	Dicke [nm]
GaAs	643,0	247,8	50,0
GaAs:Si	643,0	1486,6	300,0
Al _{0,70} Ga _{0,30} As	643,0	1730,1	350,0
GaAs	643,0	247,8	50,0
Al _{0,33} Ga _{0,67} As	643,0	33,2	10,0
GaAs	643,0	99,1	20,0
In _{0,28} Ga _{0,72} As	564	35,0	3,0
GaAs	564,0	49,5	10,0
GaAs	643,0	49,5	10,0
Al _{0,33} Ga _{0,67} As	643,0	32,6	9,8
GaAs	643,0	247,8	50,0

A.2. Lithografieparameter

Die Probenpräparation aller Proben fand ausschließlich in einem Reinraum der Klasse 5 statt. Die Reinigung erfolgte mit Aceton und Isopropanol. Die folgenden Lithografie- und Strukturierungsparameter unterscheiden sich je nach verwendetem Lack.

Optische Lithografie Positivlack

Lack	<i>AZ 1518</i> von <i>MicroChemicals</i>
Schleudern	30 s bei 6000 U/min
Aushärten	45 s bei 90 °C
Belichtung	15 s
Entwickeln	20 s in <i>AZ 400k</i> von <i>MicroChemicals</i> , verdünnt mit Reinstwasser im Verhältnis 1:4
Stopper	Reinstwasser 30 s
Remover	Aceton 20 s

Elektronenstrahlithografie Negativlack

Lack	<i>ma-N 2405</i> von <i>micro resist technology</i>
Schleudern	30 s bei 6000 U/min
Aushärten	90 s bei 90 °C
Beschleunigungsspannung	20 kV
Strahlstrom	200 pA
Blende	20 µm
Elektronendosis	80 µC/cm ²
Entwickeln	45 s in <i>ma-D 532</i> von <i>micro resist technology</i>
Stopper	Reinstwasser 30 s
Remover	Aceton 20 s bis zu Stunden (nach Plasmaätzen)

Elektronenstrahlithografie Positivlack

Lack	<i>ZEP 520a</i> von <i>ZEON Corporation</i>
Schleudern	60 s bei 3500 U/min
nominelle Schichtdicke	380 nm
Aushärten	120 s bei 180 °C
Beschleunigungsspannung	20 kV
Strahlstrom	90 pA
Blende	20 µm
Elektronendosis	27 µC/cm ²
Punktbelichtung	3,5 µs
Punktdosis	0,316 fAs
Entwickeln	75 s in <i>ZED-500</i> von <i>ZEON Corporation</i>
Stopper	Isopropanol 30 s
Remover	5 min bei 75°C in <i>1165</i> von <i>Rohm and Haas Electronic Materials</i>

Plasmaätzprozess GaAs

Elektrodentemperatur	20°C
Kammerdruck	2,0 mTorr
Leistung RF	23 W
Leistung ICP	60 W
Fluss SiCl ₄	4,5 sccm
Fluss Ar	4,5 sccm
DC-Bias	210 V
Dauer	150 bis 180 s

Plasmaätzprozess SiO₂

Elektrodentemperatur	20°C
Kammerdruck	30,0 mTorr
Leistung RF	150 W
Leistung ICP	—
Fluss CHF ₃	12 sccm
Fluss Ar	38 sccm
DC-Bias	620 V
Dauer	105 s

PECVD SiO₂

Elektrodentemperatur	300°C
Kammerdruck	1000,0 mTorr
Leistung RF	20 W

Leistung ICP	—
Fluss SiH_4	400 sccm
Fluss N_2O	400 sccm
Brechungsindex	1,46
Dauer	66 s

A.3. Transmissionspektren

Transmission des Strahlteilers

Der im PL-Aufbau verwendete Strahlteiler besteht aus beschichtetem Quarzglas und wurde in der optischen Werkstatt der Universität Duisburg-Essen entworfen und hergestellt. Die verschwindende Transmission im Bereich von 730 – 830 nm wurde durch Beschichtungen mit dünnen Schichten erreicht. Die Transmissionseigenschaften unter einem Einfallswinkel von 45° sind in Abbildung A.1 gezeigt.

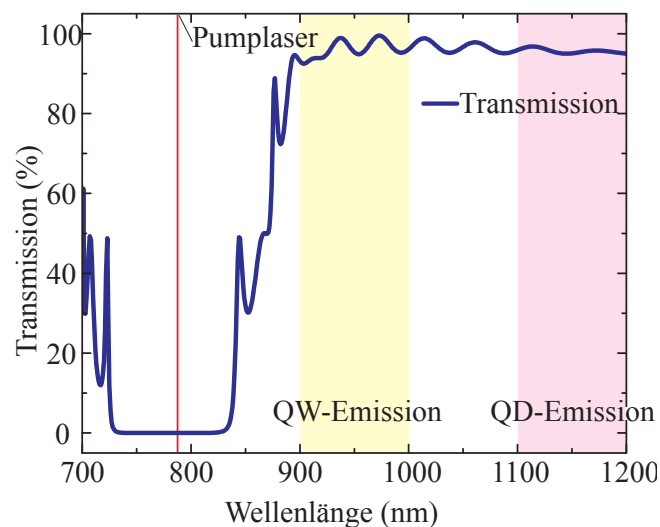


Abbildung A.1.: Transmission des Strahlteilers unter einem Einfallswinkel von 45° .

Im Bereich der Wellenlänge der beiden Pumplaser bei 780 nm ist die Transmission des Strahlteilers nahezu null, d.h. das Laserlicht wird vollständig auf die Probe reflektiert und gelangt außerdem nicht in den Ausgangsstrahlengang. Im Wellenlängenintervall, in dem die beiden Probenmaterialie Photolumineszenz zeigen $\lambda_{QW} = 900 \dots 1000 \text{ nm}$ und $\lambda_{QD} = 1100 \dots 1300 \text{ nm}$, wird die Intensität der elektromagnetischen Welle zu etwa 95 % transmittiert, so dass das PL-Licht zum Spektrometer geleitet werden kann.

Transmission der ITO beschichteten Deckgläser

Abbildung A.2 zeigt das Transmissionsspektrum der mit ITO beschichteten Deckgläser unter einem Einfallswinkel von 0° , die bei den mit Flüssigkristallen präparierten Proben, die E -feldabhängig gemessen wurden, als obere Elektrode dienten. Die Transmission liegt über den gesamten für die Messungen interessanten Bereich bei etwa 85 %.

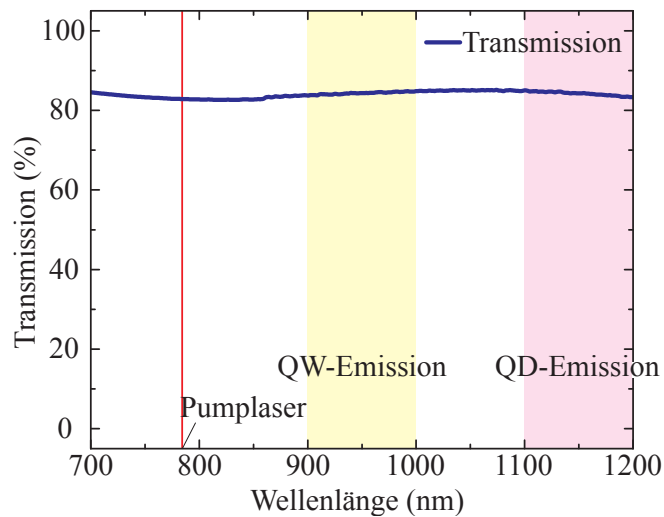


Abbildung A.2.: Transmission der mit ITO beschichteten Deckgläser unter einem Einfallswinkel von 0° .

Literaturverzeichnis

- [1] E. Yablonovitch, Phys. Rev. Lett. **58**, 2059 (1987).
- [2] S. John, Phys. Rev. Lett. **58**, 2486 (1987).
- [3] S. L. McCall, A. F. J. Levi, R. E. Slusher, S. J. Pearton, and R. A. Logan, Appl. Phys. Lett. **60**, 289 (1992).
- [4] Y.-S. Choi, K. Hennessy, R. Sharma, E. Haberer, Y. Gao, S. P. DenBaars, S. Nakamura, E. L. Hu, and C. Meier, Appl. Phys. Lett. **87**, 243101 (2005).
- [5] J. Vučković and Y. Yamamoto, Appl. Phys. Lett. **82**, 2374 (2003).
- [6] C. Fabre, in *Confined Photon Systems*, Ed.: H. Benisty, J. M. Gérard, R. Houdré, J. Rarity, and C. Weisbuch, Springer, Berlin (1999).
- [7] K. Srinivasan and O. Painter, Nature **450**, 862 (2007).
- [8] M. Nomura, N. Kumagai, S. Iwamoto, Y. Ota, and Y. Arakawa, Opt. Express **17**, 15975 (2009).
- [9] P. Michler, A. Kiraz, L. Zhang, C. Becher, E. Hu, and A. Imamoğlu, Appl. Phys. Lett. **77**, 184 (2000).
- [10] A. Kiraz, P. Michler, C. Becher, B. Gayral, A. Imamoğlu, L. Zhang, and E. Hu, Appl. Phys. Lett. **78**, 3932 (2001).
- [11] J. R. Buck and H. J. Kimble, Phys. Rev. A **67**, 033806 (2003).
- [12] C. J. Hood, T. W. Lynn, A. C. Doherty, A. S. Parkins, and H. J. Kimble, Science **287**, 1447 (2000).
- [13] P. Michler, A. Kiraz, C. Becher, W. V. Schoenfeld, P. M. Petroff, L. Zhang, E. Hu, and A. Imamoğlu, Science **290**, 2282 (2000).
- [14] I. Fushman, D. Englund, A. Faraon, N. Stoltz, P. Petroff, and J. Vučković, Science **320**, 769 (2008).
- [15] A. Faraon, D. Englund, I. Fushman, J. Vučković, N. Stoltz, and P. Petroff, Appl. Phys. Lett. **90**, 213110 (2007).

- [16] P. Michler, A. Imamoğlu, M. D. Mason, P. J. Carson, G. F. Strouse, and S. K. Burato, *Nature* **406**, 968 (2000).
- [17] A. Badolato, K. Hennessy, M. Atatüre, J. Dreiser, E. Hu, P. M. Petroff, and A. Imamoğlu, *Science* **308**, 1158 (2005).
- [18] K. Hennessy, C. Högerle, E. Hu, A. Badolato, and A. Imamoğlu, *Appl. Phys. Lett.* **89**, 041118 (2006).
- [19] S. Strauf, M. T. Rakher, I. Carmeli, K. Hennessy, C. Meier, A. Badolato, M. J. A. DeDood, P. M. Petroff, E. L. Hu, E. G. Gwinn, and D. Bouwmeester, *Appl. Phys. Lett.* **88**, 043116 (2006).
- [20] K. Srinivasan and Oscar Painter, *Appl. Phys. Lett.* **90**, 031114 (2007).
- [21] A. V. Kavokin, J. J. Baumberg, G. Malpuech, F. P. Laussy, *Microcavities*, Oxford University Press, Inc., New York (2007).
- [22] Lord Rayleigh, *Scientific Papers* **5**, pp. 617 (1912).
- [23] M. H. Shih, K. S. Hsu, Y. C. Wang, Y. C. Yang, S. K. Tsai, Y. C. Liu, Z. C. Chang, and M. C. Wu, *Opt. Express* **17**, 991 (2009).
- [24] M. H. Shih, K. S. Hsu, W. Kunag, Y. C. Yang, Y. C. Wang, S. K. Tsai, Y. C. Liu, Z. C. Chang, and M. C. Wu, *Opt. Lett.* **34**, 2733 (2009).
- [25] A. Morang, Y. Zhang, B. Martin, K. P. Huy, D. Amans, P. Benech, J. Verbert, E. Hadji, and J-M. Fédéli, *Opt. Express* **14**, 12814 (2006).
- [26] A. Yariv, *Photonics*, 6th Ed., Oxford University Press, Inc., New York (2007), S. 111.
- [27] M. K. Chin, D. Y. Chu, and S.-T. Ho, *J. Appl. Phys.* **75**, 3302 (1994).
- [28] J. D. Leslie and K. Knorr, *J. Electrochem. Soc.* **121**, 263 (1974).
- [29] S. T. Wu, C. S. Wu, M. Warenghem, and M. Ismaili, *Opt. Eng. (Bellingham)* **32**, 1775 (1993).
- [30] M. Born and E. Wolf, *Principle of Optics*, 6th ed., Pergamon, New York, (1980).
- [31] J. Li, and S.-T. Wu, *J. Appl. Phys.* **95**, No. 3 (2004).
- [32] D. T. F. Marple, *J. Appl. Phys.* **35**, 1241 (1964).
- [33] Lord Rayleigh, *Phil. Mag.* **24**, 145 (1887).
- [34] H. Ghiradella, *Appl. Opt.* **30**, 3492 (1991).

- [35] L. P. Biró, Zs. Bálint, K. Kertész, Z. Vértesy, G. I. Márk, Z. E. Horváth, J. Balázs, D. Méhn, I Kiricsi, V. Lousse, and J. P. Vigneron, *Phys. Rev. E* **67**, 021907 (2003).
- [36] A. R. Parker, D. R. McKenzie, and M. C. J. Large, *J. Exp. Biol.* **201**, 1307 (1998).
- [37] J. D. Joannopoulos, S. G. Johnson, J. N. Winn, R. D. Meade, *Photonic Crystals*, Second Edition, Princeton University Press, Princeton and Oxford (2008).
- [38] T. Ochiai and K. Sakoda, *Phys. Rev. B* **63**, 125107 (2001).
- [39] J. R. Wendt, G. A. Vawter, P. L. Gourley, T. M. Brennan, and B. E. Hammons, *J. Vac. Sci. & Tech. B* **11**, 2637 (1993).
- [40] K. A. Piegdon, *Kopplung photonischer Resonatoren mit Flüssigkristallen*, Diplomarbeit, Universität Duisburg-Essen (2007).
- [41] O. Painter, R. K. Lee, A. Scherer, A. Yariv, J. D. O'Brian, P. D. Dapkus, and I. Kim, *Science* **284**, 1819 (1999).
- [42] C. Reese, B. Gayral, B. D. Gerardot, A. Imamoğlu, P. M. Petroff, and E. Hu, *J. Vac. Sci. Technol. B* **19**, 2749 (2001).
- [43] K. J. Vahala, *Nature* **424**, 839 (2003).
- [44] O. Painter, J. Vučković, and A. Scherer, *J. Opt. Soc. Am. B* **16**, 275 (1999).
- [45] Y. Akahane, T. Asano, B.-S. Song, and S. Noda, *Appl. Phys. Lett.* **83**, 1512 (2003).
- [46] Y.-S. Choi, M. T. Rakher, K. Hennessy, S. Strauf, A. Badolato, P. M. Petroff, D. Bouwmeester, and E. L. Hu, *Appl. Phys. Lett.* **91**, 031108 (2007).
- [47] Y. Akahane, T. Asano, B.-S. Song, and S. Noda, *Nature* **425**, 944 (2003).
- [48] X. Yang and C. W. Wong, *Opt. Express* **15**, 4763 (2007).
- [49] K. Hennessy, A. Badolato, M. Winger, D. Gerace, M. Atatüre, S. Gulde, S. Fält, E. L. Hu, and A. Imamoğlu, *Nature* **445**, 896 (2007).
- [50] K. Hennessy, C. Reese, A. Badolato, C. F. Wang, A. Imamoğlu, P. M. Petroff, and E. L. Hu, *J. Vac. Sci. Technol. B* **21**, 2918 (2003).
- [51] H.-Y. Ryu, J.-K. Hwang, and Y.-H. Lee, *Phys. Rev. B* **59**, 5463 (1999).
- [52] Y. Chen, R. Cingolani, L. C. Andreani, F. Bassini, and J. Massies, *Il Nuovo Cimento* **10**, 847 (1988).
- [53] C. Kim, Y.-J. Kim, E.-S. Jang, G.-C. Yi, and H. H. Kim, *Appl. Phys. Lett.* **88**, 093104 (2006).

- [54] S. S. Kim, Y.-J. Kim, G.-C. Yi, and H. Cheong, J. Appl. Phys. **106**, 094310 (2009).
- [55] D. J. Gargas, M. C. Moore, A. Ni, S.-W. Chang, Z. Zhang, S.-L. Chuang, and P. Yang, Acs Nano **4**, 3270 (2010).
- [56] X. Liu, W. Fang, Y. Huang, X. H. Wu, S. T. Ho, H. Cao, and R. P. H. Chang, Appl. Phys. Lett. **84**, 2488 (2004).
- [57] J. H. Davies, *The Physics of low-dimensional semiconductors*, Cambridge University Press, Cambridge (1998).
- [58] N. G. Anderson, W. D. Laidig, R. M. Kolbas, and Y. C. Lo, J. Appl. Phys. **60**, 2361 (1986).
- [59] I. N. Stranski and L. von Krastanow, Akad. Wiss. Lit. Mainz. Math.-Nat. Kl. IIB **146**, 797 (1939).
- [60] V. A. Shchukin, D. Bimberg, Rev. Mod. Phys. **71**, 1125 (1999).
- [61] J. Alsmeier, E. Batke, and J. P. Kotthaus, Phys. Rev. B **41**, 1699 (1990).
- [62] T. Demel, D. Heitmann, P. Grambow, and K. Poog, Phys. Rev. Lett. **64**, 788 (1990).
- [63] H. Drexler, D. Leonhard, W. Hansen, J. P. Kotthaus, and P. M. Petroff, Phys. Rev. Lett. **73**, 2252 (1994).
- [64] R. Rinaldi, P. V. Giugno, R. Cingolani, H. Lipsanen, M. Sopanen, J. Tulkki, and J. Ahopelto, Phys. Rev. Lett. **77**, 342 (1996).
- [65] V. Fock, Z. Phys. **47**, 446 (1928).
- [66] C. G. Darwin, Proc. Cambridge Phil. Soc. **27**, 86 (1930).
- [67] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu, and F. Laloë, *Quantum Mechanics*, Vol. 1, Wiley & Sons (1977).
- [68] J.-Y. Marzin, J.-M. Gérard, A. Izraël, D. Barrier, and G. Bastard, Phys. Rev. Lett. **73**, 716 (1994).
- [69] M. Grundmann, J. Christen, N. N. Ledentsov, J. Böhrer, D. Bimberg, S. S. Ruvimov, P. Werner, U. Richter, U. Gösele, J. Heydenreich, V. M. Ustinov, A. Y. Egorov, A. E. Zhukov, P. S. Kop'ev, and Z. I. Alferov, Phys. Rev. Lett. **74**, 4043 (1995).
- [70] T. H. Maiman, Nature **187**, 4736 (1960).
- [71] A. Einstein, Physikalische Zeitung **18**, 121 (1917).

- [72] A. E. Siegman, *Lasers*, University Science Books, Mill Valley (1986).
- [73] C. Becher, A. Kiraz, P. Michler, A. Imamoğlu, W. V. Schoenfeld, P. M. Petroff, L. Zhang, and E. Hu, Phys. Rev. B **63**, 121312 (2001).
- [74] F. Hofbauer, S. Grimminger, J. Angele, G. Böhm, R. Meyer, M. C. Amann, and J. J. Finley, Appl. Phys. Lett. **91**, 201111 (2007).
- [75] I. Fushman, E. Waks, D. Englund, N. Stoltz, P. Petroff, and J. Vučković, Appl. Phys. Lett. **90**, 091118 (2007).
- [76] K. Busch and S. John, Phys. Rev. Lett. **83**, 967 (1999).
- [77] S. W. Leonard, J. P. Mondia, H. M. van Driel, O. Troader, S. John, K. Busch, A. Birner, U. Gösele, and V. Lehmann, Phys. Rev. B **61**, 2389 (2000).
- [78] D. Kang, J. E. MacLennan, N. A. Clark, A. A. Zakhidov, and R. H. Baughman, Phys. Rev. Lett. **86**, 4052 (2001).
- [79] M. Ozaki, Y. Shimoda, M. Kasano, and K. Yoshino, Adv. Mater. **14**, No. 7 (2002).
- [80] Y. Shimoda, M. Ozaki, and K. Yoshino, Appl. Phys. Lett. **79**, No. 22 (2001).
- [81] Ch. Schuller, F. Klopff, J. P. Reithmaier, M. Kamp, and A. Forchel, Appl. Phys. Lett. **82**, No. 17 (2003).
- [82] G. Mertens, R. B. Wehrspohn, and H.-S. Kitzerow, Appl. Phys. Lett. **87**, 241108 (2005).
- [83] M. A. Dündar, H. H. J. E. Kicken, A. Yu. Silov, R. Nötzel, F. Karouta, H. W. M. Salemink, and R. W. van der Heijden, Appl. Phys. Lett. **95**, 181111 (2009).
- [84] K. A. Piegdon, H. Matthias, C. Meier, and H.-S. Kitzerow, Proc. SPIE **6911**, (2008).
- [85] K. A. Piegdon, M. Offer, A. Lorke, M. Urbanski, A. Hoischen, H.-S. Kiterow, S. Declair, J. Förstner, T. Meier, D. Reuter, A. D. Wieck, and C. Meier, Physica E **42**, 2552 (2010).
- [86] K. A. Piegdon, S. Declair, J. Förstner, T. Meier, H. Matthias, M. Urbanski, H.-S. Kitzerow, D. Reuter, A. D. Wieck, A. Lorke, and C. Meier, Opt. Express **18**, 7946 (2010).
- [87] J. Förstner, C. Meier, K. A. Piegdon, S. Declair, A. Hoischen, M. Urbanski, T. Meier, and H.-S. Kitzerow, *Nonlinear Optics: Materials, Fundamentals and Applications*, OSA Technical Digest (2009).
- [88] J. M. Ballingall and C. E. C. Wood, Appl. Phys. Lett. **41**, 10 (1982).

- [89] S. Adachi and K. Oe, J. Electrochem. Soc. **130**, 12 (1983).
- [90] W. S. Lau, E. F. Chor, S. P. Kek, W. H. bin Abdul Aziz, H. C. Lim, C. H. Heng, and R. Zhao, Jpn. J. Appl. Phys. **36**, 3770 (1997).
- [91] B. Gayral, J. M. Gerard, A. Lemaitre, C. Dupuis, L. Manin, and J. L. Pelouard, Appl. Phys. Lett. **75**, 13 (1999).
- [92] H. Huang, Y. Huang, and X. Ren, J. Vac. Sci. Technol. B **20**, 3 (2002).
- [93] H. Stegemeyer, *Liquid Crystals*, Steinkopff Darmstadt (1994).
- [94] I. C. Khoo, S. T. Wu, *Optics and nonlinear Optics of Liquid Crystals*, World Scientific Publishing, Singapore (1993).
- [95] M. Humar, M. Ravnik, S. Pajk, and I. Muševič, Nature Photonics **3**, pp.595-600 (2009).
- [96] I. C. Khoo, *Liquid Crystals*, Second Edition, John Wiley & Sons, Inc., Hoboken, New Jersey (2007).
- [97] Ch. Schuller, J. P. Reithmaier, J. Zimmermann, M. Kamp, and A. Forchel, Appl. Phys. Lett. **87**, 121105 (2005).
- [98] G. Mertens, T. Röder, H. Matthias, H. Marsmann, and H.-S. Kitzerow, Appl. Phys. Lett. **83**, No. 15 (2003).
- [99] M. Urbanski, K. A. Piegdon, C. Meier, and H.-S. Kitzerow, Liq. Cryst. **38**, 475 (2011).
- [100] A. Kilian, Liq. Cryst. **14**, 1189 (1993).
- [101] P. Poulin and D. A. Weitz, Phys. Rev. E: Stat., Nonlinear Soft Matter Phys. **57**, 626 (1998).
- [102] I. I. Smalyukh, S. V. Shiyankovskii, O. D. Lavrentovich, Chem. Phys. Lett. **336**, 88 (2001).
- [103] T. Baba and D. Sano, IEEE J. Sel. Top. Quant. **9**, 1340 (2003).
- [104] M. Fujita, A. Sakai, and T. Baba, IEEE J. Sel. Top. Quant. **5**, 673 (1999).
- [105] T. Baba, K. Inoshita, H. Tanaka, J. Yonekura, M. Ariga, A. Matsutani, T. Miyamoto, F. Koyama, and K. Iga, J. Lightwave Technol. **17**, 2113 (1999).
- [106] H. Ichikawa, K. Inoshita, and T. Baba, Appl. Phys. Lett. **78**, 2119 (2001).
- [107] B. E. Little and S. T. Chu, Opt. Lett. **21**, 1390 (1996).

- [108] B.-J. Li and P.-L. Liu, IEEE J. Quantum Electron. **33**, 791 (1997).
- [109] K. Srinivasan, M. Borselli, O. Painter, A. Stintz, and S. Krishna, Opt. Express **14**, 1094 (2006).
- [110] V. A. Mandelshtam and H. S. Taylor, J. Chem. Phys. **107**, 6756 (1997). Erratum, ibid. **109**, 4128 (1998).
- [111] K. B. Blodgett, J. Am. Chem. Soc. **56**, 495 (1934).
- [112] K. B. Blodgett, I. Langmuir, Phys. Rev. **51**, 964 (1937).
- [113] G. Decher, and J.-D. Hong, Makromol. Symp. **1991**, 46, 321.
- [114] G. Decher, J.-D. Hong, and J. Schmitt, Thin Solid Films **1992**, 210/211, 831.
- [115] G. Decher, and J. Schmitt, Progr. Colloid Polym. Sci. **1992**, 89, 160-164.
- [116] J. Schmitt, T. Grünwald, T. Kjær, K. Pershan, G. Decher, and M. Lösche, Macromolecules **1993**, 26, 7058 ff..
- [117] G. Decher in *Multilayer Thin Films*, Ed.: G. Decher, and J. B. Schlenoff, WILEY-VCH, Weinheim (2003).
- [118] G. Decher, Science **277**, 1232 (1997).
- [119] P. Bertrand, A. Jonas, A. Laschewsky, and R. Legras, Macromol. Rapid Commun. **21**, 319 (2000).
- [120] P. A. Chiarelli, M. S. Johal, J. L. Casson, J. B. Roberts, J. M. Robinson, and H.-L. Wang, Adv. Mater. **13**, 15 (2001).
- [121] J. Cho, K. Char, J.-D. Hong, and K.-B. Lee, Adv. Mater. **13**, 14 (2001).
- [122] P. A. Chiarelli, M. S. Johal, D. J. Holmes, J. L. Casson, J. M. Robinson, and H.-L. Wang, Langmuir **18**, 168 (2002).
- [123] H. Rau in *Photochemistry and Photophysics*, Ed.: J. F. Rabek, CRC Press, Boca Raton, FL **1990**, vol. 2, p. 119.
- [124] B. Tieke, M. Pyrasch, and A. Toutianoush in *Multilayer Thin Films*, Ed.: G. Decher, and J. B. Schlenoff, WILEY-VCH, Weinheim (2003).
- [125] Th. Fischer, L. Läsker, J. Stumpe, and S. G. Kostromin, J. Photochem. Photobiol. A **80**, 453 (1994).
- [126] T. Todorov, L. Nikolova, and N. Tomova, Appl. Opt. **23**, 23 (1984).

- [127] Q. Ferreira, P. J. Gomes, M. Raposo, J. A. Giacometti, O. N. Oliveira, Jr., and P. A. Ribeiro, *J. Nanosci. Nanotechnol.* **7**, 8 (2007).
- [128] D. S. dos Santos, Jr., M. R. Cardoso, F. L. Leite, R. F. Aroca, L. H. C. Mattoso, O. N. Oliveira, Jr., and C. R. Mendonça, *Langmuir* **22**, 6177 (2006).
- [129] O. N. Oliveira, Jr., D. S. dos Santos, Jr., D. T. Balogh, V. Zucolotto, C. R. Mendonça, *Adv. Colloid Interface Sci.* **116**, 179-192 (2005).
- [130] J. L. Casson, D. W. McBranch, J. M. Robinson, H.-L. Wang, J. B. Roberts, P. A. Chiarelli, and M. S. Johal, *J. Phys. Chem. B.* **104**, 11996 (2000).
- [131] S. Dante, R. Advincula, C. W. Frank, and P. Stroeve, *Langmuir* **15** 193 (1999).
- [132] W. T. S. Huck, L. Yan, A. Stroock, R. Haag, and G. M. Whitesides, *Langmuir* **15**, 6862 (1999).
- [133] K. A. Piegdon, M. Lexow, G. Grundmeier, K. Pärschke, D. Mergel, D. Reuter, A. D. Wieck, H.-S. Kitzerow, and C. Meier, *All-optical tunability of microdisk lasers via polyelectrolyte functionalization*, submitted to *Adv. Mater.* (2011).
- [134] A. Urbas, J. Klosterman, V. Tondiglia, L. Natarajan, R. Sutherland, O. Tsutsumi, T. Ikeda, and T. Bunning, *Adv. Mater.* **16**, 1453 (2004).
- [135] T. J. White, R. L. Bricker, L. V. Natarajan, V. P. Tondiglia, L. Green, Q. Li, and T. J. Bunning, *Optics Express* **18**, 173 (2010).
- [136] A. Urbas, V. Tondiglia, L. Natarajan, R. Sutherland, H. Yu, J.-H. Li, and T. Bunning, *J. Am. Chem. Soc.* **126**, 13580 (2004).
- [137] T. Ikeda and O. Tsutsumi, *Science* **268**, 1873 (1995).
- [138] Y. Lvov, S. Yamada, and T. Kunitake, *Thin Solid Films* **300**, 107 (1997).

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich noch bei einigen Menschen bedanken, die mich während meiner Zeit als Doktorandin begleitet und unterstützt haben.

Als erstes ist da Prof. Dr. Cedrik Meier zu nennen, dem ich für die intensive Betreuung, viele Jahre guter Zusammenarbeit, interessante Gespräche und das entgegengebrachte Vertrauen danke. Zudem zolle ich ihm Dank für die Durchführung der Rechnung zu den Polyelektrolyten.

Prof. Dr. Axel Lorke von der Uni Duisburg-Essen und seiner gesamten Arbeitsgruppe so wie den ehemaligen Mitarbeitern möchte ich danken für die gute Zusammenarbeit und Kooperation. Ebenso danke ich Prof. Dr. Kitzerow und Martin Urbanski für die fruchtbare Kooperation, die Präparation der Proben mit den Flüssigkristallen und die Direktorfeldmessungen. Matthias Lexow danke ich für die Einwellenlängen-Ellipsometriemessungen und Klaus Pärschke für die spektralen Ellipsometriemessungen. Desweiteren möchte ich mich bei Prof. Dr. Torsten Meier und Dr. Jens Förstner für die Kooperation und Stefan Declair für die FDTD Simulationen danken.

Mein Dank geht auch nach Bochum an Dr. Dirk Reuter und Prof. Dr. Andreas Wieck, die mich während der gesamten Zeit mit Probenmaterial versorgt haben. Für die ALD Beschichtungen danke ich Dr. Adriana Szeghalmi, und für die AFM Messungen Irina Laubenstein und Philipp Kröger.

Für die gute Zusammenarbeit und den guten Gruppenzusammenhalt danke ich allen heutigen und ehemaligen Mitarbeitern der Arbeitsgruppe, dies sind insbesondere Marcel Ruth, Minisha Metha, Christina Fobbe, Manuel Bader, Igor Tolstoschein, Irina Laubenstein, Sandro Hoffmann und Dennis Wecker.

Darüber hinaus danke ich meiner Familie, meinen Freunden und Studienkollegen für die psychologische und persönliche Unterstützung, viel Kraft, rauschende Feste und anregende Diskussionen; hier möchte ich persönlich nennen: meine Mutter Monika Piegdon, meinen Vater Alfred Piegdon, meine Geschwister Julia Henßler und David Piegdon, Carola Jansen, Nadine Fischer und Nadine van der Schoot, Natalia Kedyarova, Ramona Nünthel, Nathan Nielsch, Arkadius Ganczarczyk, Anne Warland, Anna Grünebohm, Martin Magiera und Mario Siewert mit seiner Frau Mareijke.

Versicherung

Ich erkläre, dass ich diese Dissertation selbstständig verfasst und alle benutzten Quellen und Hilfsmittel vollständig angegeben habe. Ich erkläre weiterhin, dass ich weder früher noch gleichzeitig ein Promotionsverfahren in einem anderen Fachbereich bzw. einer anderen Fakultät beantragt habe.

Ulm, den 9. Juli 2011