

# **In-situ Kathodolumineszenzlithographie zur Herstellung deterministischer Quantenbauelemente**

vorgelegt von  
Diplom-Physiker  
Manuel Gschrey  
Geb. in Oberviechtach

Von der Fakultät II - Mathematik und Naturwissenschaften  
der Technischen Universität Berlin  
zur Erlangung des akademischen Grades

Doktor der Naturwissenschaften  
Dr. rer. nat.

genehmigte Dissertation

Promotionsausschuss:

Vorsitzender: Prof. Dr. Michael Lehmann  
Gutachter: Prof. Dr. Stephan Reitzenstein  
Gutachter: Prof. Dr. Jürgen Christen

Tag der wissenschaftlichen Aussprache: 16. Oktober 2015

Berlin 2015



# Kurzdarstellung

Der Einsatz von Quantenpunkten (QPen) in zukünftigen Anwendungen im Bereich der Quantenkommunikation und der Quanteninformation erfordert die Entwicklung von deterministischen Technologien, welche eine gezielte Integration von QPen mit definierten optischen Eigenschaften in nanophotonische Bauelemente ermöglicht. In dieser Arbeit werden Kathodolumineszenz-Spektroskopie und Elektronenstrahlolithographie bei tiefen Temperaturen zur in-situ Kathodolumineszenzolithographie (KLL) vereint, um gezielt QPe auszuwählen und in Mikrolinsen zur Erhöhung der Sammeleffizienz zu integrieren. Hierzu werden verschiedene Elektronenstrahllacke auf ihre Kontrasteigenschaften, Schwellendosen, sowie die erreichbaren Strukturgrößen bei Tieftemperatur hin untersucht. Mit Hilfe des Lacks Polymethylmethacrylat (PMMA), welcher bei hohen Bestrahlungsdosen karbonisiert und als negativ-Lack verwendet werden kann, wird der KLL-Prozess anhand der Herstellung von Einzel-QP-Mesen validiert und die erfolgreiche Integration der selektierten QPe, die hohe Prozessausbeute, sowie die ausgezeichnete optische Qualität der fertigen Strukturen demonstriert. Weiterhin wird aus statistischen Untersuchungen die räumliche Genauigkeit des Prozesses auf 34 nm bestimmt. Zusätzlich werden, um die Auskoppeleffizienz der Emission aus dem Halbleiter zu erhöhen, monolithische Linienstrukturen ohne und mit rückseitigem Bragg-Reflektor (DBR) numerisch optimiert und mittels KLL in einem 3D-Lithographieverfahren hergestellt. Für Linsen ohne und mit DBR werden Auskoppeleffizienzen von 5,6 % und 23,3 % bestimmt. Als bemerkenswerte Eigenschaft können eine Einzelphotonenemission mit  $g^{(2)}(0) < 0,01$ , welche von der Anregungsleistung unabhängig ist, sowie eine Ununterscheidbarkeit mit  $V = 80\%$  beobachtet werden. Den Abschluss bilden die numerische Berechnung und die Herstellung einer Resonatorstruktur, welche aus einer von zwei Bragg-Reflektoren umschlossenen Linse besteht. Das Verhalten der Resonanz in Abhängigkeit der Linsengeometrie wird analysiert und die Wechselwirkung zwischen QP und Resonator nachgewiesen.

Die in dieser Arbeit etablierte Technologie legt somit, durch die gezielte Selektion von geeigneten Emittern und die präzise Herstellung von nanophotonischen Strukturen, einen wichtigen Grundstein für die deterministische Herstellung von komplexen und skalierbaren Bauelementen für die zukünftige Quantentechnologie.



# Abstract

The use of semiconductor quantum dots (QDs) in future quantum communication and quantum information applications requires the development of a deterministic technology platform for the controlled integration of QDs with pre-selected optical properties into nanophotonic devices. In this thesis, a fabrication technique called in-situ cathodoluminescence lithography (CLL) is established, which combines the high spatial resolution of cathodoluminescence spectroscopy with the versatility of electron-beam lithography at cryogenic temperatures. CLL is used to deterministically select and integrate QDs into monolithically fabricated microlenses to increase the photon-extraction efficiency (PEE). Therefore, various commercial available electron-beam resists have been tested to gain access to their low-temperature properties, their threshold doses and the smallest achievable resolution therewith. With the help of polymethyl methacrylate (PMMA), that carbonizes at high exposure doses when it acts as negative resist, the CLL-process is demonstrated by the fabrication of single-QD mesa structures with high optical quality and yield. For further validation, a statistical analysis of the process accuracy is performed, featuring an overall spatial alignment accuracy of 34 nm. To further increase the PEE, structures based on monolithically integrated microlenses without and with a back-side bragg-reflector were numerically optimized and fabricated by means of 3D-CLL. For lenses without and with bragg-reflector a PEE of 5.6 % and 23.3 % respectively is achieved. As a remarkable feature, a power-independent single-photon emission with  $g^{(2)}(0) < 0.01$  and an indistinguishability of the emitted photons of up to  $V = 80\%$  is determined up to saturation power. Finally, resonator structures consisting of microlenses that are sandwiched between two DBRs are numerically simulated and fabricated. The behaviour of the resonance in dependence on the lens geometry is analyzed and the interaction between a QD and the resonator is demonstrated.

Altogether, this novel technology platform paves the way for the systematic selection and integration of suitable quantum emitters into precisely defined nanophotonic devices and is therefore a vital component for the realization of complex and scalable quantum systems.



# Inhaltsverzeichnis

Kurzdarstellung

Abstract

1	Einleitung	1
2	Grundlagen zu InAs/GaAs-Quantenpunkten und Kavitätsseffekten	5
2.1	Halbleiter-Quantenpunkte . . . . .	5
2.2	Elektronische Eigenschaften von Quantenpunkten . . . . .	8
2.2.1	Einteilchen-Zustände . . . . .	9
2.2.2	Mehrteilchen-Zustände, Coulomb- und Austauschwechselwirkung . .	11
2.2.3	Einfluss elektrischer Felder . . . . .	15
2.3	Optische Eigenschaften von Quantenpunkten . . . . .	18
2.3.1	Statistische Eigenschaften von Licht . . . . .	18
2.3.2	Linienverbreiterungsmechanismen . . . . .	20
2.3.3	Ununterscheidbarkeit von Photonen . . . . .	21
2.4	Kavitätsquantenelektrodynamik im Regime der schwachen Kopplung . . . .	24
3	Experimentelle Messtechniken	27
3.1	Kathodolumineszenzspektroskopie . . . . .	27
3.1.1	Kathodolumineszenz-Messaufbau . . . . .	28
3.1.2	Anregung von Halbleitern mittels Elektronenstrahl . . . . .	29
3.1.3	Leistungsabhängige QP-Spektroskopie . . . . .	31
3.2	Mikrophotolumineszenzspektroskopie . . . . .	33
3.3	Zeitaufgelöste Messtechniken . . . . .	35
3.3.1	Bestimmung der Lebensdauer von Zuständen . . . . .	35
3.3.2	Auto- und Kreuzkorrelationsmessaufbau . . . . .	36
3.3.3	Hong-Ou-Mandel Experiment . . . . .	38
4	Tiefentemperatur lithographie	41
4.1	Grundlagen der Elektronenstrahl lithographie . . . . .	42

4.2	Tiefemperaturtauglichkeit von Elektronenstrahllacken . . . . .	44
4.2.1	Grundlagen der Elektronenstrahllacke . . . . .	47
4.2.2	Temperaturabhängige Kontrasteigenschaften . . . . .	50
4.2.3	Eigenschaften von invertiertem PMMA . . . . .	53
4.3	Bestimmung der Punktspreizfunktion . . . . .	60
4.4	Energiedeposition im Lack und erreichbare Auflösungsgrenzen . . . . .	64
4.5	Zusammenfassung des Kapitels . . . . .	68
5	Deterministische Nanostrukturierung von Halbleitern . . . . .	71
5.1	Übersicht über deterministische Technologien . . . . .	72
5.2	Kathodolumineszenzlithographie . . . . .	75
5.2.1	Schematischer Ablauf . . . . .	75
5.2.2	Deterministische Herstellung von sub- $\mu\text{m}$ Mesastrukturen . . . . .	79
5.3	Genauigkeit der räumlichen und spektralen Anpassung . . . . .	83
5.3.1	Laterale Positionierungsgenauigkeit . . . . .	83
5.3.2	Prozessbedingte spektrale Veränderung . . . . .	88
5.4	Erweiterte Kathodolumineszenzlithographie . . . . .	90
5.5	Zusammenfassung des Kapitels . . . . .	96
6	Methoden der Lichtauskopplung aus Halbleiterstrukturen . . . . .	99
6.1	Übersicht über Technologien zur Erhöhung der Auskoppelleffizienz . . . . .	101
6.2	Linsenstrukturen . . . . .	105
6.2.1	Analytische Beschreibung . . . . .	106
6.2.2	Deterministische Linsenherstellung . . . . .	108
6.2.3	Experimentell ermittelte Erhöhung der Auskoppelleffizienz und quantenoptische Eigenschaften . . . . .	110
6.3	Linsen-Reflektor Strukturen . . . . .	114
6.3.1	Numerische Beschreibung und Modellierung . . . . .	114
6.3.2	Experimentell ermittelte Auskoppelleffizienz und quantenoptische Eigenschaften . . . . .	118
6.4	Kavitätsintegrierte Mikrolinsen . . . . .	122
6.4.1	Numerische Beschreibung und Modellierung . . . . .	123
6.4.2	Herstellung von kavitätsintegrierten Mikrolinsen . . . . .	127
6.4.3	Spektroskopische Ergebnisse . . . . .	129
6.5	Zusammenfassung des Kapitels . . . . .	133
7	Zusammenfassung und Ausblick . . . . .	135

---

Literaturverzeichnis	139
A Monte-Carlo Simulation von Elektronentrajektorien: Casino	163
B JCMWSuite: Eine FEM-Umsetzung zur optischen Moden- und Feldberechnung	167
C Probenlayouts	171
D Ergänzende Daten zur erweiterten Kathodolumineszenzlithographie	175
Liste der Veröffentlichungen	
Danksagung	



# 1 Einleitung

Die Schäden der deutschen Wirtschaft durch Industriespionage sind laut einer Studie der Corporate Trust von 2,8 Milliarden Euro im Jahr 2007 [Cor07], über 4,2 Milliarden Euro im Jahr 2012 [Cor12], bis auf 11,8 Milliarden Euro im Jahr 2014 [Cor14] dramatisch angestiegen. 41,1 % der 2014 befragten Firmen geben dabei an, dass sie im Bereich der elektronischen Kommunikation das Opfer eines Angriffs wurden<sup>1</sup>. Die Hauptaufgabe, um diesem Trend entgegenzuwirken, ist daher einerseits die Schaffung eines Bewusstseins um die eigene Datensicherheit, und andererseits die Entwicklung von sicheren Datenübertragungsmethoden und Verschlüsselungsstrategien. Heutige und auch zukünftige Methoden [Kes99] werden dabei immer darauf angewiesen sein, dass ein Schlüssel zum Entschlüsseln der Nachricht zwischen Sender und Empfänger ausgetauscht wird, was bei einer konventionellen Übertragung einen Schwachpunkt in der Sicherheit darstellt. An diesem Punkt setzt das Konzept der Quantenkryptographie an, dessen Ziel es ist, durch Ausnutzung quantenmechanischer Effekte ein unentdecktes Abhören des Schlüssels physikalisch unmöglich zu machen. Viele dieser Verschlüsselungsmethoden, wie z.B. das BB84-Protokoll [BB84], setzen hierzu auf einzelne polarisierte Photonen als Informationsträger, welche nach dem Auslesen der Polarisationsinformation nicht mehr in ihren ursprünglichen quantenmechanischen Zustand versetzt werden können. Dadurch kann das Abhören eines Schlüssels sicher entdeckt und die Nachrichtenübermittlung abgebrochen werden.

Die Erzeugung der einzelnen Photonen erfolgt bei den heute bereits eingesetzten Verfahren [PFU<sup>+</sup>04, PPA<sup>+</sup>09] durch Laser. Bei Lasern treten jedoch immer Mehrphotonenereignisse auf, welche eine Sicherheitslücke in der Datenübertragung darstellen. Um die Wahrscheinlichkeit dieser Mehrphotonenereignisse gering zu halten, müssen die Laser stark abgeschwächt werden, was jedoch zu Lasten der Datenübertragung geht. Um dem zu entgehen, muss auf nichtklassische Lichtquellen zurückgegriffen werden, welche auf „Knopfdruck“ verlässlich einzelne, und im Falle des Quantenrepeaters [BDCZ98, GT07] auch ununterscheidbare Photonen emittieren können [SZ12]. Als nichtklassische Quantenemitter stehen heutzutage eingefangene Atome [DLCZ01], Defektzentren in Diamant [JW06], Moleküle

---

<sup>1</sup> Im Vergleich dazu geben nur 12,2 % der 2012 und 10,7 % der 2007 befragten Firma die elektronische Kommunikation als Ziel von Angriffen an.

[LM00] und Halbleiterquantenpunkte (QPe) im Fokus der Forschung. Wo Atome zwar durch die hohe Ununterscheidbarkeit der emittierten Photonen überzeugen, führen die hohen experimentellen Anforderungen jedoch dazu, dass entsprechende Kommunikations- und Informationsnetzwerke auch in Zukunft nur im Labormaßstab betrieben werden können. Anders verhält es sich bei Defektzentren in Diamant und optisch aktiven Molekülen, welche bereits bei Raumtemperatur als Einzelphotonenquelle definierter Wellenlänge fungieren können [MMK<sup>+</sup>12]. Weitere Quellen stellen QPe dar, deren Eigenschaften im Wellenlängenbereich zwischen 300 nm und 3,3 µm je nach Material(-Komposition) und Form auf die benötigten Bedürfnisse zugeschnitten werden können. Zudem ermöglichen die meisten Materialsysteme eine Integration in die bereits vorhandene Halbleitertechnologie, die Realisierung von optischen Schaltungen in on-Chip Ansätzen [JRO<sup>+</sup>15], sowie den elektrischen Betrieb der Photonenquelle [Yua02]. Die Herausforderung bei der Verwendung von QPen besteht jedoch darin, dass die beste optische Qualität bisher nur in einem statistischen Wachstumsprozess erreicht wird [SK37], wodurch Ort und Emissionseigenschaften von QP zu QP variieren. Hinzu kommt der bei vielen Materialsystemen notwendige kryogene Betrieb der Strukturen. Eine Schlüsseltechnologie zur Etablierung der QPe in der Quanteninformations- und kommunikationstechnologie ist somit ein deterministisches Verfahren, welches die räumliche Ausrichtung und spektrale Anpassung zwischen QP und Bauelement ermöglicht. Zu diesen deterministischen Verfahren gehört neben dem Wachstum von positionierten QPen [SHG<sup>+</sup>12, SSS<sup>+</sup>12], welches nur eine eingeschränkte spektrale Anpassung erlaubt, die Vermessung der QPe und die Orientierung der Bauelemente relativ zu Markerstrukturen [KKAN13, SDBS15], sowie in-situ Verfahren, bei denen die Charakterisierung und Bauteilstrukturierung in einem Schritt erfolgt [DLS<sup>+</sup>08].

Die Zielsetzung der vorliegenden Arbeit ist es, motiviert von den Arbeiten von Fabrice Donatini und Le Si Dang [DD10], ein in-situ Lithographie-Verfahren zu entwickeln und zu evaluieren, welches die hohe Ortsauflösung der Kathodolumineszenzspektroskopie mit den Strukturierungsmöglichkeiten der Elektronenstrahlolithographie bei kryogenen Temperaturen verbindet. Mit dieser Methode, welche als in-situ Kathodolumineszenz-lithographie (KLL) bezeichnet wird, sollen einzelne InAs/GaAs-QPe gezielt in nanophotonische Bauelemente integriert werden, welche hohe und spektral breitbandige Photonen-Auskoppeeffizienzen bei möglichst idealen quantenoptischen Eigenschaften erzielen. Um dies zu erreichen, werden Mikrolinsen mit und ohne rückseitigem Bragg-Spiegel mittels numerischer Verfahren auf ihre Auskoppeeffizienz hin optimiert und mit Hilfe von 3D-KLL strukturiert. Vor diesem Hintergrund ist die Arbeit folgendermaßen gegliedert:

---

In **Kapitel 2 „Grundlagen zu InAs/GaAs-Quantenpunkten und Kavitätsseffekten“** werden die elektronischen und optischen Eigenschaften von QPen dargestellt und die notwendige Basis zum Verständnis der QP-Experimente in dieser Arbeit geschaffen. Der Fokus liegt dabei auf den unterschiedlichen exzitonischen Komplexen und den charakteristischen Eigenschaften der QP-Emission. Den Abschluss bildet eine Einführung in das Konzept der Kavitätsquantenelektrodynamik, wobei die Kontrolle der Zustandslebensdauer über den Purcell-Effekt erläutert wird.

**Kapitel 3 „Experimentelle Messtechniken“** behandelt die in dieser Arbeit verwendeten Messapparaturen und geht detailliert auf die physikalischen Grundlagen der Kathodolumineszenzspektroskopie, der Ladungsträgerdiffusion und das anregungsleistungsabhängige Emissionsverhalten der QPe ein. Neben der Beschreibung des verwendeten Mikrophotolumineszenzaufbaus folgen zusätzlich Erläuterungen zu den Aufbauten der zeitaufgelösten Messtechnik um die Lebensdauern der Zustände, die Einzelphotonenemission und die Ununterscheidbarkeit der emittierten Photonen zu klassifizieren.

In **Kapitel 4 „Tiefentemperatur lithographie“** werden die gewonnenen Erkenntnisse zu den untersuchten Elektronenstrahllacken präsentiert, um eine geeignete Auswahl für den in-situ KLL-Prozess treffen zu können. Beginnend mit einer Einführung in die Grundlagen der Elektronenstrahllithographie werden zunächst wichtige Begriffe, sowie die untersuchten Lacke vorgestellt. Insbesondere das temperaturabhängige Verhalten von Polymethylmethacrylat (PMMA) weist bezüglich seiner negativen Lackcharakteristik eine ausreichend hohe Onset-Dosis auf, um im weiteren Verlauf Verwendung zu finden. Neben den generellen Mechanismen, welche bei der Belichtung von PMMA auftreten, wird die mit diesem Lack erreichbare Auflösungsgrenze bei kryogenen Temperaturen ermittelt.

Das **Kapitel 5 „Deterministische Nanostrukturierung von Halbleitern“** beschäftigt sich mit der Entwicklung, Umsetzung und Validierung des in-situ KLL-Prozesses. Nach einem Überblick über den derzeitigen Stand der etablierten deterministischen Technologien, erfolgt eine Erläuterung der Vorgehensweise, sowie die Anwendung der KLL zur Isolation von einzelnen QPen in sub- $\mu\text{m}$  Mesostrukturen. Im Anschluss wird die räumliche und spektrale Positionierungsgenauigkeit des Verfahrens untersucht und das Konzept der erweiterten KLL zur detaillierten Vorcharakterisierung der QPe vorgestellt.

**Kapitel 6 „Methoden der Lichtauskopplung aus Halbleiterstrukturen“** fasst die Herstellung und die spektroskopischen Ergebnisse der QP-Bauteile auf Basis von Mi-

linsen zusammen. Beginnend mit einer Einführung in die Problemstellung und einer Übersicht über die gängigen Technologien zur Erhöhung der Lichtauskopplung wird das Konzept der Mikrolinsen vorgestellt. Dabei wird aufbauend auf numerische Simulationen ein passendes Design für Mikrolinsen mit und ohne rückseitigem Bragg-Reflektor, sowie für kavitätsintegrierte Mikrolinsen ermittelt. Ausgehend von den daraus gewonnenen Erkenntnissen werden diese QP-Bauteile mit Hilfe der KLL gefertigt und mit den in Kap. 3 vorgestellten spektroskopischen Methoden detailliert untersucht.

Den Abschluss der Arbeit bildet **Kapitel 7 „Zusammenfassung und Ausblick“**, in welchem die zentralen Ergebnisse der vorherigen Kapitel zusammengefasst werden und die Einsatzmöglichkeit der in-situ Kathodolumineszenzlithographie zur Herstellung eines vollkommen elektrisch betreibbaren Quanten-CNOT-Gatters aufgezeigt wird.

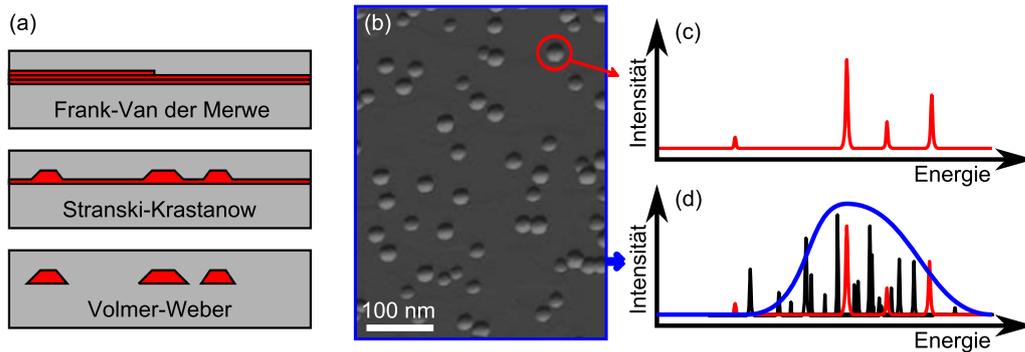
## 2 Grundlagen zu InAs/GaAs-Quantenpunkten und Kavitätseffekten

In diesem Kapitel erfolgt eine Zusammenstellung der zum Verständnis der experimentellen Ergebnisse notwendigen physikalischen Grundlagen zu Halbleiter Quantenpunkten (QP). Beginnend mit einer grundlegenden Einführung in die Herstellung und in die strukturellen Eigenschaften von InGaAs/GaAs-QPen in Kap. 2.1 werden in Kap. 2.2 die elektronischen Eigenschaften der QPe beschrieben. Der Fokus liegt dabei auf der Bildung der exzitonischen Zustände, welche zu den in Kap. 2.3 dargestellten Eigenschaften des emittierten Lichts führen. Abschließend wird die Licht-Materie-Wechselwirkung im Rahmen der Kavitäts-Quantenelektrodynamik (cQED - engl: *cavity quantum electrodynamics*) zum Verständnis der Wechselwirkung zwischen einem Emitter und einer Kavität erläutert.

### 2.1 Halbleiter-Quantenpunkte

Die Grundlage dieser und einer Vielzahl anderer Arbeiten zur Realisierung und Untersuchung von Quantensystemen bilden sogenannte Halbleiter-Quantenpunkte. Eine grundlegende Einführung zu QPen kann z.B. in [War02, Bim06, TSM<sup>+</sup>06] gefunden werden. Diese QPe, welche aus kohärenten Clustern von einigen hundert bis tausend Halbleiteratomen bestehen sind im Festkörper in eine sogenannte Halbleitermatrix eingebettet, welche eine höhere energetische Bandlücke als das QP-Material aufweist. Dadurch entsteht im QP ein räumlicher Einschluss der Elektronen- und Lochwellenfunktionen, wodurch eine Quantisierung der elektronischen Eigenzustände des Systems auftritt. Durch die damit verbundene Entstehung von diskreten Energieniveaus werden QPe letztendlich auch *künstliche Atome* genannt [Ash96, Bim06]. Der Vorteil dieses Quantensystems im Gegensatz zu einzelnen Atomen besteht darin, dass auf aufwendige Isolationsmechanismen, wie z.B. Atomfallen, verzichtet werden kann und die Herstellung auf Basis von etablierten Halbleitermaterialien erfolgt. Ein Umstand, der prinzipiell die Verknüpfung mit den heutigen halbleiterbasierten Computersystemen auf kleinstem Raum ermöglicht.

Die Herstellung kann z.B. bei kolloidalen QPen, welche vor kurzem ihr 25-jähriges Jubiläum hatten [KVZS13], durch chemisches Ausfällen in einer Lösung und anschließendes



**Abbildung 2.1:** (a) Schematische Darstellung verschiedener QP-Wachstumsmodi. (b) AFM-Aufnahme einer Oberfläche mit MOCVD-gewachsenen QPen (übernommen aus [TSM<sup>+</sup>06]). Die Probe weist eine QP-Dichte von  $8 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$  auf, bei einer mittleren QP-Höhe von 2 nm und einem Durchmesser von 50 nm. (c) und (d): Schematische Darstellung der Probenlumineszenz. In (c) sind die diskreten Emissionslinien eines einzelnen QP dargestellt, welche in (d) ohne räumliche Filterung durch die Ensemble-Lumineszenz der anderen, zufällig verteilten QPe überlagert werden.

Filtrieren erfolgen. Für eine Integration in Halbleiterbauelemente sind jedoch epitaktisch hergestellte QPe von größerem Interesse. Die wichtigsten Herstellungsverfahren für epitaktische Schichten sind dabei die Molekularstrahlepitaxie (MBE - engl. molecular beam epitaxy) [FTSF03] und die metall-organische chemische Gasphasenepitaxie (MOCVD - engl. metal-organic chemical vapor deposition) [TSM<sup>+</sup>06]. Bei der MBE werden bei geringsten Drücken die abzuscheidenden Stoffe in Effusionszellen erhitzt, wodurch ein gerichteter Molekularstrahl erzeugt wird, um das Material auf dem Substrat abzuscheiden. Bei der MOCVD werden bei Drücken zwischen 20 und 200 mbar sogenannte metallorganische Präkursormoleküle (Vorgängermoleküle) über das Substrat geleitet, welche am Substrat adsorbieren und sich thermisch zersetzen. Die abgespaltenen Atome können nun durch Oberflächendiffusion in das Kristallgitter eingebaut werden, wohingegen die gasförmigen Reaktionsprodukte wieder desorbieren. Mit diesen Herstellungsverfahren wurden in den Anfängen der QP-Herstellung epitaktisch gewachsene Schichten mittels Elektronenstrahlolithographie strukturiert und wieder überwachsen, um einen dreidimensionalen Ladungsträgereinschluss zu erreichen [BGF<sup>+</sup>98]. Dies führt jedoch aufgrund von Defekten an der strukturierten Oberfläche zu schlechten optischen Eigenschaften der QPe und wurde mit der Entdeckung von Goldstein *et. al* [GGM<sup>+</sup>85] 1985 durch einen selbstorganisierten Entstehungsprozess der QPe abgelöst. Dieses Herstellungsverfahren beruht auf einem verspannungsinduzierten Wachstum, welches zur selbstorganisierten Bildung von Materialinseln, den QPen, führt. Der kritische Parameter ist dabei der Unterschied in den Gitterkonstanten  $a_i$  der verwendeten Materialien und der dadurch auftretenden Verspannungsenergie  $E^V$  [SOKS91]. Berücksichtigt man weiterhin die jeweiligen Oberflächenener-

gien der Materialien  $E_1^O$  und  $E_2^O$ , sowie die Grenzflächenenergie  $E_{12}^G$ , so kann zwischen den in Abb. 2.1 (a) dargestellten Wachstumsmodi unterschieden werden. Ist die Verspannungsenergie konstant, und gilt

$$E_2^O - E_1^O + E_{12}^G + E^V < 0, \quad (2.1)$$

so ist es energetisch am günstigsten, das Substrat flächig zu benetzen, was zum Frank-van der Merwe Wachstum [FvdM49] führt. Ist

$$E_2^O - E_1^O + E_{12}^G + E^V > 0, \quad (2.2)$$

bilden sich bevorzugt neue Oberflächen aus, was ein Inselwachstum zur Folge hat, dem sogenannten Volmer-Weber Wachstum [VW26]. Verändert sich jedoch  $E^V$ , welches näherungsweise linear mit der Schichtdicke zunimmt, so wird ab einer kritischen Schichtdicke  $d_{\text{krit}}$  Gl. (2.1) positiv und Inselwachstum tritt nach der Bildung einer wenigen Monolagen dicken Benetzungsschicht auf. In diesem Fall spricht man von Stranski-Krastanow Wachstum [SK37], welches für die Herstellung der in dieser Arbeit verwendeten typ-I-QPe, basierend auf dem Wachstum von InAs ( $a_{\text{InAs}} = 0,60583$  nm bei Raumtemperatur) auf GaAs ( $a_{\text{GaAs}} = 0,56532$  nm bei Raumtemperatur), angewendet wurde. Vorteil dieses Wachstumsmodus ist es, dass die QPe ohne zusätzliche Prozessierungsschritte vollständig in die umgebende Matrix eingebettet werden können, was zu einer verbesserten optischen Qualität führt. Um die für die KLL notwendige niedrige Dichte von weniger als  $1 \cdot 10^8 \text{ cm}^{-2}$  zu erhalten, entstehen die QPe bei einer Temperatur von  $500^\circ\text{C}$  und einer Wachstumsunterbrechung von 35 s, bevor sie von einer Deckschicht aus GaAs vollständig in das Matrixmaterial eingebettet werden. Nachteilig wirkt sich dabei aus, dass das selbstorganisierte Wachstum der QPe statistischen Fluktuationen unterworfen ist, was in der Rasterkraftmikroskop-Aufnahme (AFM - engl. atomic force microscope) von unüberwachten QPen in Abb. 2.1(b) zu erkennen ist. Hierdurch werden die Nukleationsorte der QPe zufällig und es führen bereits kleinste Veränderungen in der Materialkomposition, Form, Größe, Vorzugsladung der Umgebung und der Symmetrie der QPe zu Unterschieden in den optischen Eigenschaften [SWB07]. Weist ein einzelner QP also das in Abb. 2.1 (c) dargestellte Emissionsmuster auf, so wird bei typischen Dichten zwischen  $10^7$  bis  $10^{11} \text{ cm}^{-2}$  die Einzel-QP-Lumineszenz durch die Ensemblelumineszenz der anderen QPe, dargestellt in (d), vollständig überlagert. Die Aufgabe der in dieser Arbeit vorgestellten Technologie wird es nun sein, einen geeigneten QP anhand seiner Lumineszenzeigenschaften zu identifizieren und in einer Nanostruktur zu isolieren.

## 2.2 Elektronische Eigenschaften von Quantenpunkten

Wird InAs mit einer Bandlücke von  $E_g^{\text{InAs}}(T = 300 \text{ K}) = 0,36 \text{ eV}$  in GaAs mit einer Bandlücke von  $E_g^{\text{GaAs}}(T = 300 \text{ K}) = 1,42 \text{ eV}$  eingebettet, und wird ausgehend von einem unendlich ausgedehnten System der aus InAs bestehende Bereich immer weiter reduziert, so beginnen die elektronischen Zustände bei einer Ausdehnung in der Größenordnung der thermischen de Broglie-Wellenlänge

$$\lambda_{\text{deBroglie}} = \frac{h}{\sqrt{2m^*k_B T}}, \quad (2.3)$$

zu quantisieren, wobei  $k_B$  die Boltzmannkonstante,  $m^*$  die effektive Masse der Ladungsträger und  $T$  die Temperatur bezeichnet.  $\lambda_{\text{deBroglie}}$  liegt bei den meisten Halbleitern mit  $m^* \approx 0,1 m_e$  im Bereich von einigen 10 nm. Beginnt man nun, wie in Abb. 2.2 dargestellt die Dimensionalität des Systems in mehreren Raumrichtungen einzuschränken, so findet eine Quantisierung in diesen Richtungen statt und die Lösungen der separierbaren Schrödingergleichung enthalten neben den Anteilen eines freien Teilchens auch quantisierte Zustände, mit diskreten Energien  $E_n$ . Dadurch ergeben sich für Leitungs- und Valenzband folgende Zustandsdichten:

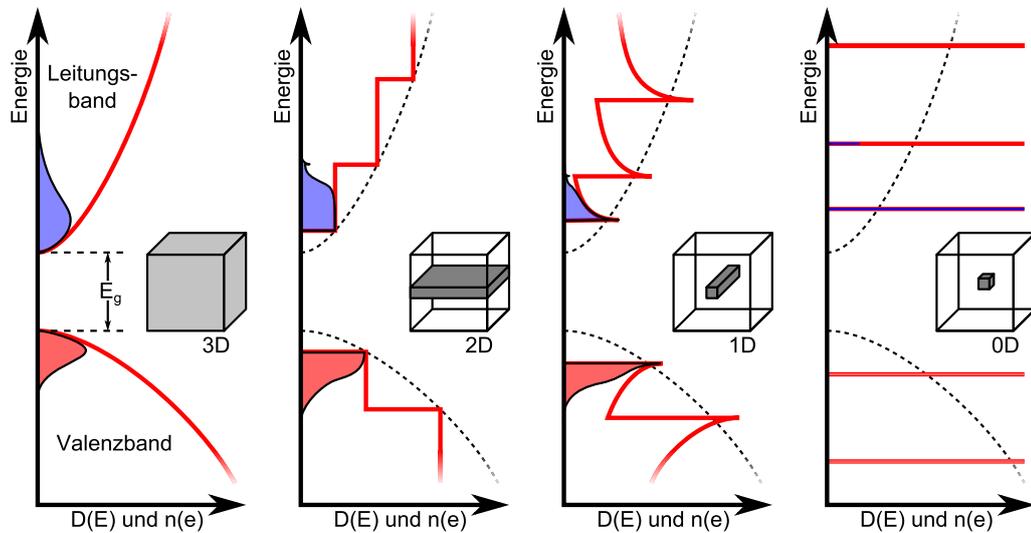
$$D_{3\text{D}}(E) = \frac{m^* L_x L_y L_z}{\pi^2 \hbar^2} \sqrt{\frac{2m^* E}{\hbar^2}}, \quad (2.4a)$$

$$D_{2\text{D}}(E) = \frac{m^* L_x L_y}{\pi \hbar^2} \sum_{n_z} \Theta(E - E_{n_z}), \quad (2.4b)$$

$$D_{1\text{D}}(E) = \frac{L_x}{\pi} \sqrt{\frac{2m^*}{\hbar^2}} \sum_{n_y, n_z} \frac{1}{\sqrt{E - E_{n_y} - E_{n_z}}}, \quad (2.4c)$$

$$D_{0\text{D}}(E) = 2 \sum_{n_x, n_y, n_z} \delta(E - E_{n_x n_y n_z}), \quad (2.4d)$$

wobei  $L_x, L_y, L_z$  die räumliche Ausdehnung des Systems beschreibt und  $n_x, n_y, n_z$  für die Quantenzahlen der jeweiligen Raumrichtung steht [Kun11]. Eine vollständige Quantisierung mit diskreten Energieniveaus erfolgt jedoch erst bei einer Einschränkung in allen drei Raumrichtungen. Weiterhin sind schematisch in Abb. 2.2 die Ladungsträgerdichten bei endlicher Temperatur mit dargestellt, welche sich aus der Fermi-Verteilung und den Zustandsdichten ergeben. Dies zeigt vor allem, dass das vollständig quantisierte System seinen diskreten Charakter auch bei höheren Temperaturen beibehält.



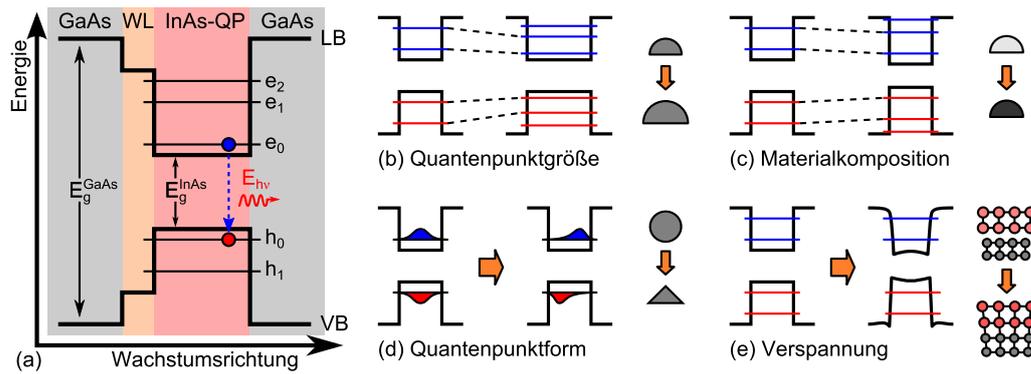
**Abbildung 2.2:** Schematische Darstellung der nach Gl. (2.4) errechneten Zustandsdichten (rot) für Volumenhalbleiter (3D) mit der Bandlückenenergie  $E_g$ , für Quantenfilme (2D), Quantendrähte (1D) und Quantenpunkte (0D). In Blau und Rot ist zusätzlich noch die durch die Fermiverteilung bedingte Elektronen- und Lochdichte, bei endlicher Temperatur mit dargestellt.

### 2.2.1 Einteilchen-Zustände

Zur Beschreibung der elektronischen Eigenschaften des QPes (z.B. Übergangsenergien) kann, die Schrödingergleichung für die Einteilchen-Hamilton-Operatoren

$$\mathcal{H}_{e,h} = -\frac{\vec{p}_{e,h}^2}{2m_{e,h}^*} + V(\vec{r}), \quad (2.5)$$

jeweils für Elektronen  $e$  und Löcher  $h$  und deren effektiven Massen  $m_{e,h}$  und Impulse  $\vec{p}_{e,h}$  für ein gegebenes QP-Potential  $V(\vec{r})$  gelöst werden. Aufgrund der unterschiedlichen Bandlückenenergien und Bandoffsets von GaAs und InAs ergibt sich für  $V(\vec{r})$  sowohl für Elektronen, als auch für Löcher ein attraktives Potential (typ-I QP), dessen Bandverlauf schematisch in Abb. 2.3 (a) entlang der Wachstumsrichtung dargestellt ist. Diese Zustände  $e_i$  und  $h_j$  können nun durch den Einfang von Ladungsträgern aus dem GaAs oder der Benetzungsschicht (WL) unter Beachtung des Pauli-Prinzips besetzt werden. Die eingefangenen, durch nichtresonante Anregung erzeugten Ladungsträger geben hierzu durch Streuprozesse mit Phononen auf einer Zeitskala von mehreren ps ihre überschüssige Energie ab und relaxieren in den Grundzustand  $e_0$  und  $h_0$  [HVL<sup>+</sup>97]. Andere Anregungsschemata bedienen sich quasi-resonanter oder strikt-resonanter Anregung, bei welchen in höher angeregte Zustände  $i, j \neq 0$  oder direkt in den Grundzustand  $i, j = 0$  angeregt wird. Befinden sich mindestens ein Elektron und ein Loch im Grundzustand, so können diese mit einer



**Abbildung 2.3:** (a) Schematische Darstellung des Bandverlaufs eines in GaAs eingebetteten InAs-QPes mit Benetzungsschicht (WL) in Wachstumsrichtung. Eingezeichnet sind auch die durch die Quantisierung entstehenden diskreten Ein-Teilchen-Energieniveaus  $e_{0,1,2}$  ( $h_{0,1}$ ) für Elektronen (Löcher), welche über (unter) der Leitungsbandkante (Valenzbandkante) von InAs liegen. Durch strahlende Rekombination von Elektron und Loch entstehen dadurch monochromatische Photonen mit  $E_{h\nu} > E_g^{\text{InAs}}$ . (b) - (e) Schematische Darstellung der Veränderung der quantisierten Zustände unter Variation der QP-Größe (b), der Materialkomposition (c), der QP-Form (d), sowie unter Berücksichtigung der Verspannungen (e) im Material.

typischen Lebensdauer von ca. 1 ns im InGaAs/GaAs Materialsystem unter Generation eines Photons strahlend rekombinieren [MMH<sup>+</sup>03].

Die elektronische Struktur eines QPes wird dabei maßgeblich durch seine strukturellen Eigenschaften festgelegt. Hierfür sind in Abb. 2.3 (b) bis (e) die Veränderungen des QP-Potentials und der Einteilchen-Zustände unter Berücksichtigung verschiedener QP-Geometrien und Effekte zusammengestellt [SWB07]. Die Größe des QPes (siehe hierzu Abb. 2.3 (b)) beeinflusst dabei maßgeblich die Quantisierung der Zustände durch den sogenannten *quantum size effect* [BGL99]. Je kleiner der QP wird, desto größer wird die Quantisierungsenergie, was eine Blauverschiebung der Emission zur Folge hat. Dies kann sogar so weit führen, dass angeregte Zustände  $i,j \neq 0$  in die Benetzungsschicht schieben und sich beim Unterschreiten einer gewissen Größe sogar keine Zustände mehr im QP ausbilden können. Nimmt die QP-Größe jedoch zu, rücken die diskreten Energieniveaus immer näher zusammen, bis sich am Übergang zu höherdimensionalen Strukturen eine quasi-kontinuierliche Verteilung der Zustands-Niveaus ausbildet. Die Tiefe des Potentialtopfs kann bei ternären Materialsystemen (z.B.  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ ) durch unterschiedliche Mischungskonzentrationen  $x$  variiert werden (siehe Abb. 2.3 (c)). Die Lage der Einteilchenzustände wird dabei durch die veränderte Bandlücke direkt und durch das veränderte Einschlusspotential indirekt beeinflusst. Berücksichtigt man weiterhin die Form des QPes (siehe Abb. 2.3 (d)), so verschiebt diese vor allem die Aufenthaltswahrscheinlichkeiten der Elektronen- und Lochwellenfunktionen, welche wiederum die in Kap. 2.2.2 näher erläuterte Coulomb-Wechselwirkung beeinflussen. Durch die unterschiedlichen Gitterkonstan-

ten von GaAs und InAs und die dadurch bedingte Verspannung kommt es zusätzlich zur Entstehung von piezoelektrischen Feldern, deren Einfluss auf das Einschlusspotential schematisch in Abb. 2.3 (e) dargestellt ist [GSB95, Pry98]. Schlussendlich können durch die Symmetrie des QPes aufgrund der in Kap. 2.2.2 besprochenen Austauschwechselwirkung, Entartungen der Energieniveaus aufgehoben werden. Jeder dieser Effekte beeinflusst dabei die Emissionseigenschaften der QPe, was bei dem selbstorganisierten Stranski-Krastanow Wachstumsprozess zu einer großen Vielfalt der QP-Emissionseigenschaften führt.

### 2.2.2 Mehrteilchen-Zustände, Coulomb- und Austauschwechselwirkung

Geht man im nächsten Schritt von Einteilchen-Zuständen zu Mehrteilchen-Zuständen über, so muss beachtet werden, dass die einzelnen Zustände unter Berücksichtigung des Pauli-Prinzips mit maximal je 2 Elektronen (Löchern) mit antiparallelem Spin besetzt werden können. Daraus ergeben sich die in Abb. 2.4 (a) bis (d) dargestellten Kombinationen für den Grundzustand. Befinden sich nur je ein Elektron und ein Loch im QP, so spricht man von einem Exziton (X) und bei je zwei Elektronen und Löchern von einem Biexziton (XX). Befindet sich bei einem Exziton noch ein zusätzlicher Ladungsträger im QP, so spricht man von einem geladenen Exziton oder Trion. Je nach Ladung des zusätzlichen Ladungsträgers unterscheidet man hier zwischen positiv ( $X^+$ ) und negativ ( $X^-$ ) geladenem Trion. Bei diesen Konfigurationen von mehreren geladenen Teilchen muss bei der Berechnung der Zustände noch zusätzlich die Coulomb-Wechselwirkung im Mehrteilchen-Hamiltonoperator

$$\mathcal{H}_{\text{MT}} = \sum_{\text{e}} \mathcal{H}_{\text{e}} + \sum_{\text{h}} \mathcal{H}_{\text{h}} + \mathcal{H}_{\text{C}}, \quad (2.6)$$

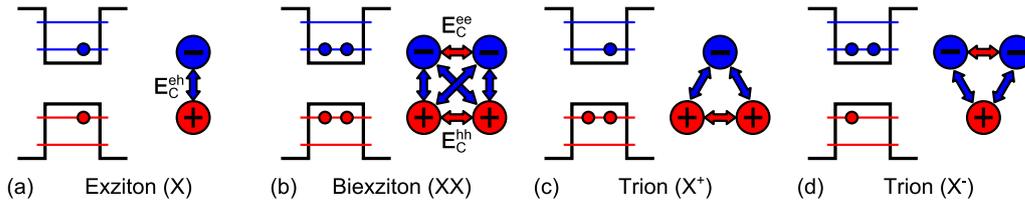
bestehend aus den Einteilchen-Hamiltonoperatoren  $\mathcal{H}_{\text{e}}$  und  $\mathcal{H}_{\text{h}}$  aus Gl. (2.5) und dem Coulomb-Hamiltonoperator

$$\mathcal{H}_{\text{C}} = \sum_{i \neq j}^{a,b} \frac{1}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r} \frac{q_i q_j}{|\vec{r}_i - \vec{r}_j|}, \quad (2.7)$$

berücksichtigt werden. Die Coulomb-Wechselwirkung kann durch die Entwicklung des Hamiltonoperators in die Mehrteilchenbasis in zwei Anteile aufgeteilt werden: Die direkte Coulomb-Wechselwirkung

$$C_{i,j} = \frac{q_i q_j}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r} \int \int \frac{|\psi_i(\vec{r}_1)|^2 |\psi_j(\vec{r}_2)|^2}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|} d\vec{r}_1 d\vec{r}_2, \quad (2.8)$$

der Wellenfunktionen  $\psi_i(\vec{k})$  untereinander und die Austausch-Wechselwirkung



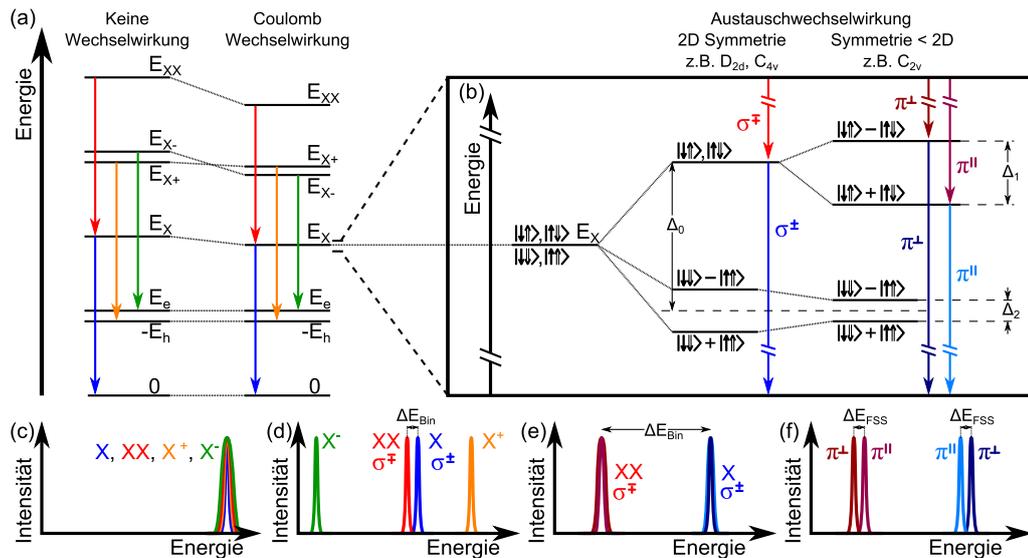
**Abbildung 2.4:** Schematische Darstellung der Coulomb-Wechselwirkung der Teilchen in einem Exziton (a), einem Biexziton (b), einem positiv (c) und einem negativ (d) geladenem Trion. Die blauen (roten) Pfeile zeigen attraktive (repulsive) Wechselwirkung der Teilchen untereinander an.

$$\mathcal{J}_{i,j} = \frac{q_i q_j}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r} \int \int \frac{\psi_i(\vec{r}_1)\psi_j(\vec{r}_2)\psi_i^*(\vec{r}_2)\psi_j^*(\vec{r}_1)}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|} d\vec{r}_1 d\vec{r}_2, \quad (2.9)$$

welche dem Umstand Rechnung trägt, dass es sich bei Elektronen und Löchern um Fermionen mit halbzahligem Spin handelt.

#### Direkte Coulomb-Wechselwirkung

Betrachtet man nur den direkten Term der Coulomb-Wechselwirkung, so ergeben sich die in Abb. 2.4 (a) bis (d) dargestellten Situationen, wobei die blauen (roten) Pfeile eine attraktive (repulsive) Wechselwirkung zwischen den Teilchen andeuten. Die Summe der Wechselwirkungen führt zu einer generellen Energieabsenkung der Mehrteilchenenergieniveaus, wie sie in Abb. 2.5 (a) schematisch dargestellt ist und beträgt für den exzitoni-schen Zustand etwa 11 bis 26 meV [SGB99]. Dadurch wird die anfängliche Entartung der Übergangsenergien (siehe Abb. 2.5 (c)) aufgehoben und eine spektrale Separation (siehe Abb. 2.5 (d)) tritt auf. Die Bindungsenergie der Teilchen wird dabei relativ zur Exziton-Bindungsenergie definiert und in bindende und antibindende Zustände aufgeteilt. Durch das Einschlusspotential, welches deutlich höher ist als die Bindungsenergien der Mehrteilchenkomplexe, sind, anders als in Molekülen, auch antibindende Zustände im QP stabil. Aufschluss über die relative Lage gibt eine Betrachtung der Einteilchen-Zustände der Elektronen und Löcher. Da die Lochwellenfunktionen im Vergleich zu den Elektronenwellenfunktionen durch ihre höhere effektive Masse stärker im QP lokalisiert sind, überwiegt die repulsive Wechselwirkung zwischen zwei Löchern die attraktive Wechselwirkung zwischen Elektron und Loch, welche wiederum stärker ausgeprägt ist als die repulsive Wechselwirkung zwischen den beiden Elektronen. Somit gilt  $E_C^{hh} > -E_C^{eh} > E_C^{ee}$ , woraus sich für  $X^+$  meist ein antibindender und für  $X^-$  ein bindender Zustand ergibt. Das Vorzeichen der Bindungsenergie des Biexzitons hängt aufgrund der symmetrischen Wechselwirkung zwischen den beiden Elektronen und den beiden Löchern vor allem von der Größe des



**Abbildung 2.5:** Termschema der Mehrteilchen-QP-Niveaus mit dem Energienullpunkt in der Mitte der Bandlücke. (a) und (c): ohne Coulomb-Wechselwirkung sind die Rekombinationsenergien (dargestellt durch die Pfeillänge) der beteiligten Komplexe entartet. (a) und (d): Unter Berücksichtigung der Coulomb-Wechselwirkung werden die Energieniveaus der einzelnen Komplexe verschieden stark abgesenkt, was zu einer Aufspaltung der Rekombinationsenergien führt. Bindende und antibindende Zustände werden dabei relativ zur Exzitonenergie definiert. Berücksichtigt man weiterhin die Austauschwechselwirkung des Exzitons (b), so spaltet das vierfach entartete Energieniveau in optisch erlaubte (helle) und verbotene (dunkle) Zustände auf. (e) und (f): Dabei wird die Entartung der hellen Zustände erst bei einem Bruch der Rotationsymmetrie um die Wachstumsrichtung aufgehoben, was sich in einer Energieaufspaltung um  $\Delta E_{FSS}$  zeigt.

QPs ab, wobei unter Berücksichtigung der Korrelation bei großen QPs auch bindende Zustände auftreten können. Aus dieser Überlegung ergibt sich meist die in Abb. 2.5 (d) dargestellte Abfolge der Emissionsenergien, welche innerhalb eines wenigen meV breiten Spektralbereichs liegen [RSP<sup>+</sup>05, SSG<sup>+</sup>06].

### Austauschwechselwirkung

Der zweite Teil der Coulomb-Wechselwirkung, die Austauschwechselwirkung, hat ihre Ursache darin, dass das System von identischen Teilchen gebildet wird, welche unter Austausch ihrer Koordinaten die gleiche Situation abbilden müssen. Insbesondere muss in dieser Betrachtung der Spin der Teilchen mit berücksichtigt werden, für welche die Projektion des Eigendrehimpulses auf die z-Achse für Elektronen  $s_z = \pm \frac{1}{2}$  und für schwere

Locher<sup>1</sup>  $j_z = \pm \frac{3}{2}$  ergibt. Fur Spin- $\frac{1}{2}$ -Teilchen, also Fermionen gilt, dass die gebildeten Gesamtwellenfunktionen antisymmetrisch sein mussen, wodurch der Hamiltonoperator der Coulomb-Wechselwirkung Terme entsprechend Gl. (2.9) aufweist. Da diese Austauschwechselwirkung erst auftritt, wenn der Drehimpuls der Teilchen mit berucksichtigt wird, kann diese auch als Spin-Spin Wechselwirkung angesehen werden. In einem QP-Potential mit  $C_{2\nu}$ -Symmetrie kann der zusatzliche Austauschterm auf Basis von Symmetrieuberlegungen im Rahmen der Gruppentheorie als

$$\mathcal{H}_C^{\text{ex}} = \underbrace{2\Delta_0 J_z S_z}_{\mathcal{H}_C^{\text{ex},0}} + \underbrace{\Delta_1 (J_x S_x - J_y S_y)}_{\mathcal{H}_C^{\text{ex},1}} + \underbrace{\Delta_2 (J_x S_x + J_y S_y)}_{\mathcal{H}_C^{\text{ex},2}} \quad (2.10)$$

dargestellt werden [IP97]. Hier beschreiben  $\mathbf{S} = (S_x, S_y, S_z) = \sum_i \mathbf{s}_i$  und  $\mathbf{J} = (J_x, J_y, J_z) = \sum_i \mathbf{j}_i$  die Gesamtdrehimpuls-Operatoren der beteiligten Elektronen und Locher, sowie  $\Delta_i$  Konstanten ohne physikalische Bedeutung, welche durch das QP-Potential bestimmt werden.

Betrachtet man das Exziton im Grundzustand, so kann der Spin des Elektrons und des Lochs jeweils zwei unterschiedliche Stellungen einnehmen, was unter Vernachlassigung der Austauschwechselwirkung zu einer vierfachen Entartung des exzitonischen Zustands fuhrt (siehe Abb. 2.5 (b)). Die Gesamtdrehimpulse des gekoppelten Systems betragen dabei  $\mathbf{F}^X = \mathbf{s} + \mathbf{j}$ , deren Projektionen auf die z-Achse  $F_z^X = \pm 1, \pm 2$  ergeben. An das Lichtfeld konnen aufgrund der Drehimpulserhaltung jedoch nur die Zustande mit  $F_z^X = \pm 1$  koppeln, da bei strahlender Rekombination ein Drehimpuls von  $|\Delta F_z| = 1$  auf das Photon ubertragen werden muss. Diese beiden Zustande werden daher als *helle Exzitonen* (engl. *bright excitons*) bezeichnet, wohingegen die Dipoluberginge mit  $|\Delta F_z^X| = 2$  optisch verboten sind und *dunkle Exzitonen* (engl. *dark excitons*) genannt werden. Berucksichtigt man nun die Austauschwechselwirkung, reprasentiert durch Gl. (2.10), und nimmt man ein Potential mit 2D Symmetrie (z.B.  $D_{2d}, C_{4v}$ ) an, so fuhrt der Term  $\mathcal{H}_C^{\text{ex},0}$  zu einem Aufspalten der beiden hellen und dunklen exzitonischen Zustande um den Energiebetrag  $\Delta_0$ , welcher im Bereich von 10 bis 200  $\mu\text{eV}$  liegt [BKF<sup>+</sup>99, BOS<sup>+</sup>02]. Weiterhin wird, wie in Abb. 2.5 (b) dargestellt, durch  $\mathcal{H}_C^{\text{ex},2}$  die Entartung der dunklen Zustande durch die Aufspaltung um  $\Delta_2$  aufgehoben. Die hellen exzitonischen Zustande bleiben dabei weiterhin entartet und die Rekombination von Exzitonen fuhrt aufgrund der Drehimpulserhaltung zur Emission von zirkular polarisiertem Licht ( $\sigma^\pm$ ). Wird nun die Symmetrie des Potentials weiter re-

1 Der Lochzustand des QPes wird bei InAs vornehmlich durch das Schwerlochband (*hh* - *heavy hole*) gebildet. Leichtlochband (*lh* - *light hole*) und SO-Lochband (*so* - *split-off*) sind im QP energetisch vom hh-Band abgespalten und spielen somit bei der Bildung der QP-Lochzustande eine untergeordnete Rolle [HBZ04].

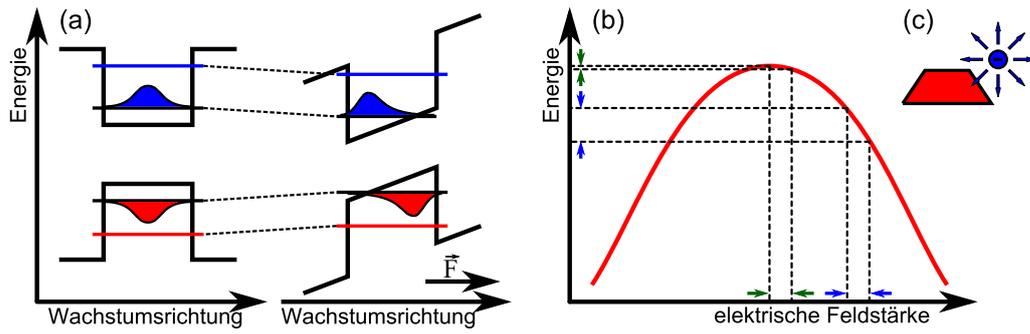
duziert (z.B. auf  $C_{2v}$ ), so beginnt  $\mathcal{H}_C^{\text{ex},1}$  von null verschieden zu werden und die Entartung der hellen exzitonischen Zustände wird ebenfalls aufgehoben. Dabei bilden sich aus den beiden Zuständen  $|+\frac{1}{2}, -\frac{3}{2}\rangle$  und  $|-\frac{1}{2}, +\frac{3}{2}\rangle$  die Linearkombinationen  $\frac{1}{\sqrt{2}}(|+\frac{1}{2}, -\frac{3}{2}\rangle \pm |-\frac{1}{2}, +\frac{3}{2}\rangle)$ , was zur Emission von linear und zueinander orthogonal polarisiertem Licht ( $\pi^\perp, \pi^\parallel$ ) führt. Dies kann im Experiment anhand der Aufspaltung der exzitonischen Emissionslinie (siehe Abb. 2.5 (e) und (f)) um den Betrag  $\Delta_1$  zwischen 0 und 500  $\mu\text{eV}$  [SSR<sup>+</sup>05] in zwei linear, orthogonal zueinander polarisierte Komponenten beobachtet werden und wird gemeinhin als Feinstrukturaufspaltung (FSS - engl. *fine structure splitting*) bezeichnet. Ursachen für die Aufspaltung können z.B. eine strukturelle Elongation des QPes oder piezoelektrische Felder sein [GSB95].

Betrachtet man weiterhin die Austauschwechselwirkung in einem Biexziton im Grundzustand, so stellt man fest, dass beide Elektronen- und Lochzustände entsprechend des Pauli-Prinzips mit anti-parallelem Drehimpuls vollständig besetzt sind. Der daraus resultierende Gesamtdrehimpuls ist somit  $F_z^{\text{XX}} = 0$  und folglich gilt  $\mathcal{H}_C^{\text{ex}} = 0$ . Bei strahlender Rekombination zerfällt der Biexzitonenzustand jedoch in einen der aufgespaltenen Exzitonenzustände, wodurch der Emissionscharakteristik des Biexzitons die FSS des Exzitons aufgeprägt wird (siehe Abb. 2.5 (b) und (f)). Diese sog. XX-X-Kaskade führt bei verschwindender FSS zur Emission von quantenmechanisch polarisationsverschränkten Photonenpaaren und ist insbesondere für Anwendungen in der Quantenschlüsselverteilung von Interesse [YSA<sup>+</sup>06, BSPY00].

Bei geladenen exzitonischen Komplexen im Grundzustand bilden entweder beide Elektronen (bei  $X^-$ ) oder beide Löcher (bei  $X^+$ ) aufgrund des Pauli-Prinzips einen Spin-Singlett Zustand mit  $S_z = 0$ . Dadurch wechselwirkt das verbleibende Loch, bzw. Elektron mit einer verschwindenden lokalen Spin-Dichte, wodurch die Austauschwechselwirkung ebenfalls verschwindet. Die geladenen exzitonischen Zustände zeigen also keine Aufspaltung im Experiment. Weiterhin existieren bei diesen Komplexen nur helle Zustände, was zur Folge hat, dass bei nichtresonanter Anregung und demzufolge einer zufälligen Orientierung der Drehimpulse der in den Grundzustand relaxierenden Elektronen und Löchern, der Zerfallskanal nicht durch dunkle Zustände blockiert wird [SSR<sup>+</sup>07].

### 2.2.3 Einfluss elektrischer Felder

Die Energieübergänge in QPen werden weiterhin durch elektrische und magnetische Felder beeinflusst. In dieser Arbeit ist jedoch nur der Einfluss von elektrischen Feldern relevant, welche in Intrinsische und Extrinsische unterteilt werden können und über den Stark-Effekt in quantisierten Systemen (QCSE - *quantum confined Stark effect*) beschrieben werden [MCD<sup>+</sup>84]. Die Ursache von intrinsischen Feldern liegt z.B. in Verspannungsunterschie-



**Abbildung 2.6:** (a) Schematische Darstellung der Bandverbiegung, sowie der Elektronen- und Lochwellenfunktionen unter Einfluss eines homogenen elektrischen Feldes in Wachstumsrichtung. Durch das Feld werden die Energieniveaus der Einteilchen-Zustände abgesenkt und die Elektronen- und Lochwellenfunktionen räumlich separiert. (b) Dispersion der Rekombinationsenergie unter dem Einfluss eines elektrischen Feldes. Die schwarzen Hilfslinien verdeutlichen den Einfluss einer Veränderung der elektrischen Feldstärke auf die Energieverschiebung an verschiedenen Punkten der Parabel. (c) Schematische Darstellung der Coulomb-Wechselwirkung eines geladenen Defekts mit einem QP.

den, welche an QP-Grenzflächen vorliegen, und die dadurch entstehenden piezoelektrischen Felder [GSB95]. Diese werden meist bei der Berechnung des QP-Potentials mit berücksichtigt und sind dementsprechend in  $V(\vec{r})$  in Gl. (2.5) enthalten. Extrinsische elektrische Felder können gezielt durch an den Halbleiter angelegte elektrische Spannungen erzeugt werden, können aber auch durch geladene Defekte oder Grenzflächenzustände in der Nähe des QPes entstehen [FBB<sup>+</sup>01, ATM<sup>+</sup>08]. Berücksichtigt werden diese Felder durch einen zusätzlichen ortsabhängigen Potentialterm  $V_{\text{Feld}}(\vec{r})$  im Hamiltonoperator

$$\mathcal{H}_{\text{QCSE}} = \mathcal{H}_{\text{MT}} + V_{\text{Feld}}(\vec{r}), \quad (2.11)$$

mit dem Mehrteilchen-Hamiltonoperator  $\mathcal{H}_{\text{MT}}$  aus Kap. 2.2.2. Beim Anlegen einer elektrischen Spannung in einer p-i-n dotierten Halbleiterstruktur kann näherungsweise angenommen werden, dass sich in der Umgebung des QPes eine konstante elektrische Feldverteilung  $\vec{F}$  in Wachstumsrichtung  $z$ , mit dem Potential

$$V_{\text{Feld}}^{\text{const}}(z) = eF_z z \quad (2.12)$$

ergibt. Diese führt zu der in Abb. 2.6 (a) dargestellten Bandverbiegung. Es werden zum einen die Energieniveaus der Einteilchen-Zustände abgesenkt, sowie die Elektronen- und Lochwellenfunktionen räumlich separiert. Die Folge ist zum einen eine Verringerung der Energie der Einteilchen-Zustände (siehe Abb. 2.6 (b)), und zum anderen wird durch die räumliche Trennung die attraktive Coulomb-Wechselwirkung zwischen Elektronen und

Löcher reduziert. Weiterhin wird der räumliche Überlapp der beiden Wellenfunktionen reduziert, womit eine Reduktion der Oszillatorstärke einhergeht, was zu einer geringeren Intensität im Experiment führt. Bei sehr starken Feldern beginnen die Wellenfunktionen eine endliche Aufenthaltswahrscheinlichkeit außerhalb des QPes aufzuweisen, wodurch die Ladungsträger aus dem QP tunneln können. Dies bildet die Grundlage für Photostromexperimente [FIP<sup>+</sup>00].

Mit Hilfe der Störungsrechnung zweiter Ordnung, wobei  $\mathcal{H}_{\text{MT}}$  als ungestörter Hamiltonoperator und  $V_{\text{Feld}}^{\text{const}}(z)$  als Störung angenommen wird, kann für die Energieverschiebung  $\Delta E$  von den ungestörten Energieeigenwerten folgende Abhängigkeit ermittelt werden, welche in Abb. 2.6 (b) schematisch dargestellt ist [FSV<sup>+</sup>04]:

$$\Delta E = pF_z + \alpha F_z^2. \quad (2.13)$$

Dabei beschreibt  $p$  das permanente im QP existierende Dipolmoment und  $\alpha$  die Polarisierbarkeit des jeweiligen exzitonischen Komplexes. Ursächlich für das permanente Dipolmoment sind alle Effekte, die zu einer räumlichen Separation der Elektronen- und Lochwellenfunktionen führen, was z.B. durch Verspannungen und die daraus resultierenden piezoelektrischen Felder, oder Kompositionsgradienten hervorgerufen werden kann [FIM<sup>+</sup>00].

Zeitlich unkorreliertes Laden und Entladen von Defekten oder Zuständen, welche sich am Ort  $\vec{R}$  in der Nähe des QPes befinden (siehe Abb. 2.6 (c)) führt zu dem Phänomen der spektralen Diffusion. Die Störung durch den Ladungsträger mit der Ladung  $q$  kann dabei durch ein Potential mit

$$V_{\text{Feld}}^{\text{Coul}}(\vec{r}) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r} \frac{q}{|\vec{r} - \vec{R}|} \quad (2.14)$$

beschrieben werden [ATM<sup>+</sup>08]. Die Stärke der Energiefluktuationen ist dabei einerseits durch den Abstand zwischen QP und Ladungsträger bestimmt, andererseits aber auch, wie in Abb. 2.6 (b) dargestellt, durch das permanente Dipolmoment und die Polarisierbarkeit des QPes. Befindet sich der QP in einem Zustand, welcher dem Scheitelpunkt der Dispersionskurve entspricht, so wirken sich die Fluktuationen in der elektrischen Feldstärke weniger stark aus als am Parabelast. Weiterhin ist festzustellen, dass je nachdem wie lange der Ladungsträger an diesen Defekt gebunden ist, sich zeitliche Fluktuationen in der Emissionsenergie auf Zeitskalen von wenigen Nanosekunden bis hin zu mehreren Sekunden und Minuten ergeben. Schnelle Fluktuationen führen dabei bei zeitintegrierten, spektral aufgelösten Messungen, wie etwa mit einer CCD (engl. *charge-coupled device*) zu einer spektralen Verbreiterung der Lumineszenz. Da jedoch alle exzitonischen Komplexe

in erster Näherung gleich von der durch den QCSE hervorgerufenen Energieverschiebung betroffen sind, können langsame spektral korrelierte Fluktuationen dazu genutzt werden, um die Emissionslinien einzelnen QPen zuzuordnen [RSP<sup>+</sup>05].

## 2.3 Optische Eigenschaften von Quantenpunkten

Eine Schlüsseleigenschaft von QPen im Hinblick auf Quantenkommunikationstechnologien [GT07, SZ12, LJL<sup>+</sup>10] ist deren Möglichkeit, nichtklassisches Licht und quantenmechanisch ununterscheidbare Photonen zu erzeugen. Hierzu werden in Kap. 2.3.1 unterschiedliche Photonenzustände anhand ihrer statistischen Verteilung klassifiziert, sowie deren Eigenschaften im Hinblick auf deren experimentelle Unterscheidung erläutert. Die anschließende Erörterung zu Dephasierungsprozessen und homogenen Linienverbreiterungsmechanismen in Kap. 2.3.2, dient als Vorbereitung zur Erläuterung der Ununterscheidbarkeit der von einem QP emittierten Photonen in Kap. 2.3.3.

### 2.3.1 Statistische Eigenschaften von Licht

Die statistischen Eigenschaften von Licht lassen sich durch die quantenmechanische Beschreibung der Photonen-Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung in der zweiten Quantisierung, welche von R. J. Glauber [Gla63] eingeführt wurde, über

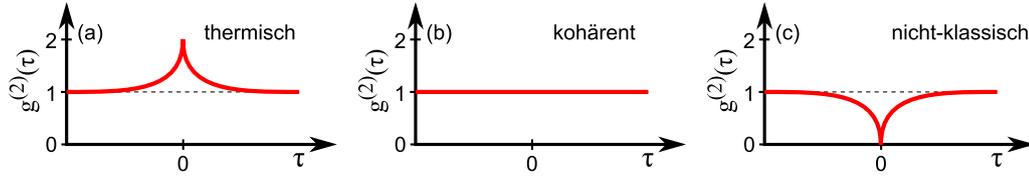
$$g^{(2)}(t, \tau) = \frac{\langle \hat{a}^\dagger(t) \hat{a}^\dagger(t + \tau) \hat{a}(t + \tau) \hat{a}(t) \rangle}{\langle \hat{a}^\dagger(t) \hat{a}(t) \rangle \langle \hat{a}^\dagger(t + \tau) \hat{a}(t + \tau) \rangle}, \quad (2.15)$$

mit  $\hat{a}^\dagger$  und  $\hat{a}$  als Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren, beschreiben [LO05]. Diese gibt an, mit welcher relativen Häufigkeit zum Zeitpunkt  $t + \tau$  ein zweites Photon detektiert wird, nachdem zum Zeitpunkt  $t$  das Erste detektiert wurde. Experimentell lässt sich diese Verteilung durch einen sogenannten Hanbury-Brown und Twiss Messaufbau [BT56] ermitteln (siehe hierzu Kap. 3.3.2). Befindet sich das System unter stationären Bedingungen, z.B. durch Dauerstrich-Anregung, so kann für den Fall  $\tau \rightarrow 0$  ein Wert von

$$g^{(2)}(\tau = 0) = 1 + \frac{(\Delta n)^2 - \langle n \rangle}{\langle n \rangle^2} \quad (2.16)$$

abgeleitet werden, mit  $\langle n \rangle$  als mittlere Photonenzahl und  $(\Delta n)^2 = \langle n^2 \rangle - \langle n \rangle^2$  als die dazugehörige Varianz des Feldzustandes.

Betrachtet man hierfür verschiedene Photonenzustände, so können unterschiedliche Werte für  $g^{(2)}(0)$  ermittelt werden, welche zur Klassifizierung genutzt werden können [LO05, Sch09]. Thermische Lichtquellen erzeugen ein Lichtfeld, welches aus dem thermischen Gleichgewicht von Emission und Absorption zwischen einem Strahlungsfeld und einem



**Abbildung 2.7:** Schematische Darstellung der Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung für (a) thermisches Licht, (b) kohärentes Licht und (c) nicht-klassisches Licht. Ein Wert von  $g^{(2)}(0) < 0,5$  ist ein eindeutiger Nachweis für Einzelphotonenemission.

Ensemble aus Emittlern entsteht. Die Wahrscheinlichkeitsverteilung der Photonenzahl von thermisch erzeugtem Licht folgt der Bose-Einstein-Verteilung eines schwarzen Strahlers und lässt sich durch  $P_{\text{th}}(n)$  beschreiben, woraus sich die Varianz und nach Gl. (2.16) auch  $g^{(2)}(\tau = 0)$  berechnen lässt:

$$P_{\text{th}}(n) = \frac{\langle n \rangle^n}{(1 + \langle n \rangle)^{1+n}} \quad \rightarrow \quad (\Delta n)_{\text{th}}^2 = \langle n \rangle^2 + \langle n \rangle \quad \rightarrow \quad g_{\text{th}}^{(2)}(0) = 2. \quad (2.17)$$

Thermisches Licht ist also dadurch charakterisiert, dass die Photonen bevorzugt in Gruppen auftreten, welche in unregelmäßigen Abständen aufeinander folgen. Ein solches Verhalten spiegelt sich durch  $g^{(2)}(0) > 1$  wider und wird als Photonen-*bunching* bezeichnet. Die Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung ist für thermisches Licht schematisch in Abb. 2.7 (a) dargestellt.

Bei kohärentem Licht, welches z.B. von einem Laser emittiert wird, ist die Wahrscheinlichkeitsverteilung der Photonenzahl durch eine Poisson-Verteilung gegeben:

$$P_{\text{koh}}(n) = \frac{\langle n \rangle^n}{n!} e^{-\langle n \rangle} \quad \rightarrow \quad (\Delta n)_{\text{koh}}^2 = \langle n \rangle \quad \rightarrow \quad g_{\text{koh}}^{(2)}(0) = 1 \quad (2.18)$$

Mit der daraus errechneten Varianz kann die in Abb. 2.7 (b) dargestellte Autokorrelationsfunktion mit  $g^{(2)}(0) = 1$  berechnet werden, was auf eine zeitlich unkorrelierte Emission hinweist. Die Wahrscheinlichkeit, dass zu einem späteren Zeitpunkt  $t + \tau$  ein Photon detektiert wird, wenn bereits zum Zeitpunkt  $t$  ein Photon detektiert wurde ist gleichverteilt. Es treten also auch bei kohärentem Licht Mehrphotonenereignisse auf. Dies stellt bei laserbasierten Quantenkryptographiesystemen ein inhärentes Sicherheitsproblem dar.

Anders verhält es sich bei nichtklassischem Licht, welches durch die sogenannten Fock-Zustände charakterisiert ist. Hierbei sind die Eigenzustände des Besetzungszahloperators über  $\hat{n}_i |n_i\rangle = n_i |n_i\rangle$ , mit  $n_i = 0, 1, 2, \dots$  als der Photonenzahl in dem entsprechendem Zustand, definiert. Die Wahrscheinlichkeitsverteilung der Photonenzahl in einem solchen Quantenzustand, ihre Varianz und  $g^{(2)}(0)$  lassen sich zu

$$P_{\text{Fock}}(n) = |\langle n|m \rangle|^2 = \delta_{nm} \quad \rightarrow \quad (\Delta n)_{\text{Fock}}^2 = 0 \quad \rightarrow \quad g_{\text{Fock}}^{(2)}(0) = 1 - \frac{1}{n_i} \quad (2.19)$$

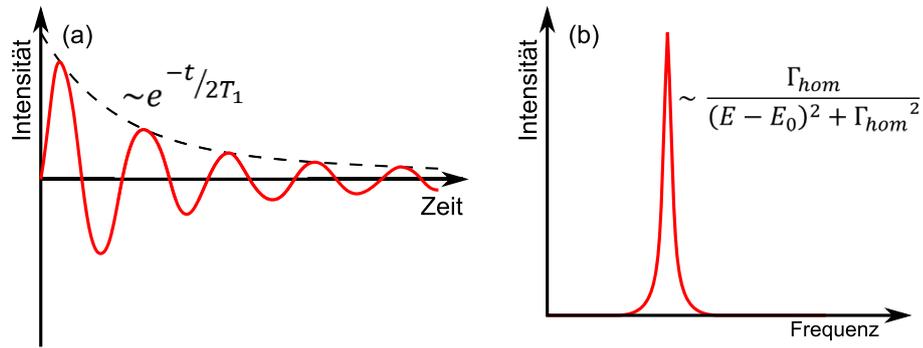
berechnen. Für einen Einzelphotonenemitter, für den  $n_i = 1$  gilt und dessen Autokorrelationsfunktion schematisch in Abb. 2.7 (c) dargestellt ist, wird somit  $g_{\text{Fock}}^{(2)}(0) = 0$  und hat die Bedeutung, dass die Photonen sowohl zeitlich, als auch räumlich voneinander separiert sind. Es treten bei  $n_i = 1$  keine Mehrphotonenzustände auf. Dieses Verhalten wird als Photonen-*antibunching* bezeichnet. Nimmt man  $n_i = 2$  an, ergibt  $g_{\text{Fock}}^{(2)}(0) = 0,5$ , was als oberes Limit für Einzelphotonennachweis gilt. Da dieses Verhalten nur durch eine quantenmechanische Beschreibung zu erklären ist, wird dieser Zustand auch als nicht-klassischer Photonenzustand betitelt. Die Emission eines QPes, welche durch den strahlenden Zerfall eines spektral separierbaren Zustands hervorgerufen wird, ist durch einen derartigen Fock-Zustand mit  $n_i = 1$  zu beschreiben. Ein QP kann daher als Einzelphotonenemitter eingesetzt werden [BRV12].

### 2.3.2 Linienverbreiterungsmechanismen

Die strahlende Rekombination eines Exzitons im InAs/GaAs-QP-Materialsystem tritt bei tiefen Temperaturen nach einer typischen strahlenden Lebensdauer  $T_1$ , auch Energierelaxationszeit genannt, von etwa 1 ns ein [MMH<sup>+</sup>03]. Diese ist mit der Fourier-limitierten Linienbreite über  $\Gamma_{\text{hom}} = 2\hbar/2T_1$  verknüpft, welche ca. 0,67  $\mu\text{eV}$  beträgt. Der Intensitätsverlauf der Fourier-limitierten Photonen in der Zeit- und Frequenzbasis ist dabei schematisch in Abb. 2.8 (a) und (b) dargestellt. Werden jedoch phasenerstörende Prozesse mit berücksichtigt, so ergibt sich für die Zeitskala der Phasenrelaxationszeit  $T_2$ , auch Kohärenzzeit genannt [BRPA03], welche alle phasenerstörenden Prozesse und die Energierelaxation mit beinhaltet, und die dazugehörige Linienbreite

$$\frac{1}{T_2} = \frac{1}{2T_1} + \sum_i \frac{1}{T_{2,i}^*} \quad \rightarrow \quad \Gamma_{\text{hom}} = \frac{2\hbar}{T_2}. \quad (2.20)$$

Dabei beschreiben  $T_{2,i}^*$  die charakteristischen Zeitskalen aller phasenerstörenden Prozesse unter Energieerhaltung des Zustands. Diese werden auch als Zeitskalen der reinen Dephasierung bezeichnet. Die für in QPen lokalisierten Ladungsträger prominentesten Vertreter sind: elastische Streuprozesse mit Phononen und Coulomb-Streuung an freien Ladungsträgern. Dabei ist zu beachten, dass es sich bei den experimentell bestimmbar  $T_{2,i}^*$ -Zeiten um statistische Mittelwerte handelt, welche nur durch wiederholte Messungen an dem Quantensystem ermittelt werden können [SFY10]. Jedes aus einem Zerfall entstehende



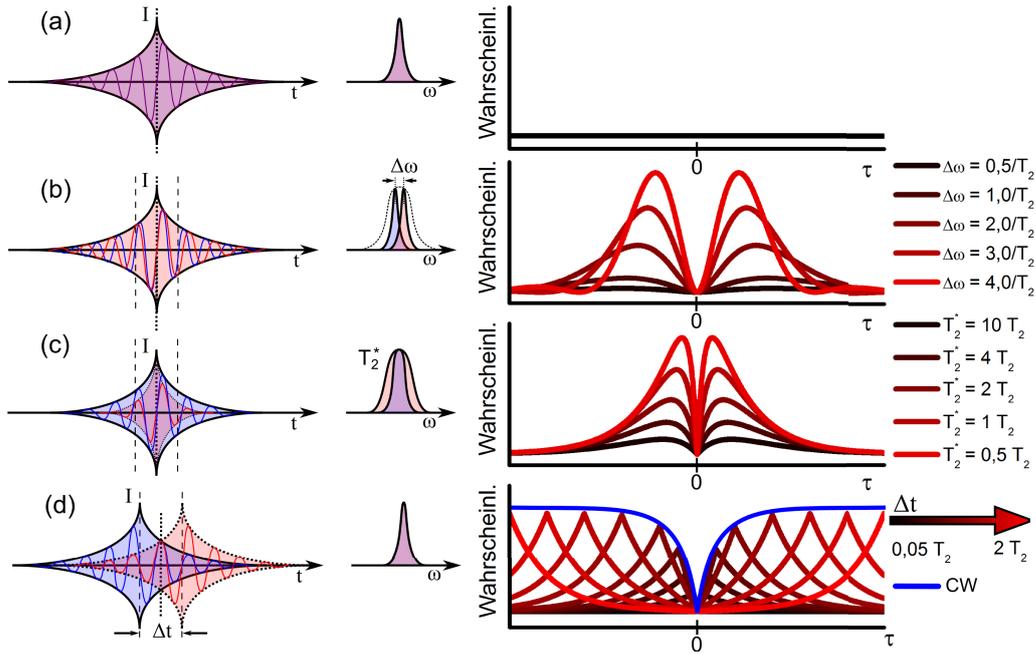
**Abbildung 2.8:** Schematische Darstellung von Fourier-limitierten Photonen in Zeit- (a) und Frequenz- (b) Basis. Die beiden Darstellungen sind über eine Fouriertransformation miteinander verknüpft.

und durch einen phasenerstörenden Prozess begleitete Photon besitzt daher seine eigene Kohärenzzeit und Linienbreite, welche abhängig von den statistischen Fluktuationen des Störprozesses variieren kann. Das entstandene Photon ist nun nicht mehr Fourier-limitiert und die Photonen sind untereinander nicht mehr vollständig ununterscheidbar wie in Abb. 2.9 (c) dargestellt ist.

Ein anderer Prozess, der zur inhomogenen Verbreiterung der Emissionslinien führt, wurde bereits in Kap. 2.2.3 diskutiert. Durch Umladen von Defekten in der Umgebung der QPe kommt es zur Verschiebung der Energieniveaus auf verschiedenen Zeitskalen. Diese Prozesse müssen jedoch nicht notwendigerweise von einer Zerstörung der quantenmechanischen Phase begleitet werden, wodurch die in Abb. 2.9 (b) dargestellte Situation entsteht, bei welcher zwar Fourier-limitierte Photonen emittiert werden, die zeitintegrierte Lumineszenz jedoch durch die Fluktuationen verbreitert ist.

### 2.3.3 Ununterscheidbarkeit von Photonen

Ein wichtiges Kriterium für alle auf Zwei-Photonen-Interferenz basierende Anwendungen, wie z.B. den Quantenrepeater [PCL<sup>+</sup>12], ist die Ununterscheidbarkeit der Photonen. Erst wenn zwei Photonenwellenpakete zeitlich, spektral und in ihrer Polarisationsrichtung überlappen, können Interferenzeffekte auftreten. Man bezeichnet die Photonen als ununterscheidbar. Als Maß für die Ununterscheidbarkeit kann die sogenannte Visibilität  $V$  definiert werden, welche den mittleren quadratischen Überlapp zweier normierter Photonen-Wellenpakete  $\tilde{\alpha}$  angibt [SFY10]. Die Berechnung von  $V$  kann dabei entweder in der Zeit-Orts-Basis oder in der Frequenz-Energie-Basis erfolgen. In der folgenden Betrachtung wird angenommen, dass beide Photonen die gleiche Polarisierung aufweisen:



**Abbildung 2.9:** Schematische Darstellung des Überlapps zweier Wellenpakete in (links) Zeitdarstellung und (mitte) Frequenzdarstellung. Dazu ist (rechts) die Wahrscheinlichkeitsverteilung angegeben, welche angibt mit welchem zeitlichen Abstand die beiden Photonen in einem HOM-Experiment detektiert werden, sollten sie nicht miteinander interferieren. Dabei beschreibt (a) eine vollständige Übereinstimmung in Frequenz und Zeit, (b) eine zeitliche Übereinstimmung zweier Photonen mit unterschiedlichen Fourier-limitierten Frequenzen, (c) eine zeitliche Übereinstimmung zweier nicht-Fourier-limitierter Photonen, welche unterschiedlichen Dephasierungsprozessen unterliegen sind und (d) zwei zeitlich separierte Photonen, welche sonst ununterscheidbar sind. In (d, rechts) ist zusätzlich in blau noch die über alle Zeitabstände integrierte Wahrscheinlichkeit mit angegeben, welche dem Ergebnis eines Dauerstrich-HOM-Experiments entspricht. Der Formelapparat zu den rechts dargestellten Wahrscheinlichkeitsverteilungen kann in [GTM<sup>+</sup>14, PBC<sup>+</sup>10] nachvollzogen werden.

$$V = \left\langle \left| \int \tilde{\alpha}_1(\omega) \tilde{\alpha}_2^*(\omega) d\omega \right|^2 \right\rangle = \left\langle \left| \int \tilde{\alpha}_1(t) \tilde{\alpha}_2^*(t) dt \right|^2 \right\rangle \quad (2.21)$$

$\langle \dots \rangle$  ist in dieser Darstellung als Ensemblemittelwert des mittleren quadratischen Überlapps definiert. Hierfür sind in Abb. 2.9 (a) bis (d) verschiedene Situationen für unterschiedliche Wellenfunktionenpaare schematisch dargestellt. Die hier vorgestellte Betrachtung soll keine quantitativen Aussagen treffen, jedoch soll ein Grundverständnis der Zwei-Photoneninterferenz vermittelt werden. Der dahinterstehende mathematische Formalismus kann in den Veröffentlichungen [BRPA03, LWKR03, LWKR06, SFY10, PBC<sup>+</sup>10, GTM<sup>+</sup>14] nachgelesen werden. Dabei wird jeweils zunächst der Überlapp der Photonenwellenpakete schematisch in der Zeit-Basis (links) und in der Frequenz-Basis (mitte) dar-

gestellt und zuletzt die Auswirkungen auf das in Kap. 3.3.3 vorgestellte Hong-Ou-Mandel Experiment [HOM87] (rechts) gezeigt. Bei diesem Experiment können an den beiden Detektoren gleichzeitige Detektionsereignisse ( $g_{\text{HOM}}^{(2)}(\tau = 0)$ ) nur auftreten, wenn zwei unterscheidbare Photonen am Strahlteiler aufeinandertreffen. Aus dem Vergleich zwischen  $g_{\perp}^{(2)}(\tau)$  für vollständige unterscheidbare Photonen (z.B. durch orthogonal zueinander stehende Polarisation) mit  $g_{\parallel}^{(2)}(\tau)$  für ununterscheidbare Photonen ergibt sich ein Maß für die Visibilität (siehe Kap. 3.3.3 und Gl. (3.10)) und somit für ihre Ununterscheidbarkeit.

Im Fall (a) stimmen beide Photonen sowohl in ihrer Zeitdarstellung, als auch in ihrer Frequenzdarstellung vollständig überein. Nicht-überlappende Anteile sind somit nicht existent und eine vollständige Ununterscheidbarkeit liegt vor. Da die beiden Photonen am Strahlteiler eines HOM-Experiments einen Zwei-Photonen Fock-Zustand bilden und diesen am gleichen Ausgang verlassen, treten keine Detektionsereignisse auf. Bei der Interferenz von Fourier-limitierten Photonen mit abweichender Frequenz  $\Delta\omega$  (siehe Abb. 2.9 (b)) stimmen die Einhüllenden der Wellenfunktion in der Zeitdarstellung zwar vollständig überein, es tritt jedoch durch den Frequenzunterschied eine langsame Dephasierung innerhalb der beiden Wellenpakete auf. Die phasenverschobenen Komponenten können nur noch mit reduzierter Wahrscheinlichkeit miteinander interferieren, wodurch sich eine zeitliche Abhängigkeit (ähnlich einer Schwebung) des Wellenpaketüberlapps ergibt. Gegenteilig verhält sich die Situation in (c), bei der ein homogener Linienverbreiterungsmechanismus durch eine zusätzliche  $T_{2,i}^*$ -Zeit auftritt<sup>1</sup>. Hierbei besitzen die Photonen zwar die gleiche mittlere Frequenz, die Wellenpakete sind in der Zeitdarstellung jedoch unterschiedlich lang und der Überlapp zwischen beiden ist dementsprechend reduziert. In (d) ist die Situation dargestellt, bei der zwei potentiell vollständig ununterscheidbare Photonen mit einem zeitlichen Abstand von  $\Delta t$  zueinander interferieren. Auch dadurch wird der Überlapp der Wellenfunktionen reduziert, was bei sehr großen  $\Delta t$  zu einer vollständigen Separation führt. Im Fall von Dauerstrich-Anregung interferieren Photonen mit allen zeitlichen Abständen zueinander, wodurch sich im Ensemble die in blau dargestellte Kurve ergibt.

Im Experiment, welches eine Integration über mehrere Millionen Ereignisse erfordert und somit mehrere Stunden in Anspruch nimmt, treten selbst bei der Korrelation von Photonen eines einzigen QPs Fluktuationen in  $\Delta\omega$  und  $T_2^*$  auf. Die daraus ermittelte gemessene Visibilität, welche aus der wiederholten Messung der Ununterscheidbarkeit zwischen zwei aufeinanderfolgenden Photonen gebildet wird, ist somit ein Maß für die Störungen des mikroskopischen Systems über die gesamte Messdauer. Dabei kann der QP als

<sup>1</sup> Hierbei ist wie in Kap. 2.3.2 dargelegt jedoch darauf zu achten, dass die  $T_{2,i}^*$ -Zeiten nur als statistisches Mittel angesehen werden können. Das einzelne Photon erfährt jedoch einen individuellen phasenerstörenden Prozess, wodurch es durch eine individuelle Kohärenzzeit beschrieben werden müsste.

2-Niveau-System betrachtet werden, welcher über die Coulomb-Wechselwirkung an eine fluktuierende Umgebung koppelt. Schwache Fluktuationen in  $\Delta\omega$  und  $T_2^*$  geben bei einer Übereinstimmung der Polarisation somit hohe Visibilitätswerte.

## 2.4 Kavitätsquantenelektrodynamik im Regime der schwachen Kopplung

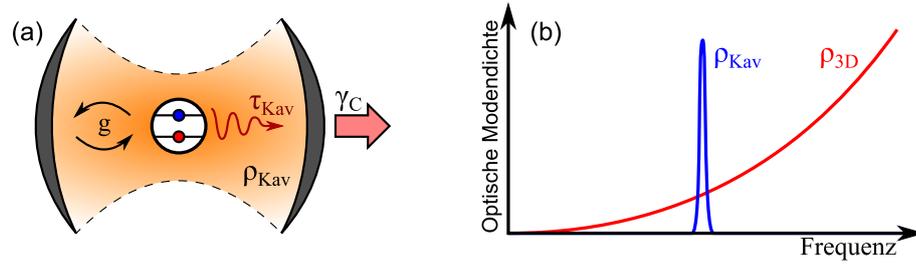
Das Gebiet der Kavitätsquantenelektrodynamik (cQED - engl. *cavity quantum-electrodynamics*) beschreibt das gekoppelte System eines Zweiniveau-Emitters, welcher in einer Kavität platziert ist [YTC00, RF10, GSG<sup>+</sup>98]. In Abb. 2.10 (a) ist die Situation schematisch für ein Zwei-Niveausystem als Emitter dargestellt. Dabei unterscheidet man je nach Stärke der Licht-Materie Kopplung der beiden Systeme, welche durch die Kopplungskonstante  $g$  repräsentiert wird, zwischen dem Regime der *starken Kopplung* und dem der *schwachen Kopplung*. Bei der *starken Kopplung* ist bei räumlicher und spektraler Übereinstimmung zwischen Emitter und Resonator die Verlusterate des Resonators  $\gamma_C$  kleiner als die Kopplungsrate  $g$ , wodurch das vom Zwei-Niveausystem emittierte Photon periodisch reabsorbiert werden kann, womit es zur quantenmechanischen Verschränkung zwischen Emitter und Lichtfeld in der Kavität kommt [APG99]. Eine direkte Folge stellen Vakuum Rabi-Oszillationen des Systems dar. Sind hingegen die dissipativen Verluste des Resonators groß, verlässt das Photon diesen, bevor Reabsorption auftritt. Man befindet sich im Regime der *schwachen Kopplung*. Das Emitter-Resonator-System kann in diesem Fall durch eine veränderte optische Modendichte  $\rho_{\text{Kav}}(\omega)$  beschrieben werden, welche die Lebensdauer des Zustands beeinflusst. Die spontane Lebensdauer kann dabei anhand Fermis' Goldener Regel

$$\frac{1}{\tau} = \frac{2\pi}{\hbar} \rho(\omega_0) |\langle \vec{d} \cdot \vec{F}(\vec{r}_0) \rangle|^2 \quad (2.22)$$

mit dem quadrierten Dipolübergangsmatrixelement  $|\langle \vec{d} \cdot \vec{F}(\vec{r}_0) \rangle|^2$  und der optischen Modendichte  $\rho$  bei der Emissionsfrequenz des Emitters  $\omega_0$  errechnet werden. Aus dem Vergleich zwischen der strahlenden Lebensdauer in der Kavität  $\tau_{\text{Kav}}$  und der unmodifizierten Lebensdauer im Volumenmaterial  $\tau_{3D}$  kann der sogenannte Purcell-Faktor

$$F_P = \frac{\tau_{3D}}{\tau_{\text{Kav}}}, \quad (2.23)$$

benannt nach seinem Entdecker E. M. Purcell [Pur46], bestimmt werden. Dieser Purcell-Faktor kann durch Einsetzen der beiden optischen Modendichten für den Volumenhalbleiter  $\rho_{3D}(\omega)$  und der Kavität  $\rho_{\text{Kav}}(\omega)$  mit



**Abbildung 2.10:** (a) Schematische Darstellung eines Emitters, der mit einer Kavität mit einer Kopplungsstärke von  $g$  wechselwirkt. Bei schwacher Kopplung überwiegen die Resonatorverluste  $\gamma_C$  das Reabsorptionsvermögen des Emitters. (b) Abhängigkeit der optischen Modendichte von der Frequenz für den freien Raum (3D) und für eine Kavität.

$$\rho_{3D}(\omega) = \frac{\omega^2 n^2 V'}{\pi^2 c^3} \quad \text{und} \quad \rho_{\text{Kav}}(\omega) = \frac{2}{\pi \gamma_C} \frac{\gamma_C^2}{4\Delta^2 + \gamma_C^2} \quad (2.24)$$

in Gl. (2.22) errechnet werden [YTC00]. Dabei handelt es sich bei  $V'$  um ein Modenvolumen, bei  $n$  um den Brechungsindex des Volumenhalbleiters, bei  $\gamma_C$  um die Verluste (respektive die Linienbreite) des Resonators und bei  $\Delta$  um die Verstimmung zwischen Resonator und Emitter. Die beiden Modendichten sind in Abb. 2.10 (b) schematisch dargestellt. Mit Hilfe von Gl. (2.22) und (2.23), sowie mit  $Q = \frac{\lambda_C}{\gamma_C}$  erhält man

$$F_P = \frac{3Q(\lambda_C/n)^3}{4\pi^2 V_M} \cdot \frac{\lambda_C^2}{4Q^2 \Delta^2 + \lambda_C^2} \cdot \frac{|\vec{d} \cdot \vec{F}(\vec{r})|^2}{|\vec{d}|^2} \quad (2.25)$$

mit  $V_M$  als optisches Modenvolumen der Resonatormode,  $\lambda_C$  als Resonanzwellenlänge und  $Q$  als Güte des Resonators [GG03]. Dabei ist durch den ersten Term von Gl. (2.25) der maximal mögliche Purcell-Faktor, welcher durch die Resonatorgeometrie vorgegeben ist, bestimmt. Der zweite Term beschreibt die Abhängigkeit der Kopplung von der spektralen Verstimmung zwischen Resonator und Kavität. Der dritte Term beschreibt die Abhängigkeit des Purcell-Faktors vom Überlapp und der Ausrichtung zwischen elektrischem Feld und Emitterdipol. Der maximal erreichbare Purcell-Faktor kann demnach nur erzielt werden, wenn ein vollständiger spektraler und räumlicher Überlapp zwischen Resonatorfeld und Emitter herrscht. Ist  $F_P > 1$  gegeben, so wird die strahlende Lebensdauer des QPes verkürzt, was für die Anwendung als Einzelphotonenquelle höhere Emissions- und somit Übertragungsraten erlaubt. Dabei muss jedoch darauf geachtet werden, dass die in den Resonator emittierten Photonen diesen bevorzugt in Richtung Sammeloptik verlassen. Diese Aufgabe wird in Kap. 6.4 am Beispiel von kavitätsintegrierten Mikrolinsen adressiert, indem ein optimales Resonator-Design anhand von FEM-Simulationen ermittelt wird.



## 3 Experimentelle Messtechniken

In den folgenden Kapiteln werden die experimentellen Messaufbauten und -techniken erläutert, welche zur Charakterisierung der QPe verwendet werden. Beginnend bei der Kathodolumineszenz- (KL) Spektroskopie in Kap. 3.1 wird zunächst der Messaufbau erläutert, um anschließend die Vorgänge und Besonderheiten bei der Anregung mittels Elektronenstrahlen darzulegen. Neben dem Zustandekommen des Generationsvolumens wird insbesondere auf die Ladungsträgerdiffusion eingegangen, welche zur leistungsabhängigen QP-Spektroskopie genutzt werden kann und zur Identifikation verschiedener exzitonischer Komplexe während der Aufnahme von Kathodolumineszenz-Karten dient. Im Anschluss wird in Kap. 3.2 der Aufbau zur Mikro-Photolumineszenz ( $\mu$ -PL) Spektroskopie erläutert, welcher zu detaillierteren Untersuchungen der mittels Kathodolumineszenzlithographie (KLL) hergestellten Strukturen eingesetzt wird. Dieser in Kombination mit den in Kap. 3.3 vorgestellten zeitaufgelösten Messtechniken erlaubt eine umfassende Charakterisierung der QPe im Hinblick auf ihre Verwendung in der Quantenkommunikations- und Quanteninformationstechnologie und gibt zudem Einblicke in die Ladungsträgerdynamik des QPes.

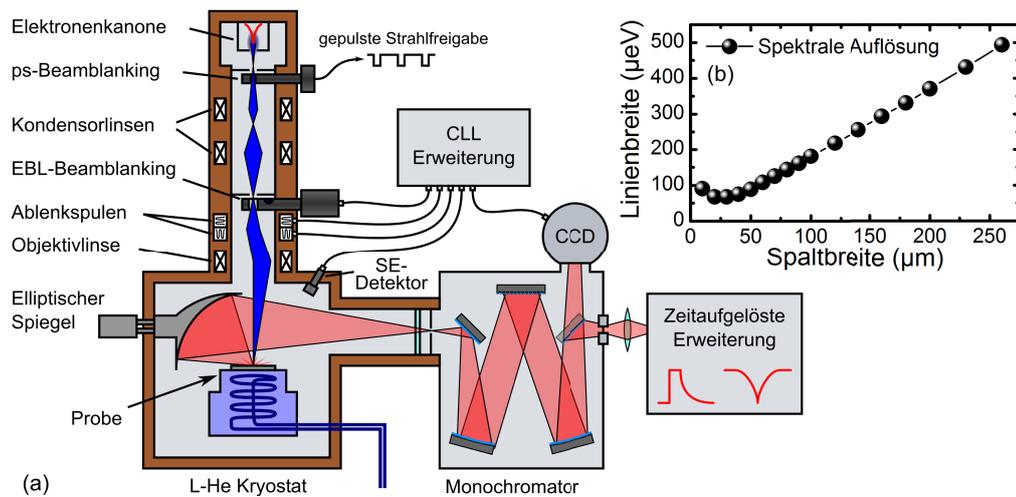
### 3.1 Kathodolumineszenzspektroskopie

Im Vergleich zu  $\mu$ -PL Spektroskopie ist in KL Spektroskopie ausschließlich eine Überbandanregung möglich. Sie bietet dafür aber den Vorteil einer höheren räumlichen Auflösung, sowie einer schnellen und komfortablen Ortsabtastung der Probe. Hierfür muss bei der  $\mu$ -PL Spektroskopie die Abtastung eines Probenabschnitts mit Hilfe von Positionierbühnen erfolgen, was bei großen Flächen mehrere Stunden in Anspruch nehmen kann. In der KL Spektroskopie hingegen ist die Abtastung elektronisch und ohne bewegbare Teile möglich, wodurch Probenabschnitte ähnlicher Größe in wenigen Minuten kartiert werden können. Dies macht die KL Spektroskopie, neben der Möglichkeit auch Halbleiter mit nahezu beliebig hoher Bandlücke anregen zu können, zum bevorzugten Werkzeug, um Proben auf ihre räumlichen Lumineszenzeigenschaften zu untersuchen. Daher ist sie als komplementäre Analysemethode zur  $\mu$ -PL Spektroskopie anzusehen, bei welcher eine kontrolliertere Anregungssituation erzeugt werden kann. Eine Einführung in die KL Spektroskopie kann

in [GPMS98] und [YH86] gefunden werden, wobei grundlegende Eigenschaften der verwendeten Anlage in den Arbeiten von Christen *et. al* (z.B. [Chr91]) nachgelesen werden können.

### 3.1.1 Kathodolumineszenz-Messaufbau

Der Aufbau zur KL-Spektroskopie besteht aus einem modifizierten Rasterelektronenmikroskop (REM) *Jeol JSM-840*, welches um einen elliptischen Spiegel und ein Spektrometer, sowie um einen tieftemperaturfähigen Probenhalter und eine selbstentwickelte Elektronenstrahlolithographie (EBL - engl. electron-beam lithography) -Einheit erweitert wurde. Der schematische Anlagenaufbau ist in Abb. 3.1 dargestellt. Zur Anregung dient eine Elektronenkanone, mit einem  $\text{LaB}_6$ -Kristall als thermischen Emitter, wobei die Elektronen durch eine Beschleunigungsspannung von 3 bis 20 kV (durch eine leichte Modifikation am Wehneltzylinder auch bis 40 kV) in Richtung Probenoberfläche beschleunigt werden. Die Fokussierung des Elektronenstrahls auf einen Durchmesser  $\ll 50$  nm erfolgt dabei über zwei Kondensor- und eine Objektivlinse mit Hilfe von zwei Blenden. Zur Strahlaustastung stehen weiterhin zwei Beambanking-Einheiten zur Verfügung: Für zeitaufgelöste Experimente wird die ps-Beambankingseinheit *Kammrath & Weiss - Electrostatic Beam Blanker* verwendet, welche direkt unter der Elektronenkanone angebracht ist und durch einen Spannungshub von nur 5,1 V den Elektronenstrahl mit einer Flankensteilheit von unter 100 ps austasten kann. Der geringe Spannungshub wirkt sich jedoch dahingehend nachteilig aus, dass nur Elektronen mit Energien zwischen 0 und 10 kV verlässlich ausgestastet werden können und durch die Nähe zum heißen Elektronenemitter starke thermische Drifts auftreten. Deswegen wird zur EBL die zweite Beambankingseinheit *DEBEN - PCD Beam Blanker* mit 200 V Ablenkspannung und integriertem Faraday-Becher zur Strahlstrommessung verwendet. Die Probe selbst befindet sich auf einem positionierbaren He-Durchflusskryostaten, welcher in der Lage ist, die Probe auf Temperaturen zwischen 5 und 300 K bei geringsten Vibrationen (siehe hierzu Kap. 5.3.1) zu halten. In den Experimenten werden weiterhin zwei Orientierungen der Probe verwendet: Um maximale Sammeleffizienz zu erreichen, kann die Probe senkrecht zur Sammeloptik ( $45^\circ$  zur Horizontalen) oder für Lithographieanwendungen senkrecht zum einfallenden Elektronenstrahl ( $0^\circ$  zur Horizontalen) orientiert werden. Die Sammeloptik besteht dabei aus einem elliptischen Spiegel, dessen erster Brennpunkt auf der Probenoberfläche liegt und dessen zweiter Brennpunkt auf den Eintrittsspalt des Monochromators *Acton - SP2500* fällt. Dieser ist mit einem variablen Gitterhalter ausgestattet, welcher auf infrarotes Licht optimierte Gitter mit wahlweise 150, 600 und 1200 Linien/mm trägt. Das dichteste Gitter ermöglicht zusammen mit der stickstoffgekühlten CCD (engl. charge-coupled device) *Princeton Instruments - PYLON*

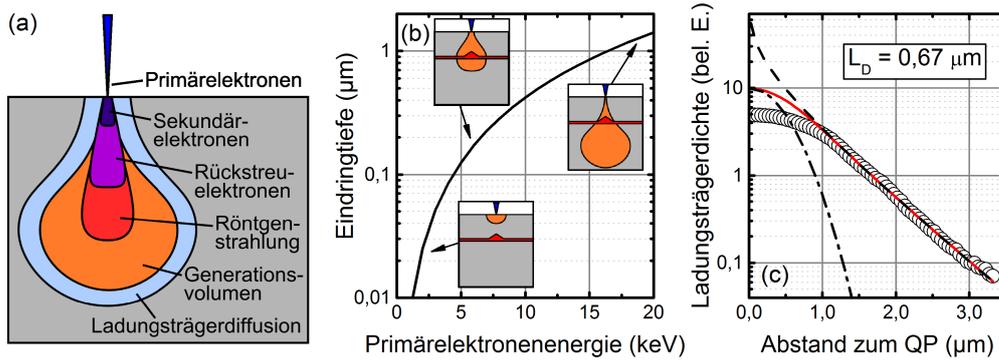


**Abbildung 3.1:** (a) Schematische Darstellung des KL-Spektroskopie und -Lithographieaufbaus. Die Steuerung der Anlage übernimmt ein selbstentwickeltes Softwarepaket, um eine vollständige Synchronisation aller beteiligter Komponenten zu erreichen. Der Aufbau kann um die in Kap. 3.3 beschriebenen Komponenten für zeitaufgelöste Messungen erweitert werden. (b) Spektrale Auflösung der Apparatur in Abhängigkeit der Monochromator-Spaltbreite.

mit  $1340 \times 100$  Pixeln und  $20 \times 20 \mu\text{m}^2$  Pixelgröße eine minimale spektrale Auflösung von  $64 \mu\text{eV}$  (siehe Abb. 3.1(b)). Durch den zweiten Austrittsspalt am Monochromator kann der KL-Aufbau um die in Kap. 3.3 vorgestellten, zeitaufgelösten Erweiterungen ergänzt werden. Die Steuerung des gesamten Systems erfolgt dabei über die computergesteuerte AD-/DA-Wandlerkarte *NI PCI-6251* mit  $1,25 \text{ MS/s}$ , welche mit einem im Rahmen dieser Arbeit selbst entwickelten, auf *LabVIEW* basierenden Computerprogramm die Synchronisation der Ablenkspulen, der Beamblanking-Einheit, des SE-Detektors und der CCD, sowohl für die Spektroskopie, als auch für die Lithographie übernimmt.

### 3.1.2 Anregung von Halbleitern mittels Elektronenstrahl

Die Anregung einer Probe mittels Elektronenstrahl unterscheidet sich von der Anregung durch Licht insbesondere dadurch, dass die Generation von e-h Paaren durch eine Vielzahl von Energietransferprozessen der hochenergetischen Primärelektronen begleitet wird. Hierzu zählen unter anderem die Erzeugung von Sekundärelektronen, Brems- und charakteristischer Röntgenstrahlung, sowie die Anregung von Elektronen aus dem Valenzband in das Leitungsband im gesamten Anregungsvolumen. Das dadurch gebildete Generationsvolumen ist in Abb. 3.2(a) mit den jeweiligen Regionen der auftretenden Sekundärprozesse schematisch dargestellt (siehe auch Anhang A). Für die Anregung von QPen ist insbesondere das Generationsvolumen für e-h Paare, welche eine mittlere Energie des 2,8 bis



**Abbildung 3.2:** (a) Schematische Darstellung des Anregungsvolumens eines Elektronenstrahls. Für die Erzeugung von Kathodolumineszenz ist das Generationvolumen von Elektronen und Löchern ausschlaggebend, welches durch die Ladungsträgerdiffusion noch vergrößert wird. (b) Eindringtiefe in Abhängigkeit der Beschleunigungsspannung. Zusätzlich hierzu ist die schematische Form des Generationvolumens für verschiedene Beschleunigungsspannungen mit eingezeichnet. (c) Kathodolumineszenz (Kreise) eines QPES in Abhängigkeit vom Abstand zum Elektronenstrahl. Aus der Anpassung einer Faltung (rote Linie) von Ladungsträgerdiffusion (gestrichelte Linie) und Generationvolumen (strich-punktierte Linie) kann die Diffusionslänge im Material zu  $L_D = 0,67 \mu\text{m}$  bestimmt werden.

3,5-fachen der Bandlücke besitzen [Kle68], sowie deren Diffusion von Interesse. Die Größe und Form des Generationvolumens hängt dabei von der verwendeten Beschleunigungsspannung  $E_B$ , sowie der Dichte  $\rho$  (in  $\text{g}/\text{cm}^3$ ) des Halbleitermaterials ab und kann mit Hilfe der modifizierten Formel von Grün *et al.* [Grü57, Eve71] für die Eindringtiefe der Elektronen über

$$R_G = \frac{0,0398}{\rho} (E_B)^{1,75} \quad (\mu\text{m}) \quad (3.1)$$

berechnet werden. Diese Eindringtiefe ist für GaAs ( $\rho = 5,32 \text{ g}/\text{cm}^3$ ) in Abb. 3.2 (b) zusammen mit einer schematischen Darstellung der Form des Generationvolumens aufgetragen.

Der Bereich in welchem QPe durch e-h Paaren angeregt werden können besteht aus dem Generationsvolumen selbst, welches durch die Ladungsträgerdiffusion der Teilchen vergrößert wird. Da bei dem vorliegenden Probenmaterial die Ladungsträgerdiffusion entweder durch sogenannte Antidiffusionsbarrieren oder durch DBR-Spiegel in Wachstumsrichtung eingeschränkt ist, wird im Weiteren als Näherung eine zweidimensionale Diffusion parallel zur Oberfläche angenommen. Die Antidiffusionsbarrieren, sowie die DBR-Spiegel bestehen dabei aus AlGaAs-Schichten mit einer höheren Bandlücke als die der GaAs-Matrix und liegen in einem Abstand von weniger als 170 nm von der QP-Schicht entfernt. Beschrieben wird das System durch die zweidimensionale Diffusionsgleichung

$$\frac{\partial N(r,t)}{\partial t} = D\nabla^2 N(r,t) - \frac{N(r,t)}{\tau} \quad (3.2)$$

mit  $r$  als Radialkoordinate,  $N(r,t)$  als orts- und zeitabhängige Ladungsträgerdichte und  $D$  als Diffusionskonstante, wobei die Lebensdauer  $\tau$  der Ladungsträger mit berücksichtigt wird. [VB54, LFH<sup>+</sup>97] Die Lösung dieser Gleichung ergibt

$$N(r,t) = \frac{N_0}{4\pi Dt} \exp\left(\frac{-r^2}{4Dt}\right) \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right). \quad (3.3)$$

Nimmt man weiterhin an, dass bei kontinuierlicher Anregung die gesamte Lumineszenzintensität  $I_{\text{Ges}}(r)$  des QPes proportional zur Ladungsträgerdichte am Ort des QPes ist, kann unter stationären Bedingungen dessen radiale Abhängigkeit zu

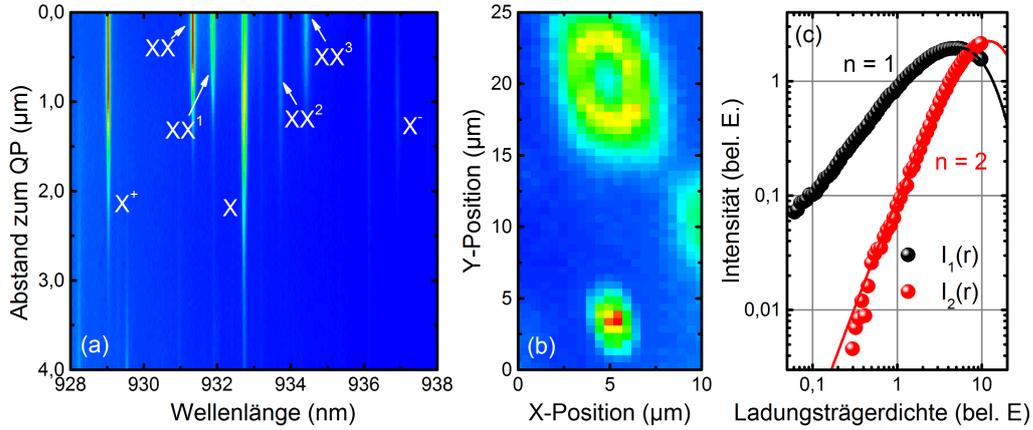
$$I_{\text{Ges}}(r) \propto N(r) = \int_0^\infty N(r,t) dt = N_0 \cdot \mathcal{K}_0(r/L_D) \quad (3.4)$$

mit  $\mathcal{K}_0$  als Besselfunktion nullter Ordnung und  $L_D = \sqrt{D\tau}$  als Diffusionslänge bestimmt werden. Dieses ortsabhängige Intensitätsverhalten kann nach Dupuy *et al.* [DMP<sup>+</sup>09] dazu verwendet werden, die Diffusionslänge  $L_D$  des Materials zu ermitteln. Hierzu wird die integrierte Intensität der QP-Lumineszenz in Abhängigkeit des Abstands zwischen QP und Elektronenstrahl, wie in Abb. 3.2 (c, offene Kreise) dargestellt, aufgetragen. An diese kann nun die Faltung (rote Linie) aus Generationsvolumen (strich-punktierte Linie), unter der Annahme eines Gaußförmigen Verlaufs in der Ebene, und Ladungsträgerdiffusion nach Gl. (3.4) (gestrichelte Linie) angefitet werden. Dadurch ergibt sich für die in dieser Arbeit vorliegenden Proben, welche alle unter ähnlichen Wachstumsbedingungen hergestellt wurden, eine Diffusionslänge von  $L_D = (0,67 \pm 0,03) \mu\text{m}$ . Ein Vergleich mit der Arbeit von Favorskiy *et al.* [FVP<sup>+</sup>10] an GaAs-Filmen, welche Diffusionslängen von 1,2 bis 21,3  $\mu\text{m}$  ermitteln, zeigt, dass abhängig von den Wachstumsbedingungen eine starke Variation möglich ist.

### 3.1.3 Leistungsabhängige QP-Spektroskopie

Durch die Variation der Ladungsträgerdichte in der Umgebung eines QPes können anhand seiner Lumineszenz Aussagen über die Besetzung der jeweiligen Energieniveaus getroffen werden. Ausgehend von dem Modell einer zufälligen Besetzung (RPM - engl. *random population model*) mit e-h Paaren<sup>1</sup> nach Grundmann *et. al* [GB97, AMK<sup>+</sup>09], bei unendlich

<sup>1</sup> Für den Fall unabhängiger Einfangprozesse von Elektronen und Löchern siehe Gomis-Bresco *et. al* [GBMMP<sup>+</sup>11].



**Abbildung 3.3:** (a) Lumineszenz-Intensität (lineare Farbskala) eines QPes in Abhängigkeit vom Abstand zum Elektronenstrahl. (b) Durch die ortsabhängige Ladungsträgerdichte des Elektronenstrahls zeigen sich in der KL-Karte (lineare Farbskala) Ringe, welche Exzitonen zuzuordnen sind und Punkte, welche auf einen biexzitonischen Komplex hinweisen. (c) Lumineszenzintensität der summierten mono- und biexzitonischen Komplexe in Abhängigkeit der Ladungsträgerdichte zusammen mit der Anpassung nach Gl. (3.7). Angegeben ist auch die Anzahl  $n$  der Exzitonen, welche der Anpassung vorgegeben wurde.

vielen besetzbaren Energieniveaus wird angenommen, dass ein QP mit einer Besetzungswahrscheinlichkeit  $P_n$  von  $n$  Exzitonen besetzt ist. Durch Rekombinationsprozesse mit der Rekombinationszeit  $\tau_r$  oder dem Einfang eines Exzitons mit der Einfangzeit  $\tau_c$  wird der QP entweder stärker bevölkert ( $n \rightarrow n + 1$ ) oder entleert ( $n \rightarrow n - 1$ ), mit  $n = 0$  Grundzustand. Damit lässt sich die Mastergleichung des Systems im Gleichgewichtsfall zu

$$\frac{dP_n}{dt} = \frac{(n+1)P_{n+1}}{\tau_r} - \frac{nP_n}{\tau_r} + \frac{N_R P_{n-1}}{\tau_c} - \frac{N_R P_n}{\tau_c} = 0 \quad (3.5)$$

aufstellen. Die Verknüpfung zur Ladungsträgerdichte und damit zur Anregungssituation in der Nähe des QPes wird dabei über die Anzahl der verfügbaren Exzitonen im Reservoir  $N_R$  hergestellt. Die Lösung der Mastergleichung ergibt eine Poissonverteilung der Besetzungswahrscheinlichkeit

$$P_n = \frac{\langle n \rangle^n}{n!} e^{-\langle n \rangle} \quad (3.6)$$

mit  $\langle n \rangle = N_R \tau_r / \tau_c$  als mittlerer Exzitonenzahl. Nimmt man an, dass  $\langle n \rangle$  proportional zur Ladungsträgerdichte  $N(r)$  und somit nach Gl. (3.4) auch zur Gesamtlumineszenz  $I_{\text{Ges}}(r)$  ist, und geht man weiterhin davon aus, dass die Besetzungswahrscheinlichkeit  $P_n$  proportional zur Summe der Lumineszenz  $I_n(r) = \sum_* I_n^*(r)$  aller QP-Zustände mit  $n$  Exzitonen, wobei  $*$  für die geladenen und ungeladenen Zustände steht, so ergibt sich für Gl. (3.6) die experimentell zugänglichere Form

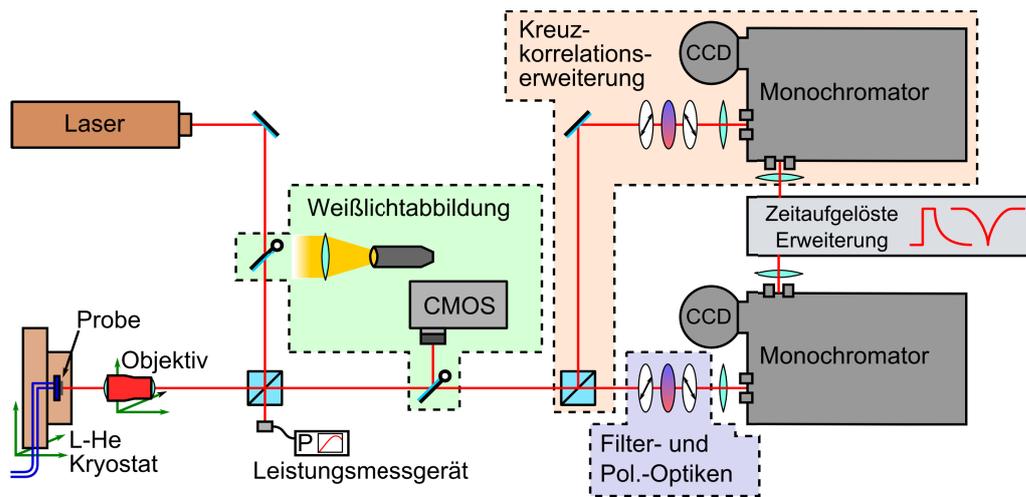
$$I_n(r) = \alpha \frac{(I_{\text{Ges}}(r))^n}{n!} e^{-\beta I_{\text{Ges}}(r)}, \quad (3.7)$$

mit  $\alpha$  und  $\beta$  als Anpassungsparameter und  $r$  als Abstand zwischen QP und Elektronenstrahl. Für Zustände mit nur einem (zwei) Exziton(en) im QP ( $X^*$  bzw.  $XX^*$ ) ergibt sich mit  $n = 1$  ( $n = 2$ ) ein linearer (quadratischer) Anstieg der KL-Intensität in Abhängigkeit der Ladungsträgerdichte.

Experimentell kann in der KL Spektroskopie das leistungsabhängige Verhalten durch eine Linienabtastung aufgenommen werden, bei der der Abstand zwischen QP und Elektronenstrahl sukzessive verringert wird, während die spektral aufgelöste Lumineszenz für jeden Punkt auf der Linie aufgenommen wird. Exemplarisch ist dies für den QP, welcher auch zur Ladungsträgerdiffusionslängenbestimmung in Kap. 3.1.2 verwendet wurde, in Abb. 3.3 (a) durchgeführt worden. Zu erkennen sind die einzelnen geladenen, ungeladenen, mono- und biexzitonischen Komplexe, welche sich im Anstieg ihrer Lumineszenzintensitäten signifikant voneinander unterscheiden. Trägt man die Summe der einzelnen monoexzitonischen Komplexe  $I_1(r)$  (schwarze Punkte) und die Summe der einzelnen biexzitonischen Komplexe  $I_2(r)$  (rote Punkte) über die aus der Gesamtintensität  $I_{\text{Ges}}(r)$  ermittelte Ladungsträgerdichte aus Abb. 3.2 (c, runde Kreise) auf, so ergibt sich der in Abb. 3.3 (c) dargestellte Verlauf. Die nach Gl. (3.7) angepasste Poissonverteilung ist für  $n = 1$  und  $n = 2$  als durchgezogene Linie mit eingezeichnet. Die Tatsache, dass monoexzitonische Komplexe eine geringere  $r$ -abhängige Steigung aufweisen und bereits bei niedrigeren Leistungen ihre maximale Intensität erreichen, kann bereits während der Kartierung der Probenlumineszenz zur Unterscheidung des Besetzungszustands des QPes genutzt werden. Hierfür ist in Abb. 3.3 (b) ein Ausschnitt aus einer Lumineszenzkarte gezeigt, bei welchem sich für monoexzitonische Komplexe ausgedehnte Lumineszenzringe (oben) und für biexzitonische Komplexe Lumineszenzpunkte (unten) ergeben. Dies ermöglicht bereits bei der KLL-Kartierung (siehe Kap. 5.2.1) eine einfache und schnelle Grundcharakterisierung der zu integrierenden QPe.

## 3.2 Mikrophotolumineszenzspektroskopie

Der Aufbau, welcher für  $\mu$ -PL Untersuchungen der hergestellten Proben verwendet wurde ist schematisch in Abb. 3.4 dargestellt. Zur Anregung stehen verschiedene Lasersysteme zur Verfügung, wobei zur nichtresonanten Anregung ein diodengepumpter, frequenzverdoppelter Nd:YAG-Laser ( $\lambda = 532$  nm), sowie ein HeNe-Laser ( $\lambda = 632$  nm) verwendet werden können. Ist ein gepulstes Überband-Anregungsschema erforderlich, kann auf einen gepulst betriebbaren Diodenlaser ( $\lambda = 655$  nm) zurückgegriffen werden, welcher bis zu einer Fre-



**Abbildung 3.4:** Schematische Darstellung des  $\mu$ -PL Aufbaus. Verschiedenste Laser ermöglichen dabei eine nicht- und quasiresonante Anregung der QP-Probe. Das dabei erzeugte Licht durch ein Spektrometer spektral zerlegt und untersucht. Eine optionale, zeitaufgelöste Erweiterung gibt weiterhin Aufschluss über die Lebensdauer der Zustände, sowie deren Photonstatistik. Zur Kreuzkorrelation zweier verschiedener Emissionslinien kann der Aufbau um einen weiteren Monochromator erweitert werden.

quenz von 80 MHz betreibbar ist. Zur quasi-resonanten Anregung, sowohl in Dauerstrichanregung, als auch mit 80 MHz Repetitionsrate, steht ein verstimmbarer, modengekoppelter Titan:Saphir-Laser für den Wellenlängenbereich zwischen  $\lambda = 770$  bis 1050 nm zur Verfügung. Das Laserlicht wird über ein piezo-positionierbares, infrarot-korrigiertes, 20x NIR-Objektiv ( $NA = 0,4$ ) auf die Probe mit einem Spotdurchmesser von ca.  $3 \mu\text{m}$  fokussiert, welche sich in dem über eine Positionierbühne verfahrbaren He-Durchflusskryostaten *Janis ST-500* befindet. Der Kryostat erlaubt über eine PID-geregelte Heizvorrichtung einen Temperaturbereich zwischen 5 bis 300 K bei einer Temperaturstabilität von 0,05 K [SKG<sup>+</sup>15]. Die durch die Anregung erzeugte Probenlumineszenz wird über das Objektiv eingesammelt und mit Hilfe einer Linse auf den Eintrittsspalt eines Monochromators *Acton - SP-2750* fokussiert. Zusätzlich können Filter- und Polarisationsoptiken in den Strahlengang eingebracht werden, um das QP-Signal zu manipulieren oder um Streulicht des Lasers zu unterdrücken. Über verschiedene optische Gitter mit 300, 1200 oder 1500 Strichen pro mm wird das Probenlicht dispergiert und über die stickstoffgekühlte CCD *Princeton Instruments - PYLON* mit 1340x400 Pixeln und einer erreichbaren Auflösung von  $22 \mu\text{eV}$  detektiert. Das so dispergierte Probenlicht kann alternativ über einen seitlichen Austrittsspalt am Monochromator in die in Kap. 3.3 erläuterten zeitaufgelösten Messapparaturen eingekoppelt werden. Um die im Kap. 3.3.2 beschriebene Kreuzkorrelation durchführen zu können steht ein zusätzlicher, baugleicher Monochromator samt CCD

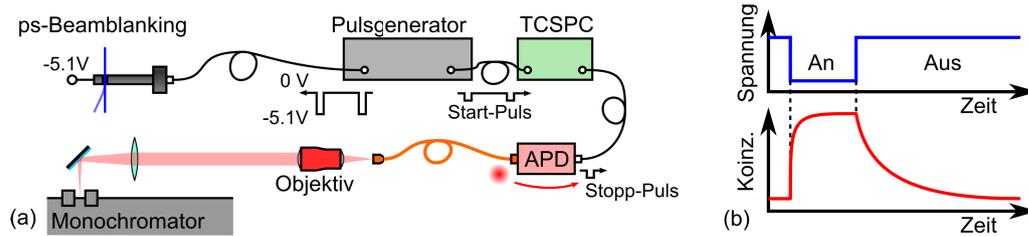
zur Verfügung, in welchen über einen Strahlteiler ein Teil des Probenlichts eingekoppelt werden kann. Zur Orientierung auf der Probe ist zudem eine Abbildung der Probenoberfläche über eine Weißlichtquelle in Kombination mit einer CMOS Kamera möglich. Die Steuerung der Messabläufe erfolgt über ein auf *LabVIEW* basierendes, selbst entwickeltes Computerprogramm.

### 3.3 Zeitaufgelöste Messtechniken

Die Entwicklung von Detektoren und Zählmodulen, welche Zeitaufösungen unterhalb der natürlichen Lebensdauer der QP-Zustände besitzen, erlaubt seit geraumer Zeit tiefgehende Einblicke in QP-Emissionsprozesse, sowie in die Eigenschaften des dabei emittierten Lichts. Die hierfür notwendigen Messaufbauten zur Bestimmung der Lebensdauer der Zustände, der statistischen Eigenschaften von Licht, der Ladungsträgerdynamik und der Ununterscheidbarkeit der einzelnen Photonen sollen im Folgenden erläutert werden. Für die Messaufbauten stehen zwei verschiedene Arten von Einzelphotonendetektoren (APD - engl. avalanche photo diode) im Geiger-Modus zur Verfügung. Das Modell  $\tau$ -*SPAD-50* mit einer Zeitauflösung von 350 ps und einer Quanteneffizienz von 30 % bei einer Wellenlänge von  $\lambda = 930$  nm, sowie die weniger effiziente *ID Quantique id100* mit einer Effizienz von unter 5 % bei  $\lambda = 930$  nm, welche jedoch eine Zeitauflösung von 40 ps erreicht. Als Zählmodul wird in allen Experimenten das *time-correlated single photon counting* (TCSPC) - Modul *PicoQuant - PicoHarp 300* mit einer minimalen Kanalbreite von 4 ps, bei 65536 Kanälen, verwendet. Die Zeitauflösung der Gesamtaufbauten wird somit über das Ansprechverhalten der APDs limitiert.

#### 3.3.1 Bestimmung der Lebensdauer von Zuständen

Zur Bestimmung der Lebensdauer eines Zustands ist zunächst ein gepulstes Anregungsschema erforderlich. In der  $\mu$ -PL Spektroskopie kann dies durch einen gepulst betriebenen Laser erfolgen, in der KL Spektroskopie erfolgt die gepulste Anregung durch die in Abb. 3.5 (a) schematisch dargestellte Beambanking-Einheit. Diese im Grundprinzip aus einem Plattenkondensator bestehende Austastvorrichtung ist derart in den Strahlengang eingebracht, dass ein angelegtes elektrisches Feld den Elektronenstrahl schnell ablenkt und damit blockiert. Für die zeitaufgelösten Messungen an der KL-Anlage steht hierfür ein ps-Beamblocker zur Verfügung, der mit einer Flankensteilheit von  $< 100$  ps den Elektronenstrahl austasten kann. Hierfür wird an die Offset-Elektrode eine Spannung von -5,1 V angelegt, wodurch durch eine Rechtecksspannung von 0 auf -5,1 V an der Pulselektrode der Strahl periodisch ausgeblendet und freigegeben werden kann. Die durch die Anre-

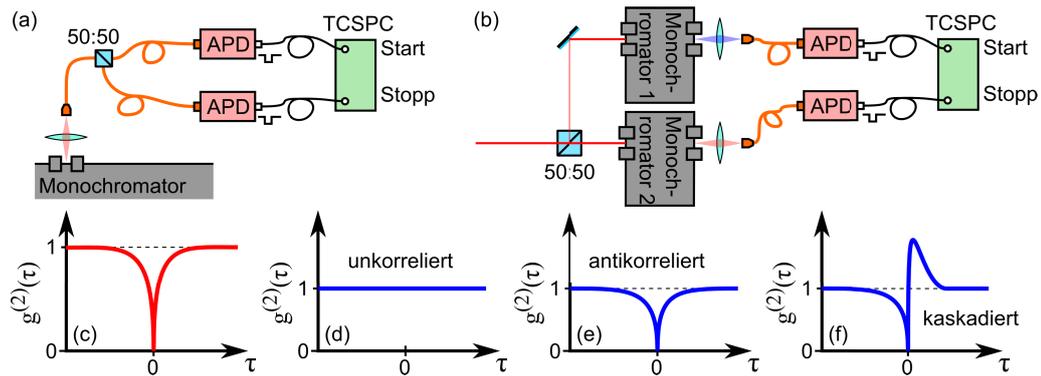


**Abbildung 3.5:** (a) Schematische Darstellung der zeitaufgelösten Setup-Erweiterung zur Messung der Lebensdauer eines QP-Zustandes mittels KL-Spektroskopie. Der Pulsgenerator in Kombination mit der ps-Beamblanking erzeugt die in (b, oben) dargestellte periodische, rechteckförmige Anregung. Nachdem ein stationäres Verhalten des QP-Zustands eingetreten ist, wird die Anregung abgeschaltet und der Zustand zerfällt entsprechend seiner Lebensdauer unter Emission eines Photons, welches von einer APD detektiert wird. Das Korrelationsmodul (TCSPC) setzt die Ankunftszeit der Photonen zu den Anregungspulsen in Beziehung, um das in (b, unten) dargestellte Koinzidenzdiagramm aufzuzeichnen.

gungspulse erzeugten Photonen können dann im Monochromator spektral selektiert und am Austrittspalt über ein Objektiv in einer glasfasergekoppelten APD in elektrische Impulse umgewandelt werden. Diese Impulse dienen dem TCSPC-Zählmodul als Stopp-Puls für die Zählleinheit (TAC-Modul - engl. *time-to-amplitude converter*), welche durch den Pulsgenerator gestartet wurde. Dadurch wird bei jedem ankommenden Photon die Zeitdifferenz zwischen der ansteigenden Flanke des Anregungspulses und der Ankunftszeit des Photons am Detektor gemessen. Bei den in Abb. 3.5 (b) in blau dargestellten Anregungspulsen bildet sich somit das in rot dargestellte Histogramm. Aus dessen abfallender Flanke, also nachdem der Anregungspuls vollständig ausgetastet wurde, kann die Lebensdauer des untersuchten Zustands ermittelt werden. Hierfür ist im Falle eines ungestörten Systems ein exponentieller Abfall mit der Lebensdauer des Zustands als Zeitkonstante zu erwarten (siehe Kap. 2.3.2). Liegen Prozesse vor, bei denen die erzeugten Ladungsträger noch in der Umgebung der QPe verweilen (z.B. durch flache, thermisch aktivierbare Störstellen), und nach der Emission des ersten Photons vom QP eingefangen werden können (sogenannte Wiedereinfangprozesse), kann der Abfall durch einen bi-exponentiellen Verlauf genähert werden. Die längere Zeitkonstante ist dabei den Wiedereinfangprozessen zuzuordnen. Aus der Messung der Lebensdauer kann somit, wie in Kap. 5.4 gezeigt, direkt der Einfluss einer nanophotonischen Struktur auf den Quantenemitter im Rahmen des Purcell-Effekts (siehe Kap. 2.4) nachgewiesen werden.

### 3.3.2 Auto- und Kreuzkorrelationsmessaufbau

Zur Untersuchung der Autokorrelation, also der zeitlichen Abfolge der Photonen, steht ein sogenannter Hanbury-Brown und Twiss Aufbau (HBT) zur Verfügung, welcher sche-



**Abbildung 3.6:** Schematische Darstellung eines Hanbury-Brown und Twiss Aufbaus zur Untersuchung der Photonen-Auto- (a) und Kreuzkorrelation (b) einer bzw. zweier Photonenquellen. Liegt ein Einzelphotonenemitter vor, so ergibt die Autokorrelation den in (c) dargestellten Kurvenverlauf. Bei der Kreuzkorrelation zweier Photonenquellen (z.B. X- und XX-Zustand eines QPes) kann man durch das Experiment zwischen unkorrelierten (d), antikorrelierten (e) und kaskadierten Prozessen unterscheiden.

matisch in Abb. 3.6 (a) dargestellt ist und mit dessen Hilfe die Photonenstatistik (siehe Kap. 2.3.1) des Emitters ermittelt werden kann [BT56]. Dieses Experiment kann sowohl unter Dauerstrichanregung (siehe Kap. 5.4), als auch unter gepulster Anregung (siehe Kap. 6.3.2) erfolgen. Der Einfachheit halber wird im Folgenden jedoch nur auf Dauerstrichanregung eingegangen. Nach der spektralen Selektion einer Emissionslinie im Monochromator wird das Licht in einen 50:50-Glasfaserstrahlteiler eingekoppelt, an dessen Ausgängen es von zwei APDs detektiert und in elektrische Signale umgewandelt wird. Das Zählmodul bestimmt dabei den zeitlichen Abstand mit dem die beiden APDs Photonen registrieren. Eine APD gibt dabei den Start-Impuls für die Zählleinheit, während die andere APD den Stopp-Impuls sendet. Werden nun zwei Photonen von einer Quelle emittiert, am 50:50-Strahlteiler getrennt und von den APDs detektiert, so erfolgen Start- und Stopp-Impuls gleichzeitig und es tritt eine Koinzidenz bei einem Zeitunterschied von  $\tau = 0$  auf. Für perfekte Einzelphotonenquellen, bei denen keine Mehrphotonenereignisse auftreten, ist die gleichzeitige Detektion von Photonen nicht möglich, wodurch sich ein Histogramm ohne Ereignisse bei  $\tau = 0$  wie in Abb. 3.6 (c) dargestellt, ausbildet. Der Wert von  $g^{(2)}(0)$  gibt somit die Qualität der Einzelphotonenquelle. Für  $g^{(2)}(0) < 0,5$  ist die Bedingung für einen Einzelphotonenemitter nach Gl. (2.19) erfüllt.

Zur Bildung der Kreuzkorrelation zwischen zwei verschiedenen Lichtquellen kann der Aufbau entsprechend Abb. 3.6 (b) modifiziert werden. Hierfür wird das von der Probe kommende Licht mit einem 50:50-Strahlteiler aufgespalten und jeweils durch einen Monochromator spektral selektiert. Dabei erfolgt die spektrale Selektion derart, dass am Ausgangspalt jeweils die miteinander zu korrelierenden Emissionslinien in die Glasfaser

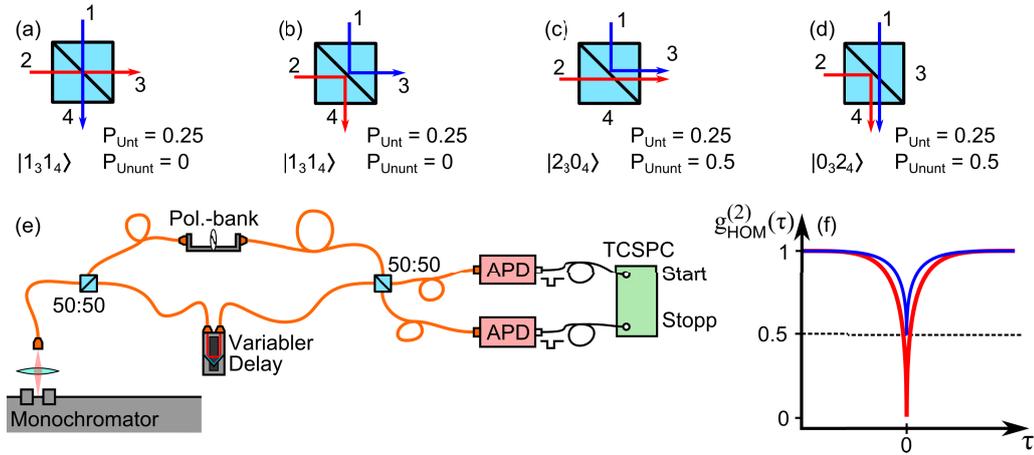
eingekoppelt und durch die APD detektiert werden. Eine der APDs dient dabei wiederum als Start-Impulsgeber, während die andere die Zählleinheit stoppt. Sind die beiden Lichtquellen völlig unkorreliert zueinander (z.B. das Licht von zwei verschiedenen QPen), ergibt sich das in Abb. 3.6 (d) dargestellte Bild. Die Zeitdifferenz zwischen Start- und Stoppimpuls ist auf allen Zeitskalen gleich wahrscheinlich. Werden Emissionslinien aus zwei sich gegenseitig ausschließenden Prozessen (z.B. die Emission eines  $X^-$  und eines  $X^+$  des gleichen QPes) miteinander korreliert, ergibt sich das in (e) dargestellte Histogramm. Es kann in einem QP kein gleichzeitiger Zerfall eines  $X^-$  und  $X^+$  erfolgen, da hierzu erst wieder Ladungsträger eingefangen werden müssten. Stehen die beiden Emissionslinien durch einen kaskadierten Prozess (z.B. XX-X Kaskade) zueinander in Beziehung, ergibt sich das in (f) dargestellte Histogramm (mit XX als Start-Impulsgeber). Auf die Emission eines XX-Photons (Start) folgt mit erhöhter Häufigkeit (für  $\tau > 0$ ) die Emission eines X-Photons (Stopp). Umgekehrt müssen nach der Emission eines X-Photons vom QP erst zwei Exzitonen eingefangen werden, bevor ein XX-Photon emittiert werden kann, wodurch sich hier eine Antikorrelation für  $\tau < 0$  ausbildet.

### 3.3.3 Hong-Ou-Mandel Experiment

Möchte man die Photonen einer Lichtquelle auf ihre Ununterscheidbarkeit entsprechend den Überlegungen in Kap. 2.3.3 hin überprüfen, so kann dies durch Einzel-Photonen-Interferenzversuche an einem 50:50-Strahlteiler erfolgen [Mic13, LWKR03]. Die vier Situationen, welche bei zwei an dem Strahlteilereingang gleichzeitig auftreffenden Photonen entstehen, sind in Abb. 3.7 (a) bis (d) schematisch mit den entsprechenden, auftretenden Wahrscheinlichkeiten für unterscheidbare Photonen  $P_{\text{Unt}}$  und ununterscheidbare Photonen  $P_{\text{Ununt}}$  dargestellt. Treffen zwei ununterscheidbare Photonen gleichzeitig auf den Strahlteilereingang 1 und 2, kann die Situation durch den Quantenzustand  $|1_1 1_2\rangle = a_1^\dagger a_2^\dagger |0\rangle$  beschrieben werden, wobei der Erzeugeroperator  $a_i^\dagger$  auf den Vakuumzustand  $|0\rangle$  wirkt. Die Wirkungsweise des Strahlteilers kann nun durch die unitäre Transformation

$$a_1^\dagger = \frac{1}{\sqrt{2}}(a_3^\dagger + a_4^\dagger) \quad \text{und} \quad a_2^\dagger = \frac{1}{\sqrt{2}}(a_3^\dagger - a_4^\dagger) \quad (3.8)$$

beschrieben werden, wobei mit 3 und 4 die beiden Strahlteilerausgänge benannt sind. Ausgehend vom Anfangszustand mit je einem Photon in jedem Strahlteilerarm ergibt sich für die beiden Ausgangszustände



**Abbildung 3.7:** (a)-(d) Schematische Darstellung der Möglichkeiten beim Auftreffen von zwei Photonen auf einen Strahlteiler in Abhängigkeit ihrer Ununterscheidbarkeit. (e) Schematische Darstellung des Hong-Ou-Mandel Versuchsaufbaus zur Bestimmung der Zwei-Photonen-Ununterscheidbarkeit. Das vom QP emittierte und spektral selektierte Licht wird über einen Strahlteiler aufgeteilt, bei gepulster Anregung über einen variablen Delay zeitlich versetzt und an einem zweiten Strahlteiler zur Interferenz gebracht. Durch ein eingebautes  $\lambda/2$ -Plättchen in einem Interferometerarm kann gezielt vollständige Unterscheidbarkeit zur Referenzmessung erzeugt werden. Der Wert bei  $\tau = 0$  des für Dauerstrich-Anregung schematisch dargestellten Histogramms (f), gibt an, inwieweit die Photonen ununterscheidbar (rot)  $g_{\text{HOM}}^{(2)}(0) = 0$  oder unterscheidbar (blau)  $g_{\text{HOM}}^{(2)}(0) = 0,5$  sind.

$$\begin{aligned}
 |1_1 1_2\rangle &= a_1^\dagger a_2^\dagger |0\rangle = \frac{1}{2} (a_3^\dagger + a_4^\dagger) (a_3^\dagger - a_4^\dagger) |0\rangle \\
 &= \frac{1}{2} ([a_3^\dagger]^2 - [a_4^\dagger]^2) |0\rangle \\
 &= \frac{1}{\sqrt{2}} (|2_3 0_4\rangle - |0_3 2_4\rangle).
 \end{aligned} \tag{3.9}$$

Dabei treten entsprechend der Berechnung in Gl. (3.9) für ununterscheidbare Photonen nur die in Abb. 3.7 (c) und (d) dargestellten Situationen auf.

Experimentell kann der Nachweis durch den in Abb. 3.7 (e) dargestellten, faserbasierten Hong-Ou-Mandel Versuchsaufbau erfolgen. Die spektral selektierten Photonen einer Emissionslinie werden an dem ersten 50:50-Strahlteiler in der polarisationserhaltenden Faser aufgespalten und in dem zweiten Strahlteiler zur Zwei-Photonen-Interferenz gebracht. Eine in einem der Glasfaserarme eingebrachte  $\lambda/2$ -Bank erlaubt es den Polarisationszustand der in diesem Arm geführten Photonen zu verändern, um für eine Vergleichsmessung gezielt Polarisations-Unterscheidbarkeit herbeiführen zu können (siehe Abb. 3.7 (f), blaue Linie). Weiterhin erlaubt eine variable Verzögerungsstrecke, sowie eine zusätzliche eingebaute Glasfaserstrecke definierter Länge, die bei gepulster Anregung emittierten Pho-

tonen zeitlich zum Überlapp zu bringen. Der an den zweiten Strahlteiler angeschlossene HBT-ähnliche Aufbau dient letztendlich dazu, die Zeitdifferenzen der ankommenden Photonen auflösen zu können, wobei bei vollkommener Ununterscheidbarkeit keine Ereignisse  $g_{\parallel}^{(2)}(0) = 0$  detektiert werden können (siehe Abb. 3.7 (f), rote Linie). Aus dem Vergleich der  $g_{\text{HOM}}^{(2)}(0)$ -Werte der ununterscheidbaren Photonen  $g_{\parallel}^{(2)}(\tau)$  mit den gezielt erzeugten, polarisationsunterscheidbaren Photonen  $g_{\perp}^{(2)}(\tau)$  kann letztendlich die Visibilität

$$V(\tau) = \frac{g_{\perp}^{(2)}(\tau) - g_{\parallel}^{(2)}(\tau)}{g_{\perp}^{(2)}(\tau)} \quad (3.10)$$

errechnet werden, welche den mittleren Überlapp der interferierenden Wellenfunktionen angibt.

## 4 Tieftemperaturlithographie

Die Fabrikation von Nanostrukturen mittels Elektronenstrahlolithographie (EBL) hat eine mehr als 50 Jahre zurückreichende Tradition [MS60, Pfe10] und ist aufgrund ihrer Flexibilität das ideale Werkzeug für die Realisierung von Prototypen und neuen Bauteilkonzepten. Durch die stetige Weiterentwicklung der Rasterelektronenmikroskope, der Lackchemie und der Prozessierungsverfahren können heutzutage Auflösungen von wenigen Nanometern [VCP<sup>+</sup>00, MZS<sup>+</sup>13], hohe Aspektverhältnisse [MDS13b] und sogar 3-dimensionale Strukturen [SOR<sup>+</sup>92] realisiert werden.

Die Entwicklung neuer Bauteilkonzepte, welche auf quantenoptischen Effekten [GT07] basieren, stellt die damit verbundenen Herstellungsverfahren jedoch vor immer neue Herausforderungen. Eines dieser quantenmechanischen Konzepte zur Realisierung einer sicheren Datenübertragung [IWK<sup>+</sup>09] basiert auf der Verwendung von QPen als Quelle einzelner ununterscheidbarer Photonen. Der weitere Fortschritt in diesem Forschungsbereich ist jedoch auf die Entwicklung von zuverlässigen, deterministischen Herstellungsverfahren [GGS<sup>+</sup>13] angewiesen, um die zufällige Natur der im Stranski-Krastanow-Wachstumsmodus hergestellten QPe [SK38] zu kompensieren. Die deterministische Fabrikation von quantenoptischen Bauteilen beruht somit, neben Ansätzen zur Positionierung von QPen [SAB<sup>+</sup>07, SSS<sup>+</sup>08, SSS<sup>+</sup>12, JAM<sup>+</sup>13, SSJF<sup>+</sup>11], in erster Linie auf einer vorhergehenden Charakterisierung und Auswahl geeigneter Quantenemitter. Diese meist optische Charakterisierung kann wiederum nur bei tiefen Temperaturen erfolgen, was bei einem Verzicht auf Markerstrukturen [NMB<sup>+</sup>13] eine Strukturierung bei diesen Temperaturen nach sich zieht. Ansätze, welche hierfür bereits von Dousse *et al.* [DLS<sup>+</sup>08] als optische in-situ Lithographie entwickelt wurden, weisen jedoch inhärente Einschränkungen auf. Der von Dousse *et al.* vorgestellte Ansatz zur deterministischen Bauteilherstellung beruht auf der Verwendung von Laserlicht zur optischen Charakterisierung und Strukturierung. Obwohl hier bereits eine spektrale und räumliche Anpassung zwischen einem Mikrosäulenresonator und einem QD gezeigt wurde, ist die erreichbare Strukturgröße durch die Anwendung von Laserlithographie beugungsbedingt auf etwa 1  $\mu\text{m}$  limitiert. Um dennoch eine Strukturierung mit der bestmöglichen Auflösung und Flexibilität durchführen zu können, ist eine tieftemperaturfähige EBL unumgänglich [GSK<sup>+</sup>14].

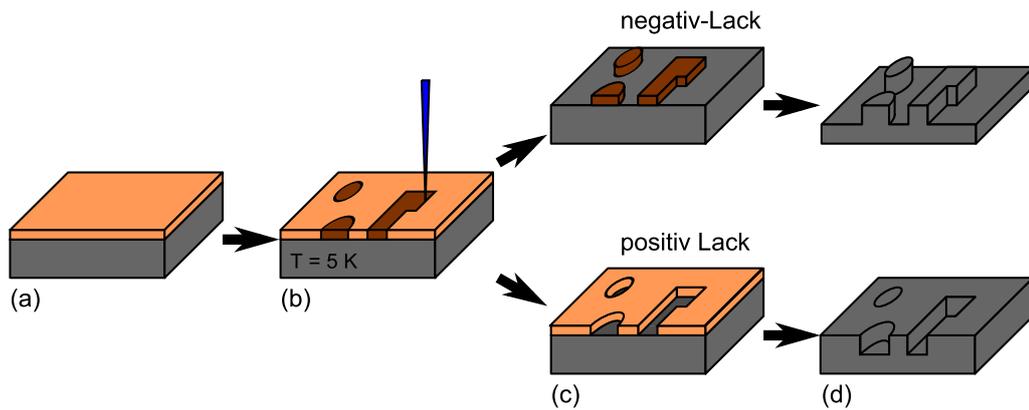
Ein kritischer Punkt des in dieser Arbeit vorgestellten Kathodolumineszenzlithographie-

Verfahrens (KLL), ist die Etablierung der EBL bei tiefen Temperaturen. Da in diesem Gebiet bisher keine Vorarbeiten geleistet wurden, beschäftigt sich Kap. 4.1 mit einer kurzen Einführung in die Grundlagen der EBL, woraufhin Kap. 4.2 die Eigenschaften der gängigsten, kommerziell erhältlichen Elektronenstrahllacke bei Temperaturen zwischen 5 bis 300 K behandelt. Das Ziel von Kap. 4.2 ist es, einen für den in Kap. 5.2.1 beschriebenen KLL-Prozess geeigneten Lack zu identifizieren und in seinen Eigenschaften zu charakterisieren. Um weiterhin zu demonstrieren, dass trotz der tiefen Temperaturen unter welchen die Belichtung stattfindet, eine Strukturierung mit höchster Auflösung und Flexibilität möglich ist, wird in Kap. 4.3 die Punktspreizfunktion ermittelt. Darauf folgend werden in Kap. 4.4 die Bestimmung von kritischen Belichtungsparametern, sowie Messungen zur Auflösungsgrenze vorgestellt.

## 4.1 Grundlagen der Elektronenstrahlithographie

Ziel der EBL ist es bei größtmöglicher Flexibilität mit nm-Genauigkeit ein beliebiges Muster in eine Lackschicht zu übertragen. Der Vorteil gegenüber optischer Lithographie oder Transmissionselektronenlithographie ist die Möglichkeit, die zu schreibenden Muster individuell gestalten, und vor allem ohne aufwendige Maskenherstellungsprozesse schnell an die notwendigen Anforderungen anpassen zu können. Dies ist vor allem in der hier angestrebten Anwendung der KLL (siehe Kap. 5.2.1) unverzichtbar, für welche eine deterministische Strukturierung, also eine gezielte Orts- und Geometrieangepassung, Kernpunkte des Prozesses sind.

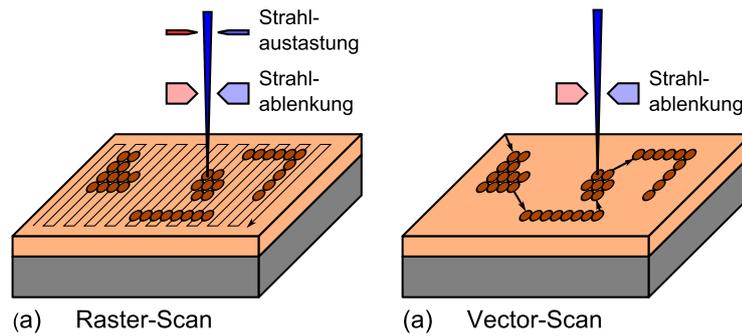
Der Tieftemperatur-Lithographie-Prozess erfolgt analog zu den bisher bekannten Prozessen bei Raumtemperatur und kann schematisch in Abb. 4.1 nachvollzogen werden. Nach dem Aufbringen eines elektronenstrahlsensitiven Lacks (a) kann durch ein gezieltes Abtasten der Lackoberfläche durch den Elektronenstrahl (b) bei einer Proben temperatur von 5 K im Lack eine lokale chemische Umwandlung hervorgerufen werden. Diese ist derart, dass dadurch eine veränderte Löslichkeit der belichteten Stellen in dem darauffolgenden Entwicklungsschritt (c) erfolgt. Hier muss jedoch zwischen einem positiv- und negativ-Lack unterschieden werden. Diese definieren sich durch ihre chemische Veränderung, hervorgerufen durch den Elektronenstrahl. Bei der Verwendung eines positiv-Lacks wird die Löslichkeit durch die Belichtung erhöht, wodurch diese Regionen in dem darauffolgenden Entwicklungsschritt (c) entfernt werden können. Bei negativ-Lacken ist die Löslichkeit der unbelichteten Stellen hoch und sinkt unter Belichtung, z.B. durch Vernetzung. Somit bleiben die Stellen, welche durch den Elektronenstrahl chemisch verändert wurden auf der Probenoberfläche zurück. Weitere Details zu den Lacken und ihrer chemi-



**Abbildung 4.1:** Schematische Darstellung des EBL-Prozesses. Nach dem Aufbringen einer Lackschicht (a) kann durch einen Elektronenstrahl der Lack strukturiert werden (b). Je nach Art des Lacks erfolgt eine Entfernung der belichteten oder unbelichteten Bereiche im Entwickler (c), welche im finalen Ätzschritt (d) in das darunterliegende Substrat übertragen werden können.

sehen Veränderung werden in Kap. 4.2 besprochen. Eine Anpassung des Schreibprozesses an die jeweilige Lacksorte ist dabei selbstverständlich. Ziel der Belichtung und Entwicklung ist letztendlich die Herstellung einer auf der Probe zurückbleibenden Maske, welche zum Übertrag in das darunterliegende Material durch den nachfolgenden Ätzschritt (d) verwendet werden kann.

Eine Unterscheidung muss jedoch auch bei dem verwendeten Schreibmodus getroffen werden. Hier stehen Modi nach dem Raster-Scan-Prinzip und nach dem Vektor-Scan-Prinzip zur Verfügung. Die beiden in Abb. 4.2 dargestellten Modi unterscheiden sich dabei in der Art und Weise, wie der Elektronenstrahl abgelenkt und mit der Strahlaustastung synchronisiert wird. Im Raster-Scan-Modus wird der Strahl ähnlich zur Aufnahme eines REM-Bildes über die Probe gerastert. Wenn eine Stelle erreicht wird, welche belichtet werden soll, wird der Strahl durch die Beambanking-Einheit freigegeben und der Lack an der entsprechenden Stelle chemisch verändert. Werden höhere Dosen benötigt, als sie bei einem Durchgang eingebracht werden können, sind mehrere Abrastervorgänge notwendig. Der Schreibprozess erfordert also eine perfekte Synchronisation zwischen Strahlablenkung und Strahlaustastung. Beim Vektor-Scan-Modus werden die zu belichtenden Stellen direkt durch den Elektronenstrahl angefahren, welcher nach ausreichendem Dosiseintrag weiterbewegt wird. Optional ist dabei die Strahlaustastung, welche beim Übergang zwischen den Strukturen den Strahl blockiert, um die Lackschicht im Zwischenbereich zu schützen. Diese Methode zeichnet sich durch einen höheren Durchsatz und durch geringere Anforderungen an die Synchronität zwischen den einzelnen Komponenten der Lithographieanlage aus. Allerdings wird für die Vektor-Scan-Methode eine flexiblere Strahlablenkung benötigt, was



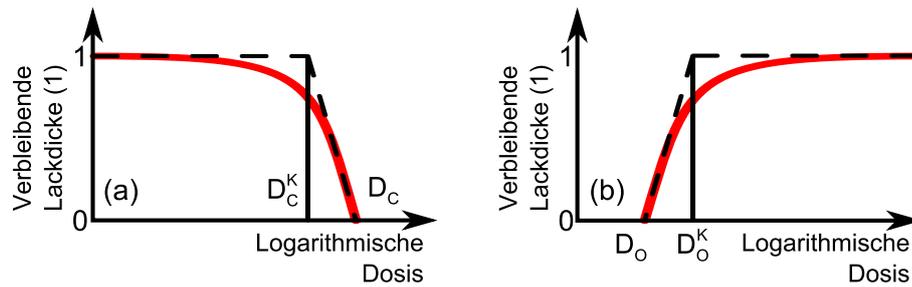
**Abbildung 4.2:** Schematische Darstellung zweier in der Elektronenstrahlolithographie üblicher Schreibmodi. (a) Beim Raster-Scan-Modus wird der Elektronenstrahl rasterförmig über die Oberfläche abgelenkt. Die Strahl-austastung sorgt dafür, dass an den zu belichtenden Stellen der Strahl freigegeben wird. (b) Bei dem Vektor-Scan-Modus werden durch den Elektronenstrahl nur die zu belichtenden Stellen angefahren ohne über die gesamte Probe zu scannen.

sich letztendlich auch in einem höheren Rechenaufwand und größeren Datensätzen widerspiegelt.

Bei dem hier etablierten Lithographie-System wird auf den Vektor-Scan-Modus zurückgegriffen. Dabei wird die Strahl-ablenkung durch die per Computer ansteuerbare Analog-Digital/Digital-Analog Wandlerkarte *NI PCI-6251* von *National Instruments* angesteuert. Diese ermöglicht es, die Position des Elektronenstrahls bei einer Genauigkeit von 16 bit zwischen  $\pm 10$  V mit einer Abtastrate von 1,25 MS/s zu variieren. Das zu schreibende Muster wird dabei in einzelne Bildpunkte konvertiert und an die programmierbare Wandlerkarte übergeben, welche dann über ihre interne Uhr den gesamten Lithographieprozess synchronisiert. Bei dem Schreibvorgang ist jedoch darauf zu achten, dass der Abstand der einzelnen Bildpunkte kleiner ist als die im Lack stattfindende Strahlaufweitung. Messungen zur in Kap. 4.3 vorgestellten Punktspreizfunktion ergeben dabei einen maximal möglichen Abstand von 50 nm, wobei bei den meisten Schreibvorgängen auf 10 nm zurückgegriffen wird. Die durch den Schreibvorgang und die Punktspreizfunktion vorgegebene maximale Auflösung des Lithographieprozesses wird in Kap. 4.4 ermittelt.

## 4.2 Tieftemperaturtauglichkeit von Elektronenstrahllacken

Bevor Lithographie bei tiefen Temperaturen durchgeführt werden kann, muss zunächst ein Elektronenstrahllack mit geeigneten Eigenschaften gefunden werden. Dabei sollen im Folgenden einige in der EBL gebräuchliche Begrifflichkeiten (Definitionen siehe: [GH09]) zur Charakterisierung von Lacken, sowie die für den KLL-Prozess notwendigen Bedingungen, eingeführt werden.



**Abbildung 4.3:** Kontrastkurven eines (a) positiv- und (b) negativ-Lacks. Mit  $D_C$  und  $D_O$  sind jeweils die Clearing und Onset Dosis gekennzeichnet, ab welcher der Lack im Entwickler löslich wird beziehungsweise nicht mehr löslich ist.  $D_C^K$  und  $D_O^K$  bezeichnen die für die Bestimmung des Kontrasts benötigten extrapolierten Dosen, ab welcher die vollständige Schichtdicke noch vorhanden bzw. wieder erreicht ist.

**Belichtungs- und Schwellendosis:** Die Belichtungs-dosis (kurz: Dosis - gebräuchlichste Einheit  $\mu\text{C}/\text{cm}^2$ ) gibt die Menge der pro Flächeneinheit eingebrachten Ladung und somit auch die Anzahl der eingebrachten Elektronen an. Mit der sogenannten Schwellendosis wird angegeben, ab welcher Bestrahlungsstärke ein positiv-Lack vollständig im Entwickler löslich ist und ein negativ-Lack beginnt unlöslich zu werden. In den meisten Fällen führt die Bestrahlung zur Ionisation der Lackmoleküle, welche dann zu einem Bindungsbruch (bei positiv-Lacken) oder bei ausreichender Nähe zweier funktioneller Gruppen zueinander zu einer Vernetzung (bei negativ-Lacken) führen kann. Die Energie, welche zum Bruch einer Bindung benötigt wird, liegt in der Größenordnung der Ionisierungsenergien der beteiligten Atome und ist bei organischen Lacken etwa 30 bis 40 eV [MC87]. Nimmt man an, dass ein 20 kV Elektron einen linearen Energietransfer von etwa 2 eV/nm [Hal82] in einem organischen Lack aufweist, wird pro Elektron im Mittel alle 17,5 nm eine Bindung aufgebrochen oder ein Radikal gebildet [LRM99]. Aus dem verwendeten Lack und dessen anfänglichem Vernetzungsgrad ergibt sich hieraus unter Vernachlässigung der zurückgestreuten Elektronen die pro Flächeneinheit benötigte Anzahl an Elektronen, um einen Bindungsbruch oder eine Vernetzung zu verursachen. Ist bei positiv-Lacken, wie in Abb. 4.3 (a) in einer schematischen Kontrastkurve dargestellt, eine genügend große Anzahl an Bindungsbrüchen erreicht, wird der Lack im Entwickler löslich und kann entfernt werden. Die Bestrahlungsdosis, ab welcher ein positiv-Lack vollständig entfernt werden kann, ist in der Kontrastkurve mit  $D_C$  gekennzeichnet und wird ‚Clearing Dose‘ genannt. Bei negativ-Lacken (siehe Abb. 4.3 (b)) führt die verstärkte Bildung von Radikalen zu einer Vernetzung der Moleküle untereinander, wodurch sich ab einer ausreichend hohen Belichtungs-dosis ein im Entwickler unlösliches Netzwerk ausbildet. Die Dosis, ab welcher das gebildete Netzwerk im Entwickler nicht mehr löslich ist, nennt man ‚Onset Dose‘  $D_O$ . Mit diesen beiden Dosen ist auch die Sensitivität eines Lackes gekennzeichnet, wobei eine

hohe Dosis, ab welcher eine Löslichkeitsänderung eintritt, für eine niedrige Sensitivität des Lacks spricht.

**Kontrast:** Als Kontrast  $\gamma$  bezeichnet man die Steigung der verbleibenden Lackdicke in Abhängigkeit der logarithmierten eingebrachten Dosis  $\gamma_C = \frac{1}{\log(D_C/D_C^K)}$  (bzw.  $\gamma_O = \frac{-1}{\log(D_O/D_O^K)}$  für negativ-Lacke).  $D_C^K$  ( $D_O^K$ ) bezeichnet dabei die in der Kontrastkurve (siehe Abb. 4.3) linear extrapolierte Dosis, ab welcher die vollständige Schichtdicke des positiv-Lacks (negativ-Lacks) noch vorhanden (wieder erreicht) ist. Der Kontrast gibt dadurch an, mit welcher maximalen Flankensteilheit ein Muster im Lack definiert werden kann und ist neben der Sensitivität eines der meistgenutzten Kriterien bei der Charakterisierung von Lacken.

**Auflösung:** Die Auflösung gibt an, mit welcher Genauigkeit nebeneinanderliegende Strukturen in einer Lackschicht definiert werden können und ist neben der Lackcharakteristik stark von der Elektronenstrahlqualität und den Entwicklereigenschaften abhängig. Hiermit verbunden ist der sogenannte ‚Proximity Effect‘ (siehe Kap. 4.3), welcher die Rückstreuung von Elektronen aus dem Substrat zurück in die Lackschicht beschreibt und wodurch die maximal mögliche Auflösung limitiert ist [MWZ<sup>+</sup>14]. Um den Effekt der Rückstreuung zu reduzieren sind dünne Lackschichten und ein Lack mit hohem Kontrast wünschenswert. Zur Bestimmung der Auflösung eines Lacks, werden eng nebeneinanderliegende Linien oder L-förmige Strukturen geschrieben, wobei die Auflösung als der minimal mögliche Abstand zwischen zwei Linien, welche noch vollständig entwickelt werden können, definiert ist.

**Ätzselektivität:** Für die Fertigung von Bauelementen ist weiterhin die sogenannte Ätzselektivität ein wichtiges Kriterium. Sie gibt das Verhältnis der Ätzraten zwischen Lack und dem darunterliegenden Substrat an und ist ein Maß für die chemische Stabilität des Lacks. Da die Ätzratenverhältnisse stark von den verwendeten Ätzparametern abhängen, ist an dieser Stelle keine generelle Aussage über den Lack zu treffen. Die hier ermittelten Ätzselektivitäten beziehen sich daher auf den in dieser Arbeit verwendeten und in Kap. 5.2.1 vorgestellten Ätzprozess und sind unter diesen Bedingungen miteinander vergleichbar. Generell ist jedoch festzuhalten, dass eine möglichst hohe Ätzselektivität wünschenswert ist, um bei einer gegebenen Lackdicke eine ausreichende Strukturtiefe erreichen zu können.

Zusätzlich zu den oben genannten Charakterisierungsmerkmalen ergeben sich durch den

KLL-Prozess (siehe Kap. 5) weitere Anforderungen an den verwendeten Elektronenstrahllack. Als trivial, aber absolut notwendig ist die Tieftemperaturtauglichkeit. Es darf weder beim Abkühlen der Probe auf 5 K noch bei der anschließenden Erwärmung auf Raumtemperatur zum Abplatzen oder zu Rissbildung in der aufgeschleuderten Lackschicht kommen. Zudem ist für die deterministische Fabrikation von QP-Bauteilen ein Charakterisierungsschritt auf der belackten Probe erforderlich. Durch diesen Schritt wird bereits vor der Strukturierung eine nicht unerhebliche Dosis von mehreren  $\text{mC}/\text{cm}^2$  in den Lack eingebracht, welche die Schwellendosis der meisten kommerziell eingesetzten Lacke um mehr als eine Größenordnung überschreitet. Der gesuchte Lack muss also eine äußerst hohe Onset oder Clearing Dose aufweisen. Als optionales Kriterium ist für eine 3D-Strukturierung von Mikrolinsen (siehe Kap. 6.2.2) eine hohe Ätzselektivität, kombiniert mit einem niedrigen Kontrast hilfreich. Der niedrige Kontrast ermöglicht eine gezielte Kontrolle der nach dem Entwickeln verbleibenden Lackhöhe und die hohe Ätzselektivität ermöglicht den direkten Transfer der geschriebenen Strukturen in das darunterliegende Substrat. Gegensätzliche Anforderungen stellt die Herstellung von Bauteilen mit geringen Strukturgrößen, wie z. B. bei Ringresonatoren [DRS<sup>+</sup>11]. Diese erfordern eine hohe Auflösung, welche durch einen Lack mit hohem Kontrast, kombiniert mit einer geringen Lackdicke erreichbar ist. Letzteres sind Eigenschaften, welche vor allem durch den industriellen Einsatz vorangetrieben werden. Dies macht eine Untersuchung der bereits etablierten Elektronenstrahllacke attraktiv, was insbesondere durch die getesteten Standardprozesse in der Entwicklung und die Erfahrung in der weiteren Probenprozessierung verstärkt wird.

#### 4.2.1 Grundlagen der Elektronenstrahllacke

Die Entwicklung der letzten 50 Jahre hat eine Vielzahl an unterschiedlichen Elektronenstrahllacken für die unterschiedlichsten Anwendungen hervorgebracht [GH09]. Im Rahmen dieser Arbeit werden jedoch nur die gängigsten verwendeten Lackarten auf ihre Tieftemperaturtauglichkeit und ihre Tieftemperatureigenschaften getestet.

##### Polymethylmethacrylat

Polymethylmethacrylat (PMMA), auch Plexiglas genannt, ist der in der Industrie aufgrund seiner hohen Auflösung von unter 10 nm [VCP<sup>+</sup>00, YHA01], sowie seiner guten Haftung auf vielen Oberflächen am weitesten verbreitete und am besten untersuchte Elektronenstrahllack. Dieser organische Lack besteht aus der in Abb. 4.4 (a) dargestellten konstitutionellen Wiederholeinheit  $\text{C}_5\text{H}_8\text{O}_2$  und ist für die EBL in den verschiedensten Kettenlängen verfügbar. Dabei wird die Kettenlänge indirekt über das molare Gewicht angegeben und liegt bei 950K PMMA, dessen molare Masse 950.000 g/mol beträgt, bei ca. 9.500 Wiederhole-



### Hydrogensilsesquioxan

Bei Hydrogensilsesquioxan (HSQ) handelt es sich um einen anorganischen negativ-Lack mit dem Auflösungen von unter 10 nm [YB07], bei hohem Kontrast [HGK03] erreicht werden. Dessen käfigartige Struktur ist in Abb. 4.4 (b) schematisch dargestellt. Für die vorliegende Arbeit wird HSQ gelöst in MIBK, vertrieben durch *Dow Corning* unter dem Namen XR 1541-002, verwendet. Der Lack kann ebenso wie PMMA durch Rotationsbeschichtung auf die Probenoberfläche mit Dicken zwischen 30 und 180 nm aufgebracht werden. Durch Belichtung mit Elektronen werden die Si-H-Bindungen des Monomers aufgebrochen, welche sich dann durch die intrinsische Feuchtigkeit in der Probe als Katalysator mit anderen Monomeren zu einer gitterartigen Struktur verbinden [GH09]. Durch 30 sekundiges Eintauchen in den auf NaOH basierten Entwickler ma-D 331 von *microresist technology* und einer 300 sekundigen Reinigung in deionisiertem Wasser lassen sich dann die unverketteten Monomere herauslösen [KCG<sup>+</sup>09]. Ein zusätzlicher Vorteil des Lacks ist die hohe Stabilität des Materials, wodurch der verbleibende Lack im Anschluss als Ätzmaske verwendet werden kann.

Untersuchungen von Sidorkin *et al.* [SvdDS08] zur Belichtung bei verschiedenen Temperaturen haben im Vorfeld bereits gezeigt, dass eine Temperaturerniedrigung von 90 °C auf -20 °C eine Erhöhung der Schwellendosis  $D_S$  von 63  $\mu\text{C}/\text{cm}^2$  auf 211  $\mu\text{C}/\text{cm}^2$  zur Folge hat. Weiterhin konnte sowohl durch Kim *et al.* [KCG<sup>+</sup>09], als auch durch Namatsu *et al.* [Nam98] festgestellt werden, dass bei der Verwendung von basischen Entwicklern eine deutliche Verringerung der Sensitivität erreicht werden kann. Diese beiden Eigenschaften und die Härte des invertierten Lacks machen HSQ zu einem aussichtsreichen Kandidaten für die Untersuchung seiner Tieftemperatureigenschaften zur Anwendung in der KLL.

### Kresol mit Melamin als Vernetzer

Der dritte untersuchte Lack AZ-nLOF 2070, vertrieben durch *MicroChemicals*, basiert auf einem Kresol-Harz, welches sich durch Belichtung eines Aktivators chemisch vernetzt [Pam85]. Die Konstitutionsisomere des Kresol-Moleküls, sowie das Melamin-Molekül, welches als Aktivator dient, sind in Abb. 4.4 (c) schematisch dargestellt. Dieser eigentlich für die UV-Belichtung hergestellte Lack, welcher dennoch in der EBL Verwendung findet, benötigt für seine vollständige Vernetzung in der Regel noch einen Ausbackschritt nach der Belichtung. Um jedoch die notwendige hohe Schwellendosis zu erreichen, wird dieser Backschritt nach der Entwicklung gezielt ausgespart, wodurch die Vernetzung ausschließlich durch die eingebrachten Elektronen erfolgen muss. Die Entwicklung findet durch das Eintauchen für 20 s in den Entwickler AZ-726 MIF (*MicroChemicals*), basierend auf Tetra-

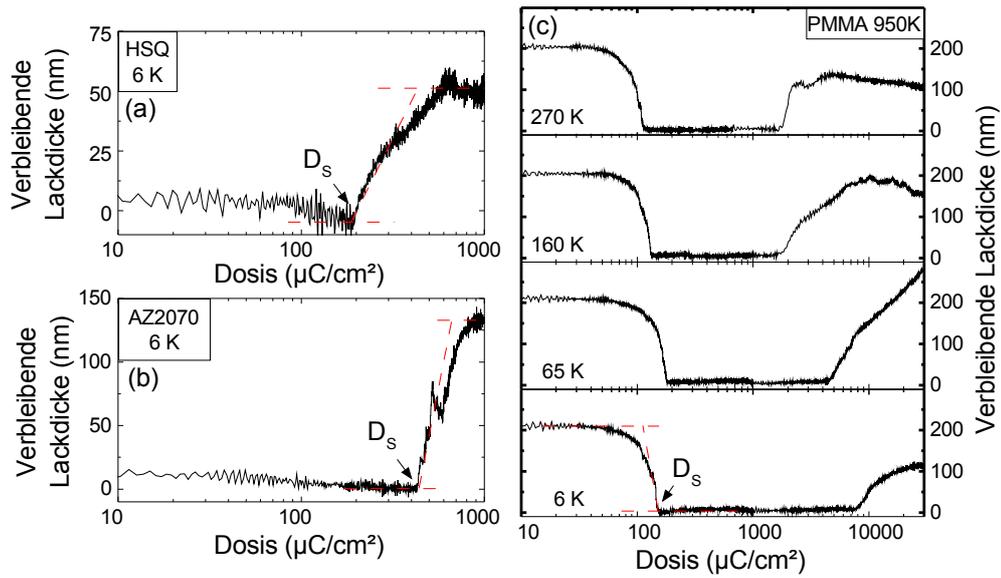
methyllumoniumhydroxid (TMAH) und einer anschließenden Reinigung in deionisiertem Wasser für 300 s statt.

#### 4.2.2 Temperaturabhängige Kontrasteigenschaften

Um festzustellen, wie sich die Lackeigenschaften in Abhängigkeit der Temperatur während der Belichtung verhalten, werden alle zu untersuchenden Lacke auf GaAs:Si Substrat aufgeschleudert. Hierbei sind Schichtdicken von 215 nm für 950K PMMA, 65 nm für HSQ und 200 nm für AZ-2070 erzeugt worden. Um Reste des Lösungsmittels zu entfernen, wird im Anschluss ein vom Hersteller empfohlener Ausbackschritt durchgeführt, bei dem PMMA für 2 min auf 180 °C und AZ-2070 für 1 min auf 110 °C geheizt werden. Dies wird zusätzlich durch eine 12-stündige Lagerung aller Proben im Hochvakuum der Kathodolumineszenzanlage (KL) direkt vor der Prozessierung unterstützt. Ein langsamer Abkühlvorgang von ca. 3 K/min von Raumtemperatur auf 5 K soll weiterhin dafür Sorge tragen, dass in den Lackschichten weder Risse entstehen, noch ein Abplatzen auftritt. Ebenso sorgfältig wird bei der Erwärmung der Probe auf Raumtemperatur vorgegangen, bei welcher nur die thermische Ankopplung des Kryostaten an die Umgebung zum Aufwärmen der Probe beiträgt. Bei keiner der untersuchten Lacksorten konnte eine Beeinträchtigung der Oberfläche festgestellt werden. Selbst bei einer schnellen Abkühlung mit ca. 10 K/min und aktivem Aufheizen mit ca. 30 K/min sind in weiteren Versuchen bei 950K PMMA keine Beschädigungen aufgetreten.

Um die Kontrastkurven der Lacke zu ermitteln, werden bei einer Beschleunigungsspannung von 10 kV und einem Strahlstrom von 0,5 nA jeweils 75 µm lange und 15 µm breite Dosisgradienten geschrieben. Die Dosis wird dabei für alle Lacksorten über die lange Achse von jeweils 0 bis 300 µC/cm<sup>2</sup> von 0 bis 1000 µC/cm<sup>2</sup>, sowie von 0 bis 10 mC/cm<sup>2</sup> linear erhöht. Zusätzlich wird für PMMA ein weiterer Streifen bei einer Dosis von 0 bis 30 mC/cm<sup>2</sup> hinzugefügt, um auch den negativ-Bereich des Lacks experimentell erfassen zu können.

Nach dem Aufwärmen und Entwickeln mit den unter Kap. 4.2.1 beschriebenen Entwicklern, können die so erhaltenen Kontrastkurven mit dem Profilometer *Ambios XP2*, welches in der Lage ist Höhenänderungen von unter 5 nm aufzulösen, extrahiert werden. Die so erhaltenen Daten sind für ausgewählte Temperaturen in Abb. 4.5 (a) bis (c) dargestellt. Die Kontrast-Werte, sowie die Onset und Clearing Dosen können nach der in Kap. 4.2.1 beschriebenen Methode mit Hilfe der rot eingezeichneten Hilfslinien ermittelt werden und sind in Tab. 4.1 zusammengefasst. Die Kontrastkurven für HSQ (a) und AZ-2070 (b) weisen dabei die erwartete Charakteristik eines negativ-Lacks auf. Bei den in Abb. 4.5 (c) für verschiedene Temperaturen dargestellten Kontrastkurven von PMMA muss zwischen dem positiven und negativen Bereich des Umkehrlackes unterschieden werden. Der positive



**Abbildung 4.5:** Kontrastkurven bei 6 K für die untersuchten Lacke (a) HSQ und (b) AZ-2070. Die beiden negativ-Lacke HSQ und AZ-2070 weisen eine Onset-Dosis von mehreren  $100 \mu\text{C}/\text{cm}^2$  auf. Bei den Kontrastkurven von PMMA, welche in (c) für ausgewählte Temperaturen dargestellt sind, erkennt man die Charakteristik eines positiv-Lacks, welche sich bei hohen Dosen in die eines negativ-Lacks umkehren. Daher bezeichnet man PMMA auch als Umkehrlack. Die roten Hilfslinien dienen zur Ermittlung der Schwellendosen und des Kontrastes.

Lack	Charakteristik	$D_S$ ( $\mu\text{C}/\text{cm}^2$ )	$\gamma$
PMMA-P	positiv	$156 \pm 11$	$6,9 \pm 0,2$
PMMA-N	negativ	$(7,85 \pm 0,25) \cdot 10^3$	-
HSQ	negativ	$199 \pm 11$	$2,6 \pm 0,2$
AZ-2070	negativ	$459 \pm 27$	$6,2 \pm 0,4$

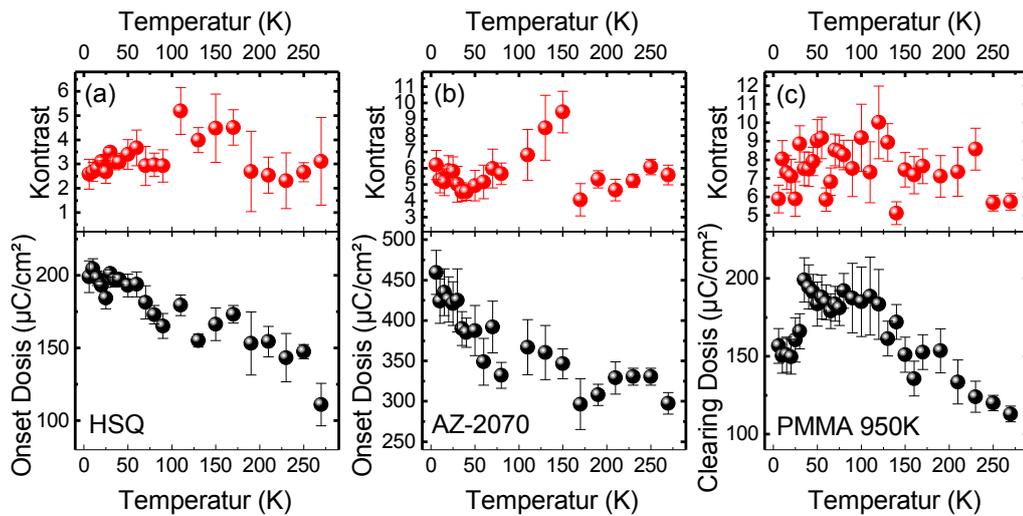
**Tabelle 4.1:** Schwellendosen  $D_S$ , sowie Kontraste der untersuchten Lacke unter Belichtung bei einer Lacktemperatur von 5 K.

Bereich ist der in der Industrie genutzte Arbeitsbereich und ist durch seine hohe Sensitivität und seinen hohen Kontrast gekennzeichnet. Setzt man PMMA jedoch deutlich höheren Bestrahlungsdosen aus, so ist zu erkennen, dass sich die Charakteristik in die eines negativ-Lacks umkehrt. Die hierfür notwendige Dosis ist dabei um mehr als eine Größenordnung höher als bei seiner positiven Verwendung. Problematisch ist die Extraktion des Kontrasts. Da die Schichtdicke für  $D \rightarrow \infty$  durch die unterschiedlichen temperaturabhängigen Kurvenverläufe nicht eindeutig festgestellt werden kann, ist eine exakte Bestimmung des Kontrasts nicht möglich. Die Ursachen hierfür, sowie eine weitere Analyse der Daten für invertiertes PMMA, sind in Kap. 4.2.3 näher erläutert.

Die weiteren Untersuchungen in diesem Kapitel beziehen sich nur noch auf HSQ, AZ-2070 und den positiven Bereich von PMMA. Für diese Lacke ist in Abb. 4.6 jeweils die Schwellendosis (schwarz) und der dazugehörige Kontrast (rot) in Abhängigkeit der Temperatur aufgetragen. Bei allen Lacken ist der Trend festzustellen, dass die Schwellendosis mit zunehmender Temperatur abnimmt. Dies ist damit zu begründen, dass bei steigender Temperatur eine Zunahme der Mobilität der durch den Elektronenstrahl erzeugten Radikale eintritt [HS82]. Die dadurch erhöhte Reaktivität im Material sorgt für eine schnellere Vernetzung bzw. Spaltung der Moleküle, wodurch der Endzustand bereits bei geringeren Dosen erreicht wird.

Für PMMA bei Temperaturen unter 100 K tritt jedoch eine Abweichung von diesem Verhalten auf. Steigt die Temperatur beginnend bei 6 K, tritt in der Clearing Dosis bei 30 K ein Sprung und eine anschließende Stagnation bis 100 K ein. Dieses Verhalten ist eng verbunden mit der Sublimationstemperatur von Kohlenmonoxid bei 30 K, unter einem Anlagendruck von  $10^{-6}$  mbar (siehe Tab. 4.2). Zieht man die Sublimation von CO in Betracht, kann der von Choi *et al.* [Cho88] vorgeschlagene Reaktionsmechanismus zur Kettenspaltung von PMMA entsprechend Abb. 4.7 modifiziert werden. Beim ursprünglichen Reaktionsmechanismus (a) führt die Bestrahlung von PMMA zur Erzeugung eines  $\text{COOCH}_3^\bullet$ -Radikals, sowie zur Radikalisierung der PMMA-Hauptkette. Das Radikal in der Hauptkette ist ein propagierendes Radikal und somit hauptsächlich für den Kettenbruch verantwortlich. Der Bruch kann allerdings dadurch gestoppt werden, dass das gebildete  $\text{COOCH}_3^\bullet$  eine Wasserstoff-Abspaltung an dem Hauptkettenradikal durchführt und somit beide Radikale absättigt. Zerfällt jedoch  $\text{COOCH}_3^\bullet$  in CO und  $\text{OCH}_3^\bullet$ , so beeinflusst im weiteren Verlauf die Sublimation von CO die Möglichkeiten zur Wasserstoffabspaltung (b). Sublimiert CO, kann das verbleibende  $\text{OCH}_3^\bullet$  oder ein anderes Radikal die Wasserstoffabspaltung durchführen, was ebenso zum Erhalt der Hauptkette führt. Verbleibt jedoch CO im Lack, so schirmt dieses andere Radikale von der Hauptkette räumlich ab und ein Kettenbruch unter Beibehalt eines propagierenden Radikals wird wahrscheinlicher. Obwohl alle Reaktionspfade unter Belichtung stattfinden können, ergibt sich durch Pfad (b) ein durch die Sublimation von CO ausgelöster, temperaturabhängiger Anstieg der Clearing Dosis.

Abschließend lässt sich feststellen, dass HSQ, AZ-2070 und PMMA in ihren positiven Bereichen zwar für die Tieftemperaturlithographie geeignet sind, allerdings gilt das nicht für die Anwendung zur KLL. Die geringen Schwellendosen erlauben es nicht, die benötigte Vorcharakterisierung durchzuführen, bei welcher einige  $\text{mC}/\text{cm}^2$  an Dosis in den Lack ein-

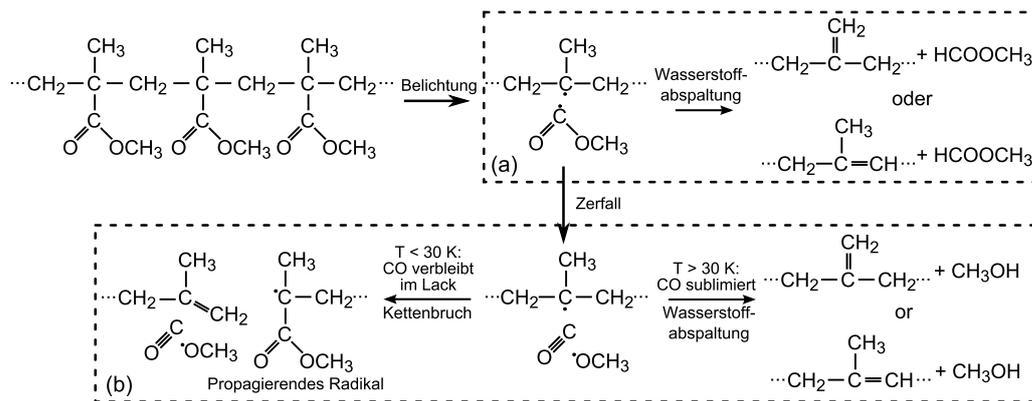


**Abbildung 4.6:** Temperaturabhängige Schwellendosen (schwarz) und der dazugehörige Kontrast (rot) von (a) HSQ, (b) AZ-2070 und (c) PMMA 950K. Bei allen Lacken ist mit steigender Temperatur eine Verringerung der Schwellendosis zu erkennen. Einzig PMMA 950K zeigt bei einer Temperatur um die 30 K eine Abweichung von diesem Verhalten. Der zu den Lacken jeweils ermittelte Kontrast erfährt im Rahmen der Messgenauigkeit keine signifikante, temperaturabhängige Veränderung.

gebracht werden. Einzig PMMA in seiner negativen Charakteristik weist eine ausreichend hohe Schwellendosis auf, um durch eine Vorcharakterisierung keine vollständige Überbelichtung zu erfahren. Den Eigenschaften von invertierten PMMA ist nun das folgende Teilkapitel gewidmet.

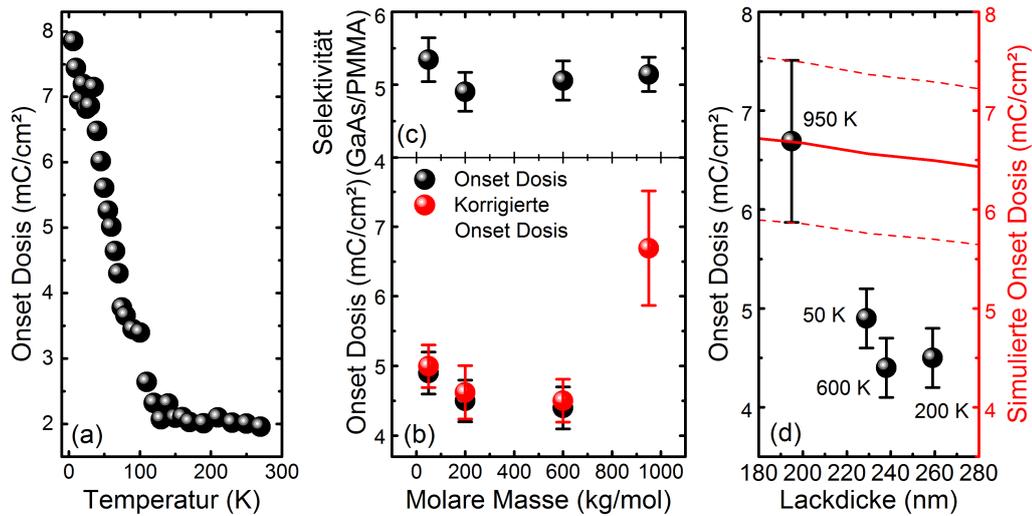
### 4.2.3 Eigenschaften von invertiertem PMMA

Es kann bereits anhand der in Abb. 4.5 dargestellten Kontrastkurven festgestellt werden, dass für die Invertierung von PMMA eine etwa 10 bis 50-fach höhere Schwellendosis benötigt wird als für die Belichtung von PMMA in seinem positiv-Bereich [CLB07]. Dies ist insofern von großem Interesse, da hiermit die für den KLL-Prozess notwendige Voraussetzung einer hohen Dosisverträglichkeit erfüllt werden kann. Die extrahierten Onset Dosen sind in Abb. 4.8 (a) dargestellt. Es ist zu erkennen, dass die Invertierung eine deutlich stärkere Temperaturabhängigkeit aufweist als die Schwellendosen aller anderen untersuchten Lacke. Bei einer rein chemischen Reaktion wäre hier eine kontinuierliche Abnahme bei einer Erhöhung der Temperatur, wie es bei den Lacken, dargestellt in Abb. 4.6, der Fall ist, zu erwarten. Dies in Kombination mit der Sättigung der Onset Dosis bei Temperaturen über 125 K lässt vermuten, dass andere als die in Kap. 4.2.1 vorgestellten Mechanismen zur Invertierung von PMMA führen.



**Abbildung 4.7:** Der nach Choi *et al.* [Cho88] abgeänderte Reaktionspfad, der zum Kettenbruch von PMMA führt: Belichtung führt zur Erzeugung von  $\text{COOCH}_3^\bullet$  und dem PMMA-Kettenradikal. Durch eine Wasserstoffabspaltung (a) kann diese Radikalisierung wieder rückgängig gemacht werden, wodurch die Hauptkette erhalten bleibt. Beim Zerfall (b) von  $\text{COOCH}_3^\bullet$  kann je nach Temperatur das entstandene CO die Wasserstoffabspaltung räumlich behindern, was zu einem bevorzugtem Bruch der Hauptkette führt.

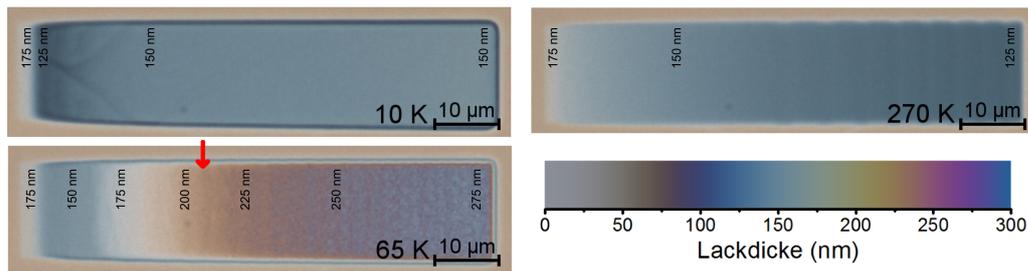
Zusätzliche Unterstützung findet diese These durch eine Betrachtung der in Abb. 4.8 (b) dargestellten Abhängigkeit der Onset Dosis von den molaren Massen der aufgeschleuderten PMMA-Moleküle. Für diese Untersuchung wurde PMMA mit molaren Massen von 50.000 g/mol (50K), 200.000 g/mol (200K), 600.000 g/mol (600K) und 950.000 g/mol (950K) mit Schichtdicken von 229 nm, 259 nm, 238 nm und 195 nm mit dem in Kap. 4.2.1 vorgestellten Verfahren auf GaAs:Si-Substrat aufgebracht und mit Dosisgradienten bei 5 K beschrieben. Die verschiedenen Schichtdicken ergeben sich dabei aus den unterschiedlichen Viskositäten der gelösten Lacke und haben während der Belichtung zur Folge, dass tieferliegende Lackschichten mit Elektronen wechselwirken, welche bereits einen Teil ihrer Energie abgegeben haben. Aufgrund des erhöhten linearen Energietransfers von Elektronen mit geringerer Energie, wird somit eine größere Energiemenge pro Volumen in den Lack eingebracht, und eine molekulare Veränderung tritt bereits bei geringeren Belichtungs-dosen ein (siehe zu diesem Thema auch Kap. 4.4). Möchte man den Einfluss der Lackdicke auf die Onset Dosis korrigieren, kann dies anhand des in Abb. 4.14 (b) dargestellten Verlaufs getan werden, welcher aus dem Energieeintrag, berechnet durch eine Monte-Carlo Simulation, ermittelt wurde. Der aus der Simulation errechnete Verlauf ist, normiert auf die Dosis von PMMA 950K, in Abb. 4.8 (d) in rot dargestellt. Hierüber können die in Abb. 4.8 (b), in schwarz dargestellten, gemessenen Onset Dosen auf die in rot dargestellten Onset Dosen einer Lackdicke von 200 nm korrigiert werden. Zu erkennen ist, dass der Einfluss der Lackdicke nur minimal ist und den Verlauf der Onset Dosis in Abhängigkeit der molaren Masse kaum beeinflusst. Nimmt man an, dass eine rein chemische Verkettung



**Abbildung 4.8:** (a) Temperaturabhängige Onset Dosis von invertiertem PMMA 950K. (b) Gemessene (schwarz) und die nach (d) schichtdickenkorrigierte (rot) Onset Dosis in Abhängigkeit der molaren Masse, sowie die dazugehörige Ätzselektivität (c) des stark invertierten Lackes. (d) Die für verschiedene Schichtdicken und molare Massen aufgetragene Onset Dosis (schwarz) in Abhängigkeit der Schichtdicken des untersuchten Lackes. In rot ist die Monte-Carlo Simulation zur Schichtdickenabhängigkeit der Onset Dosis aufgetragen, anhand welcher (b) auf eine Schichtdicke von 200 nm normiert wurde.

der PMMA-Moleküle untereinander die Ursache für die unterschiedlichen Onset Dosen ist, müsste PMMA 950K aufgrund seiner längeren Anfangskettenlänge schneller, also bei niedrigeren Dosen, vernetzen. Es ist jedoch kein klarer Trend in den Daten zu erkennen, was ein Hinweis auf die Abhängigkeit von anderen, nicht näher bekannten Mechanismen ist. Weiterhin wurde für die verschiedenen Kettenlängen die Ätzselektivität in Abb. 4.8 (c) zwischen invertiertem PMMA und dem GaAs-Substrat mittels plasma-unterstütztem reaktiven Ionenätzen (ICP-RIE - *inductively-coupled plasma reactive ion etching*) bei den in Kap. 5.2.1 beschriebenen Parametern ermittelt, welche als Maß für die chemische Stabilität des Materials gilt. Auch hier ist keine signifikante Abhängigkeit festzustellen, was ebenfalls auf einen Mechanismus schließen lässt, welcher von der Anfangsvernetzung unabhängig ist und ein für Lacke atypisches Verhalten darstellt [YCSA08].

Weiteren Aufschluss über den Belichtungsmechanismus gibt die nähere Untersuchung der Kontrastkurven des stark invertierten Lackes (siehe auch Abb. 4.5 (c)). Diese zeigen eine von der Temperatur abhängige Irregularität in der verbleibenden Lackdicke, welche bei hohen Dosen und Temperaturen zwischen 50 K und 100 K sogar die anfänglich aufgeschleuderte Dicke übersteigt. Um zunächst ausschließen zu können, dass ein durch den Entwickler verursachtes Anschwellen des Lackes aufgetreten ist [MCK03], können die in Abb. 4.9 dargestellten Weißlichtbilder der unentwickelten Gradienten herangezogen werden. Anhand

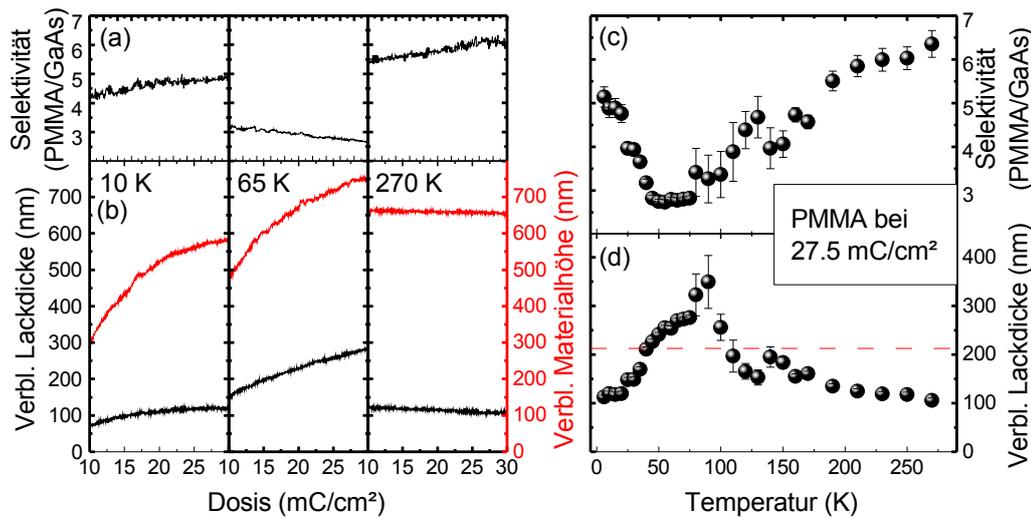


**Abbildung 4.9:** Weißlichtbild dreier bei verschiedenen Temperaturen geschriebener und nicht entwickelter Dosisgradienten. Die Dosis ist dabei von  $0 \text{ mC/cm}^2$  (links) bis  $30 \text{ mC/cm}^2$  (rechts) linear variiert worden. Die Skala gibt die Farbe an, welche durch Interferenz des Weißlichtes an verschiedenen Schichtdicken von PMMA entsteht. Der rote Pfeil kennzeichnet den Punkt ab welcher belichtetes PMMA wieder seine ursprüngliche Dicke erreicht hat. Es ist deutlich zu erkennen, dass bei 65 K und hohen Dosen ein Anschwellen des Lacks erfolgt.

der Selbstinterferenz des Weißlichts in der Lackschicht kann eine schichtdickenabhängige Farbe des Lacks berechnet werden<sup>1</sup>, wodurch in einem kontaktfreien Verfahren die Schichtdicke des Materials gewonnen werden kann. Die deutlich vom umgebenden, unbelichteten Material hervorgehobenen Gradienten weisen dabei eine von links beginnende, linear ansteigende Dosis von  $0 \text{ mC/cm}^2$  bis  $30 \text{ mC/cm}^2$  über eine Länge von  $75 \mu\text{m}$  auf. Ein Vergleich mit den in Abb. 4.5 (c) dargestellten Kontrastkurven zeigt, dass der nach dem Entwickeln ermittelte Verlauf bei hohen Dosen qualitativ reproduziert wird. Die Dosisgradienten bei 10 K und 270 K weisen somit bereits in ihrer unentwickelten Form eine reduzierte Materialdicke von ca. 150 nm auf, was auf einen Materialverlust während der Belichtung hindeutet. Dieser dosisabhängige Volumenverlust während der Belichtung wurde bereits von Koval *et al.* [Kov04] festgestellt und mit dem Ausgasen von Molekülfragmenten erklärt. Betrachtet man jedoch den Gradienten bei 65 K so kann ein deutlich anderer Schichtdickenverlauf festgestellt werden. Durch die Farbveränderung kann festgestellt werden, dass ab ca.  $10 \text{ mC/cm}^2$  die Schichtdicke die anfänglichen Dicke (215 nm) des unbelichteten Lacks übersteigt. Diese Position ist mit einem roten Pfeil markiert und es kann festgestellt werden, dass ab diesem Punkt ein Anwachsen der Schichtdicke auf etwa 250 nm bis 300 nm bei  $30 \text{ mC/cm}^2$  stattgefunden hat.

Aussagen über die Stabilität und damit den Vernetzungsgrad des invertierten Materi-

<sup>1</sup> Die Berechnung der Interferenzskala wurde mit dem von Jens Raake bereitgestellten Simulationstool, zu finden auf [www.raacke.de](http://www.raacke.de), durchgeführt. Für die Dispersion wird dabei ein Modell nach Woollam mit  $n(\lambda) = n_0 + 10^6 n_1/\lambda^2 + 10^{12} n_2/\lambda^4$  verwendet, mit den Woollam-Cauchy Parametern für PMMA von  $n_0 = 1,478$ ,  $n_1 = 0,00473 \mu\text{m}^2$  und  $n_2 = 0$  (entnommen aus dem vom Hersteller bereitgestellten Datenblatt). Sowie mit  $n_0 = 3,3270$ ,  $n_1 = 0,03568 \mu\text{m}^2$  und  $n_2 = 0,03568 \mu\text{m}^4$  für das GaAs:Si - Substrat [TKSK06]



**Abbildung 4.10:** (a) Selektivität, berechnet aus (b) für verschiedene Temperaturen in Abhängigkeit der Dosis. (b) Dosisabhängige Lackdicke (schwarz) und verbleibende Substrathöhe nach dem Ätzprozess (rot) für ausgewählte Temperaturen. Deutlich zu erkennen ist in (a) die Zunahme der Lackstabilität bei 10 K und 270 K mit steigender Dosis, wohingegen bei 65 K das Material dem Ätzprozess immer weniger Widerstand entgegenbringt. (d) Die nach dem Entwickeln verbleibende Lackdicke bei  $27,5 \text{ mC/cm}^2$  in Abhängigkeit der Temperatur. Rot eingezeichnet ist die anfängliche, aufgeschleuderte Lackdicke. (c) Die bei  $27,5 \text{ mC/cm}^2$  temperaturabhängige Ätzselektivität von PMMA gegenüber GaAs. Deutlich zu erkennen ist eine Volumenvergrößerung und eine reduzierte Selektivität des Lacks bei Temperaturen um 75 K.

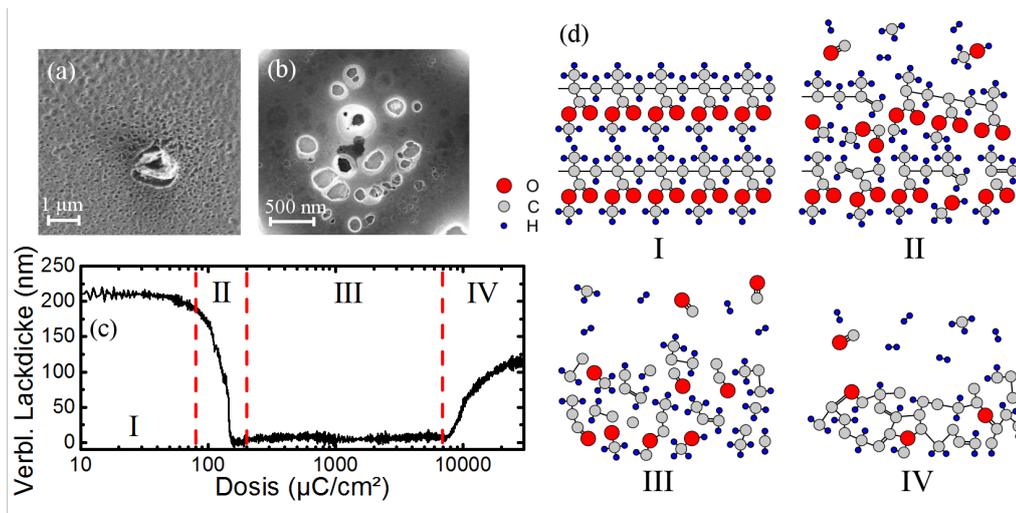
als lassen sich durch eine Untersuchung der Ätzresistenz treffen. Hierzu wird die Ätzselektivität, also das Ätzratenverhältnis zwischen dem invertierten Lack und dem GaAs:Si-Substrat, herangezogen. Bei dieser Untersuchung wird auf den in Kap. 5.2.1 beschriebenen ICP-RIE-Ätzprozess zurückgegriffen, wobei GaAs:Si mit den hier gewählten Parametern eine konstante Ätzrate von  $125 \text{ nm/min}$  aufweist. Die dosisabhängige verbleibende Lackdicke (b, schwarz) und die nach dem Ätzen verbleibende Materialhöhe (b, rot), sowie die daraus errechnete Selektivität von PMMA zu GaAs (a), sind in Abb. 4.10 dargestellt. Es ist zu erkennen, dass die Stabilität des Lacks bei niedrigen und hohen Temperaturen mit steigender Dosis immer weiter zunimmt, es also zu einer immer stärkeren Vernetzung des invertierten PMMAs kommt. Im Gegensatz hierzu nimmt bei mittleren Temperaturen um 65 K die Selektivität mit steigender Dosis immer weiter ab. Dies lässt darauf schließen, dass durch die Volumenzunahme des Materials der Vernetzungsgrad und damit die Härte des Materials bei steigender Belichtungs-dosis reduziert wird.

Die temperaturabhängige Betrachtung der Selektivitäten und Lackdicken bei einer Dosis von  $27,5 \text{ mC/cm}^2$  ist in Abb. 4.10 (c) und (d) dargestellt. Deutlich zu erkennen ist der Anstieg in der verbleibenden Lackdicke bei 30 K, welcher für Temperaturen zwischen 50 und 100 K sogar die anfängliche Lackdicke überschreitet und im Anschluss wieder sinkt.

Hiermit verbunden ist der auch in (a) festzustellende Trend, dass bei steigender Lackdicke eine Reduktion der Ätzselektivität stattfindet. Dieses temperaturabhängige Verhalten und die massive Zunahme der Lackdicke lassen darauf schließen, dass Gasbildung während der Belichtung eine große Rolle spielt. Hinweise darauf sind in REM-Aufnahmen zu finden, welche in Abb. 4.11 (a) eine mit einer Dosis von  $20 \text{ mC/cm}^2$  bei 5 K belichtete Lackschicht zeigen. Darin ist deutlich die Bildung von Mikroporen und Gaseinschlüssen zu erkennen. Weiterhin ist in (b) eine GaAs-Oberfläche gezeigt, welche von stark invertiertem PMMA während des Ätzprozesses geschützt wurde. Auch hier zeigen sich Mulden im Material, welche durch den Übertrag des mit Blasen versehenen PMMA entstanden sind.

Untersuchungen diverser Arbeitsgruppen [Hir77, Tin95, LRM99] zum Verhalten von PMMA unter Belichtung mit Elektronenstrahlen haben ergeben, dass die Kettenspaltung mit der Erzeugung diverser Zerfallsprodukte verbunden ist. Eine Liste nach Hiraoka *et al.* [Hir77], sortiert nach den am häufigsten vorkommenden Produkten, ist zusammen mit den Sublimationstemperaturen bei  $10^{-6}$  mbar in Tab. 4.2 angegeben. Die Sublimationstemperaturen sind dabei auf den Anlagendruck, unter welchem die Belichtung durchgeführt wurde, extrapoliert. Abgesehen von  $\text{H}_2$  liegen dabei alle entstandenen Zerfallsprodukte bei Temperaturen unter 30 K in festem Zustand vor. Erst bei höheren Temperaturen beginnen nach und nach die Zerfallsprodukte in den gasförmigen Zustand überzugehen und den Lack zu verlassen. Für die Entstehung von invertiertem PMMA bei Raumtemperatur kann somit das in Abb. 4.11 (d) dargestellte Schema abgeleitet werden. Beginnend bei geringen Belichtungs Dosen ist bei (I) die ursprüngliche PMMA-Kettenlänge noch erhalten und wird bei zunehmenden Dosen nach dem in Kap. 4.2.1 vorgestellten Mechanismus zerkleinert. Erreicht die molare Masse der Kettenfragmente im Bereich (II) eine Größe von etwa 5.000 bis 10.000 g/mol [MCK03], so wird der Lack im Entwickler löslich und bleibt im Bereich (III) unter der für die Entwicklung notwendigen maximalen Molekülgröße. Der gesamte Belichtungs- und Kettenspaltungsprozess ist dabei von der Entstehung der in Tab. 4.2 genannten Zerfallsprodukte begleitet. Dabei erhöht das Ausgasen der Zerfallsprodukte die effektive Kohlenstoffkonzentration im Lack, bis im Bereich (IV) eine Karbonisierung, also eine Vernetzung der Kohlenstoffatome untereinander, einsetzt. Während dieses Vorgangs verliert das Material durch das Ausgasen der Zerfallsprodukte zwar beständig an Masse und Volumen, die Ätzselektivität nimmt jedoch aufgrund der stärkeren C – C Bindung des amorphen karbonisierten Materials stark zu.

Berücksichtigt man in dieser Betrachtung die Proben temperatur während der Belichtung, so kann auch die starke Temperaturabhängigkeit der Onset Dosis (siehe Abb. 4.8 (a)) geklärt werden. Da bei tiefen Temperaturen die Zerfallsprodukte in ausgefrorenem Zustand vorliegen, ist der Karbonisierungsprozess durch die Anwesenheit der nicht kohlenstoffhalti-



**Abbildung 4.11:** (a) REM-Aufnahme einer entwickelten, leicht invertierten PMMA-Oberfläche, welche die Bildung von Mikroporen aufweist und von (b) einer geätzten GaAs-Oberfläche, die durch stark invertiertes PMMA maskiert wurde. Deutlich zu erkennen ist die starke Porosität des Materials, beziehungsweise die durch den Gasaustritt verursachte Blasenbildung. (c) und (d): Darstellung zu den Vorgängen, welche bei Belichtung des Lacks stattfinden. (I) Die Belichtung des Lacks führt zu vereinzelt Kettenbrüchen, wobei die Hauptkette noch erhalten bleibt. Bei steigender Dosis (II) nimmt die Kettenlänge solange ab, bis eine Löslichkeit im Entwickler stattfindet. Eine weitere Belichtung (III) führt zum Ausgasen von kleineren Molekülbestandteilen, bis bei (IV) eine Karbonisierung des Materials einsetzt.

Zerfallsprodukt	Sublimations- temperatur	Extrapoliert aus
H <sub>2</sub>	5 K	Goodwin <i>et al.</i> [Goo85]
CO	30 K	Souers <i>et al.</i> [SBPT77]
CH <sub>3</sub> /CH <sub>4</sub>	45 K	Prydz <i>et al.</i> [PG72]
CO <sub>2</sub>	105 K	Giaugue <i>et al.</i> [GE37]
CH <sub>3</sub> O/CH <sub>4</sub> O	175 K	Goodwin <i>et al.</i> [Goo87]

**Tabelle 4.2:** Die unter Bestrahlung nach Hiraoka *et al.* [Hir77] entstehenden Zerfallsprodukte von PMMA in absteigender Häufigkeit. Dazu sind die extrapolierten Sublimationstemperaturen bei einem Anlagendruck von  $10^{-6}$  mbar angegeben.

gen Moleküle in der Umgebung stark unterdrückt. Erst bei steigender Temperatur nimmt sowohl die Phasensegregation als auch die Verdampfungsgeschwindigkeit zu, wodurch aufgrund der schneller steigenden Kohlenstoffkonzentration eine frühere Karbonisierung und damit verbunden eine Senkung der Schwellendosis eintritt.

Die Gasbildung ist weiterhin auch die Ursache für das Anschwellen des Lacks bei Temperaturen zwischen 50 und 100 K, bei der eine poröse Struktur entsteht, wie sie auch von He und Bassim [HB98] bei Polyimid-Kapton-Schichten beobachtet wurde. Die Entste-

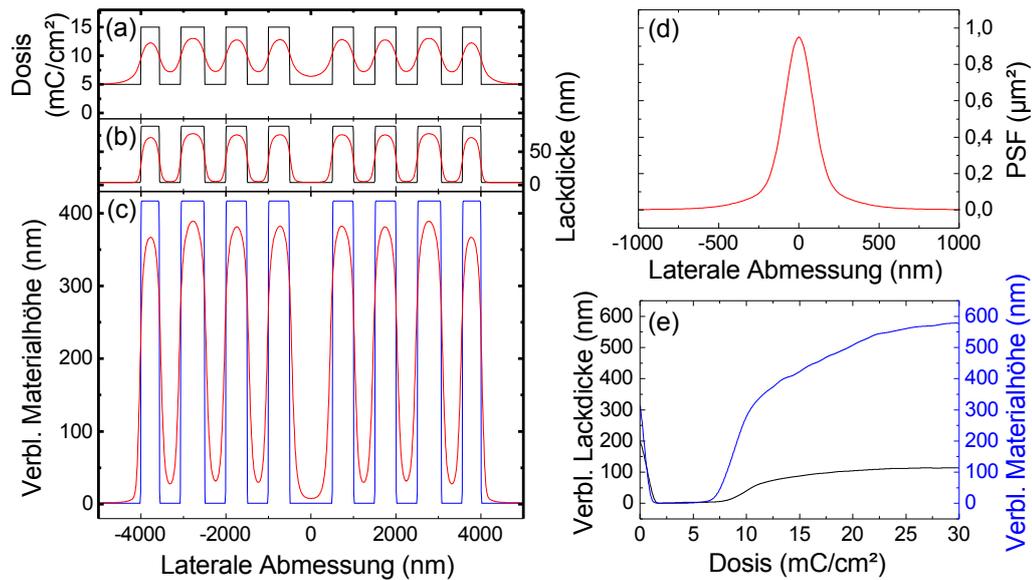
hung der porösen Struktur tritt dabei nur bei moderaten Temperaturen auf und ist mit einer temperaturabhängigen Phasensegregation zwischen den gasförmigen Zerfallsprodukten und den verbleibenden Kohlenstoffresten zu erklären. Bei niedrigen Temperaturen erfolgt diese Segregation nur sehr langsam, wodurch die entstehenden Zerfallsprodukte bei beständiger Belichtung wieder in die amorphe Kohlenstoffschicht eingebaut werden können. Erhöht man nun die Temperatur, so führt eine Teilsegregation dazu, dass eine Blasenbildung stattfindet, bevor eine Verfestigung des invertierten PMMAs eintritt. Erst bei ausreichend hohen Temperaturen erfolgt die Phasensegregation vollständig, wodurch ausreichende Mengen der Zerfallsprodukte desorbieren können und somit ein engmaschiges Kohlenstoffnetzwerk entsteht, welches bereits von Koval *et al.* [Kov04] beobachtet wurde.

Trotz der tiefen Temperaturen und der notwendigen hohen Dosen, unter welcher die Belichtung durchgeführt wird, zeigt sich, dass PMMA die erforderlichen Eigenschaften für die KLL-Prozessierung aufweist. Es muss bei seiner Verwendung jedoch darauf geachtet werden, dass durch die Gasbildung während der Belichtung keine Schädigung der geschriebenen Strukturen entsteht. Dies kann z.B. durch geringe Lackdicken, langsame Temperaturzyklen und geeignete Entwickler gelöst werden.

### 4.3 Bestimmung der Punktspreizfunktion

Die Bestimmung und Optimierung der Auflösungsgrenzen eines Lithographiesystems ist ein Prozess, welcher eine Abhängigkeit von vielen unterschiedlichen, miteinander verbundenen Parametern aufweist. Obwohl ein Elektronenstrahl auf wenige Nanometer Größe fokussiert werden kann, stellt die Fabrikation von Strukturen unter 10 nm eine Herausforderung für alle beteiligten Komponenten dar. Selbst bei der Wahl eines geeigneten Lack-Entwicklungsprozesses, welcher vielfältige Optimierungsansätze bietet, treten bei der Herstellung von eng nebeneinanderliegenden Strukturen oft Überbelichtung, Kontrastschwäche und dadurch Abweichungen von der gewünschten Struktur auf. Ursache hierfür ist der sogenannte Proximity-Effekt (deutsch: Nahwirkungs-Effekt), welcher das „Anbelichten“ von neben den definierten Strukturen liegenden, angrenzenden Bereichen beschreibt. Dieser Effekt bewirkt, dass Elektronen, welche an der vorgesehenen Stelle den Lack belichten und in das darunterliegende Substrat eintreten, von diesem wieder an die Oberfläche zurückgestreut werden. Dort können sie an einer anderen Stelle im Lack Energie abgeben und somit eine unerwünschte Belichtung neben den Strukturen verursachen.

Die in Abb. 4.12 (d) schematisch dargestellte Punktspreizfunktion (PSF - *pointspread function*) wird eingeführt, um die Energieumverteilung eines  $\delta$ -förmigen Dosisetrags zu



**Abbildung 4.12:** Schematische Darstellung der Auswirkungen des Proximity-Effekts (rot): Durch ihn wird der in (a) schwarz dargestellte Dosisverlauf in den rot Dargestellten umverteilt. Die Umverteilung kann dabei durch eine Faltung der nominellen Dosisverteilung mit der Punktspreizfunktion (d) mathematisch beschrieben werden. In (b) und (c) ist sowohl die Lackdicke und die verbleibende Materialhöhe dargestellt, welche durch die initiale Dosisverteilung (schwarz und blau), als auch durch die umverteilte Dosisverteilung (rot) verursacht wird. (d) Proximity-Funktion mit den in Tab. 4.3 für 10 kV bestimmten Parametern. Für die Berechnung wurde die in (e) dargestellte Kontrastkurve verwendet. Zu Erkennen ist der durch den Proximity-Effekt verursachte, ungewollte Verlust in der Flankensteilheit der entwickelten und geätzten Struktur.

beschreiben<sup>1</sup>. Das Ergebnis der Umverteilung auf die Strukturformung ist in Abb. 4.12 (a) bis (c) schematisch dargestellt. Zu erkennen ist die in (a) schwarz dargestellte, ursprünglich eingebrachte Dosisverteilung, welche sich aufgrund des Proximity-Effekts in den in rot dargestellten, tatsächlich im Material eingebrachten Dosisverlauf umverteilt. Die Umverteilung kann dabei durch eine Faltung des ursprünglichen Dosisverlaufs mit der PSF mathematisch errechnet werden (siehe Gl. (4.1)). Aus der daraus erhaltenen Dosisverteilung kann nun durch eine Abbildung auf die in (e) gezeigte Kontrastkurve der Verlauf der daraus resultierenden Lackdicke (b) und der nach dem Ätzen verbleibenden Materialtiefe (c) für den initialen Fall (schwarz und blau) und den umverteilten Fall (rot) ermittelt

<sup>1</sup> Es soll an dieser Stelle darauf hingewiesen werden, dass für die chemische Veränderung des Lacks der durch den Elektronenstrahl eingebrachte Energieeintrag und nicht die eingebrachte Dosis verantwortlich ist. Diesem Umstand wird durch den in Gl. (4.2) eingeführten Energiekonversionsfaktor  $k$  Rechnung getragen. Da die Dosis jedoch das experimentell zugänglichere Maß ist und der Energiekonversionsfaktor bei den in dieser Arbeit auftretenden Energien und Lacken als konstant angenommen werden kann, wird im Einklang mit der fachspezifischen Literatur weiterhin von eingebrachten Dosen gesprochen.

werden. Aus dem Vergleich ist deutlich die geringere Höhe, sowie die reduzierte Flankensteilheit zu erkennen. Der Proximity-Effekt limitiert somit die maximal erreichbare Auflösung mit welcher eng beieinander liegende Strukturen geschrieben werden können. Die Ursachen für diesen Effekt und die PSF sollen im Folgenden ermittelt werden.

Zur Ermittlung der PSF wird die nach Rishton und Kern [Ris87] vorgeschlagene Methode auf Basis der Belichtung einzelner punktförmiger Bereiche angewendet. Geht man von einer dünnen Lackschicht gegenüber dem Generationsvolumen aus, so kann die sog. Exposition, welche die pro Flächeneinheit des Lacks eingebrachte Energie definiert, eingeführt werden. Nimmt man weiterhin an, dass durch den Elektronenstrahl nur ein einziger Punkt belichtet wird, so kann nach [Ris87] die PSF über folgende Formel beschrieben werden:

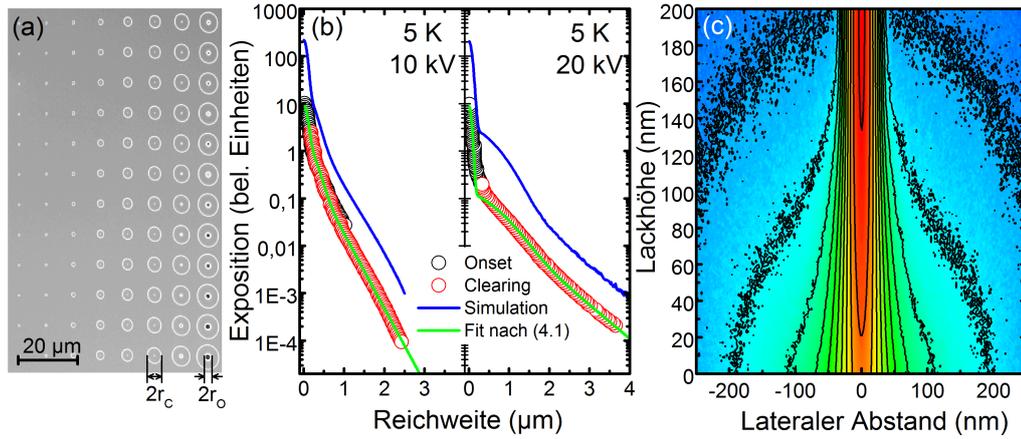
$$f(r) = \frac{1}{\pi(1 + \eta + \nu)} \left( \frac{1}{\alpha^2} e^{-\frac{r^2}{\alpha^2}} + \frac{\eta}{\beta^2} e^{-\frac{r^2}{\beta^2}} + \frac{\nu}{2\gamma^2} e^{-\frac{r}{\gamma}} \right). \quad (4.1)$$

Die drei Terme der Gleichung beschreiben dabei verschiedene Streumechanismen der eingebrachten Elektronen. Der erste Term trägt der Größe des Strahldurchmessers in Kombination mit der im Lack durch Primärstreuung verursachten Strahlaufweitung Rechnung. Mit den anderen beiden Termen wird die Rückstreuung der Elektronen aus dem Substrat zurück in den Lack berücksichtigt, wobei der gaußförmige Anteil die Streuung von Elektronen im Material beschreibt und der exponentielle Term die Absorption der Elektronen berücksichtigt [Ris87]. Die Fläche unter dieser Kurve ist weiterhin durch ihre Vorfaktoren auf 1 normiert, wodurch eine Faltung der geschriebenen Dosis  $D(r)$  mit der PSF  $f(r)$  eine Umverteilung verursacht, aus der die tatsächlich in den Lack eingebrachte Energieverteilung

$$E(r) = k \int D(r') f(r - r') d^2 r' \quad (4.2)$$

ermittelt werden kann. Diese ist für die chemische Veränderung des Lacks verantwortlich, wobei der Ladungs-zu-Energiekonversionsfaktor  $k$  als konstant für die hier untersuchten Energien und Lacke angenommen werden kann [Ris87].

Die PSF kann nun mit Hilfe der in Abb. 4.13 (a) in den Lack geschriebenen Belichtungspunkte bestimmt werden. Dabei wurden die punktförmig eingebrachten Ladungen  $Q_i$  jeweils beginnend oben links von  $Q_1 = 0,3 \text{ pC}$  bis  $Q_{96} = 8 \text{ nC}$ , unten rechts, logarithmisch variiert und deren Radien extrahiert. Ab einer Ladung von ca.  $20 \text{ pC}$  kann man erkennen, dass zusätzlich zu dem äußeren Haupt-Kreis, welcher durch die positiv-Belichtung verursacht wird, ein innerer Kreis entsteht. Dieser wird durch die Invertierung von PMMA verursacht. Geht man davon aus, dass eine  $\delta$ -förmige Belichtung mit der Dosis  $D_i(r) = Q_i \delta(r)$



**Abbildung 4.13:** (a) SEM-Bild verschiedener Belichtungspunkte, welche mit unterschiedlichen Dosen, beginnend bei 0,3 pC und endend bei 8 nC geschrieben wurden. Bei ausreichend hoher Dosis bildet sich ein zusätzlicher innerer Kreis, welcher durch eine Invertierung des Lacks verursacht wird. (b) Nach Gl. (4.5) aus den inneren (rot) und äußeren (schwarz) Radien berechnete Exposition für 10 kV und 20 kV, welche mit der PSF nach Gl. (4.1) (grün) angepasst wurde. Dazu die durch eine Monte-Carlo Simulation erhaltene Energiedeposition im Lack (blau), welche zur besseren Übersichtlichkeit in y-Richtung verschoben ist. (c) Schnitt durch die mittels Monte-Carlo Simulation berechnete Energieverteilung in der Lackschicht. Die eingezeichneten Konturlinien markieren jeweils eine Halbierung der maximalen eingebrachten Energie.

vorliegt, so ergibt sich mit Hilfe von Gl. (4.2)

$$E_i(r) = kQ_i f(r). \quad (4.3)$$

Andererseits ergibt sich aus dem Zusammenhang

$$E_S = kD_S \quad (4.4)$$

die Abhängigkeit der zur chemischen Modifikation benötigten Energie von der eingebrachten Schwellendosis  $D_S$ . Die Dosis  $D_S$  kann aus einer Kontrastkurve nach dem in Kap. 4.2 beschriebenen Verfahren extrahiert werden. Durch Kombination von Gl. (4.3) und Gl. (4.4) kann man somit über

$$f(r) \Big|_{r_i} = D_S / Q_i, \quad (4.5)$$

mit  $r_i$  als Radius des Kreises infolge der Punktdosis  $Q_i$ , die PSF experimentell ermitteln. In Abb. 4.13 (b) sind für 10 kV und 20 kV die reziproken eingebrachten Dosen über die aus (a) ermittelten Radien aufgetragen. Unterschieden wird dabei zwischen den äußeren ( $r_C$ , rot) und inneren ( $r_O$ , schwarz) Radien, welche den Abständen entsprechen, bei de-

nen die Clearing bzw. die Onset Dosis erreicht wird. Diese können nach Gl. (4.5) über die verschiedenen Schwellendosen  $D_S$  aufeinander abgestimmt werden. In Grün ist ein Fit nach Gl. (4.1) dargestellt, dessen Fitparameter in Tab. 4.3 zusammengestellt sind und mit Resultaten von anderen Autoren [Dix85, Ris87] verglichen werden. Es zeigt sich, dass  $\alpha$  ein Parameter ist, der vorwiegend durch die Fokussierbarkeit der verwendeten Anlage gegeben ist.  $\beta$  und  $\gamma$  hingegen sind als reine Materialparameter nur von der Beschleunigungsspannung und dem Aufbau der Probe abhängig und fügen sich in den in Tab. 4.3 dargestellten Trend ein. Zusätzlich ist in Blau die zur jeweiligen Spannung gehörende Monte-Carlo Simulation (Details siehe Anhang A) der radialen Energieverteilung mit Y-Achsenversatz mit eingezeichnet. Gut zu erkennen ist die Übereinstimmung im Verlauf der gemessenen und simulierten Kurven.

Ein Vergleich der Werte in Tab. 4.3 und der Kurven bei 10 kV und 20 kV zeigt bei höheren Beschleunigungsspannungen ein deutlich schmaleres Belichtungsprofil im Lack, jedoch auch die weitreichendere Wechselwirkung. Dieses Verhalten spiegelt sich auch in den in Tab. 4.3 zusammengefassten Proximity-Parametern  $\beta$  und  $\gamma$ , welche die Rückstreuung der Elektronen aus dem Substrat beschreiben, wieder. Dies hat vor allem Auswirkungen auf die Strukturierung bei hohen Beschleunigungsspannungen, was bei höchsten Auflösungen eine Proximity-Korrektur erforderlich macht. In Abb. 4.13 (c) ist ein Schnitt durch eine, mittels einer Monte-Carlo Simulation bestimmte, Energieverteilung im Lack dargestellt. Vom Primärstrahl, mit einem Durchmesser von  $50 \text{ nm}^1$  ausgehend, ist die von den vorwärts- und rückgestreuten Elektronen kumulierte Energieabgabe aufgetragen. Die Konturlinien markieren dabei, bei rot beginnend, immer eine Halbierung der eingebrachten maximalen Energie. Deutlich zu erkennen ist, dass die Energieverteilung mit zunehmender Eindringtiefe in den Lack deutlich aufweitet, was für die in Kap. 6.2.2 diskutierte 3D-Lithographie von Interesse ist.

#### 4.4 Energiedeposition im Lack und erreichbare Auflösungsgrenzen

Um die Strukturierung im Hinblick auf die in Kap. 5.2.2 vorgestellte KLL möglichst flexibel zu gestalten, ist die Bestimmung von wichtigen Lithographieparametern erforderlich. Dabei gilt es eine optimale Beschleunigungsspannung, sowie eine geeignete Lackdicke für die jeweiligen Probenlayouts und Strukturen zu finden. Die Beschleunigungsspannung muss insofern variabel gehalten werden, da durch sie das Anregungsvolumen während der KL-Spektroskopie je nach Probenaufbau beeinflusst wird (siehe Kap. 3.1.2). Die Lackdicke ist

---

<sup>1</sup> Es wird ein gaußförmiger Primärstrahl angenommen, wobei sich 99% der Elektronen innerhalb der 50 nm befinden, siehe hierfür Anhang A.

$U_B$ (keV)	$d_{\text{Lack}}$ (nm)	$\alpha$ ( $\mu\text{m}$ )	$\beta$ ( $\mu\text{m}$ )	$\gamma$ ( $\mu\text{m}$ )	$\eta$	$\nu$	Quelle:
10	200	$0,12 \pm 0,02$	$0,32 \pm 0,08$	$0,28 \pm 0,03$	$1,0 \pm 0,1$	$1,0 \pm 0,1$	diese Arbeit
20	230	$0,078 \pm 0,008$	$0,92 \pm 0,06$	$0,61 \pm 0,02$	$1,0 \pm 0,1$	$1,1 \pm 0,1$	diese Arbeit
20	150	0,12	0,95	0,55	4,7	5,5	Dix et al. [Dix85]
30	150	0,075	1,8	0,76	17	8,2	Dix et al. [Dix85]
50	125	0,013	3,78	0,75	0,75	0,54	Rishton et al. [Ris87]

**Tabelle 4.3:** Die für Gl. (4.1) ermittelten Proximityparameter für PMMA auf GaAs-Substrat, bei verschiedenen Beschleunigungsspannungen  $U_B$  und Lackdicken  $d_{\text{Lack}}$ .

zudem maßgeblich für die maximal erreichbare Ätztiefe verantwortlich (siehe Kap. 4.2.3). Wichtigste Größe ist in diesem Zusammenhang die Onset Dosis von invertiertem PMMA, welche direkt mit der in den Lack eingebrachten Energie in Verbindung steht und für verschiedene Bedingungen ermittelt werden muss.

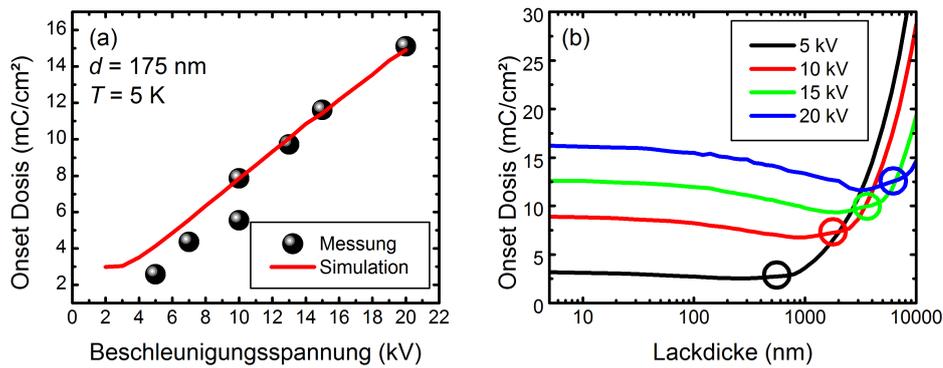
#### Energiedeposition im Lack

Zur Bestimmung wichtiger Lithographieparameter ist in Abb. 4.14(a) die Abhängigkeit der Onset Dosis von der Beschleunigungsspannung in gemessener (schwarze Punkte) und simulierter Form (rote Linie) dargestellt. Die Messung in (a) wurde dabei bei einer Temperatur von 5 K an einem 175 nm dicken PMMA-Lack bei gleichbleibendem Strahlstrom von  $I = 0,5 \text{ nA}$  durchgeführt. Die Vergleichsergebnisse zur Lackdicke sind durch eine Monte-Carlo Simulation der in den Lack eingebrachten Gesamtenergie  $\mathcal{E}$  bei verschiedenen Lackdicken  $d$  entstanden. Hieraus kann über die Beziehung

$$D_O \propto d/\mathcal{E} \quad (4.6)$$

die benötigte Schwellendosis berechnet werden (siehe Anhang A). Die Normierung über den Ladungs-zu-Energiekonversionsfaktor<sup>1</sup> ist dabei für die höchste Beschleunigungsspannung durchgeführt worden. Deutlich zu erkennen ist der gemessene Anstieg der Onset Dosis bei steigender Spannung. Dieser ist auf einen geringeren linearen Energietransfer (LET - *linear energy transfer*) von Elektronen mit höherer Energie zurückzuführen. Der LET

<sup>1</sup> Man beachte dabei den in Kap. 4.3 eingeführten Ladungs-zu-Energiekonversionsfaktor, welcher den Zusammenhang zwischen eingebrachter Dosis und Energie herstellt.



**Abbildung 4.14:** (a) Beschleunigungsspannungsabhängige gemessene (schwarze Punkte) und simulierte (rote Linie) Onset Dosis von PMMA. Die Monte-Carlo Simulation ist auf die Werte für hohe Spannungen normiert. (b) Simulierte Onset Dosis in Abhängigkeit der Lackdicke. Die Normierung der Monte-Carlo Simulation erfolgt anhand der in (a) dargestellten gemessenen Onset Dosen. Die Kreise geben die Eindringtiefe bei den entsprechenden Beschleunigungsspannungen an. Bei Werten darüber erfolgt keine vollständige Durchbelichtung des Lacks mehr.

nimmt für verschiedene Beschleunigungsspannungen von  $4 \text{ eV/nm}$  bei  $10 \text{ kV}$  auf  $2 \text{ eV/nm}$  bei  $20 \text{ kV}$  ab [Hal82]. Elektronen mit hoher Energie können bei einem Stoß zwar mehr Energie an den Lack abgeben, allerdings nimmt der Wechselwirkungsquerschnitt zwischen Elektronen und Lack überproportional schnell ab, wodurch die eingebrachte Gesamtenergie für schnelle Elektronen geringer ist. Als Folge daraus nimmt die Anzahl der Ionisationsprozesse durch den Primärstrahl ab, was trotz des erhöhten Aufkommens von rückgestreuten Elektronen nicht kompensiert werden kann.

In Abb. 4.14 (b) ist weiterhin die simulierte Onset Dosis für 4 verschiedene Beschleunigungsspannungen in Abhängigkeit der Lackdicke dargestellt. Hier wurde erneut über Gl. (4.6) die Beziehung zwischen der simulierten, in die Lackschicht eingebrachten Energie und der Onset Dosis hergestellt. Als Normierung auf die entsprechenden Onset Dosen der verschiedenen Spannungen wird der in Abb. 4.14 (a) gemessene Wert für eine Schichtdicke von  $175 \text{ nm}$  verwendet. Die Berechnung der Onset Dosis ist dabei unter der Annahme eines zur Oberfläche senkrechten, homogenen Energieeintrags in den Lack zu verstehen. Diese Annahme ist entsprechend der Monte-Carlo Simulation in Abb. 4.13 (c) solange zulässig, wie die Lackdicke klein gegenüber der Eindringtiefe der Elektronen ist. Diese wurde zur Veranschaulichung (siehe Kap. 3.1.2 und [GPMS98]) für PMMA mit  $\rho_{\text{PMMA}} = 1,18 \text{ g/cm}^3$  bei den entsprechenden Spannungen durch Kreise markiert. Ab hier ist die obige Annahme definitiv nicht mehr erfüllt, da die Elektronen die Lackschicht nicht mehr vollständig durchdringen können. Dies macht sich in dem unphysikalischen Anstieg der Onset Dosis bemerkbar. Die Onset Dosis hat im physikalisch sinnvollen Bereich die Tendenz bei dicker werdendem Lack leicht abzunehmen. Dies ist der geringer werdenden Energie der

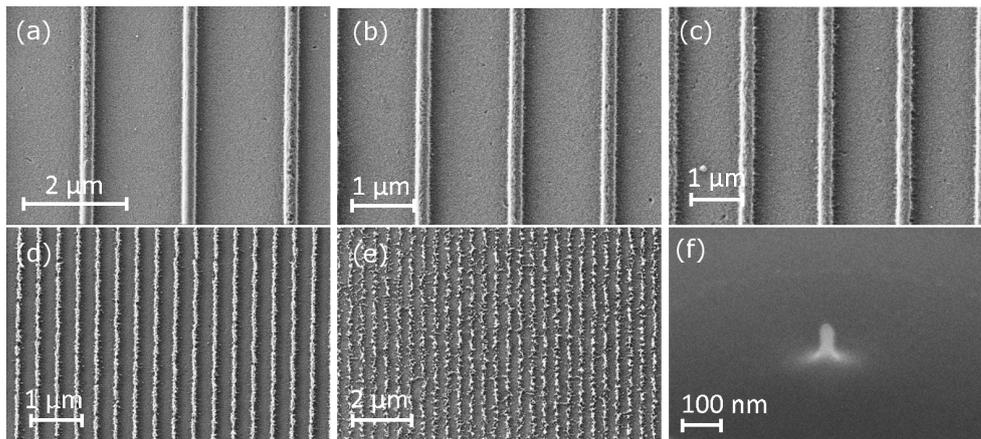
mehrfach gestreuten Elektronen zuzuschreiben und damit verbunden, dem höheren LET, sowie der Belichtung durch Sekundärelektronen. Für praktische Anwendungen sind die Änderungen um  $(200 \pm 50)$  nm jedoch zu gering um einen nennenswerten Einfluss auf die Strukturierung zu haben, weswegen auch keine detaillierten lackdickenabhängigen Messungen vorgenommen wurden.

#### Bestimmung der Auflösungsgrenze

Zur Bestimmung der erreichbaren Auflösung wurden die in Abb. 4.15 (a) bis (e) dargestellten Gitter, bestehend aus Einzelpixellinien (engl. - *single pixel lines*) in PMMA lithografiert. Die eingebrachten Dosen, sowie die ermittelten Linienabstände und -breiten können dabei in Tab. 4.4 nachvollzogen werden. Die Dosen sind dabei so hoch gewählt, dass bei den verwendeten 20 kV und bei einer Temperatur von 5 K eine Invertierung der Linien in dem 160 nm dicken Lack stattfindet. Die Linien mit großen Abständen und Breiten (a) bis (c) weisen Z.B. für Anwendungen in der Wellenleitertechnologie [JRO<sup>+</sup>15] ausreichende Strukturgrößen auf. Erst bei geringeren Linienabständen und -breiten (d) sind raue Seitenwände und in (e) sogar nicht mehr durchgängige Linien festzustellen. Die Ursache hierfür ist vermutlich eine nicht ausreichende Vernetzung oder ein zu starker Entwickler, welcher in der Lage ist, auch längere Molekülfragmente aus dem invertierten Lack herauszulösen. Arbeiten zur Optimierung der Lackentwicklung sind zahlreich [CLB07, YHA01, MDS13b], was eine zufriedenstellende Lösung dieses Problems, zusammen mit dem Erreichen von noch geringeren Strukturgrößen wahrscheinlich macht. Dennoch konnte eine Strukturgröße von 65 nm bei einem Linienabstand von 400 nm erreicht werden. Dies ist ausreichend für die Herstellung von z.B. zirkularen Bragg-Resonatoren [DRS<sup>+</sup>11].

Bei Raumtemperatur wurden von mehreren Autoren [DWY<sup>+</sup>10, HWB97] bereits Auflösungen von unter 10 nm in invertiertem PMMA berichtet. Ein Ergebnis, das durch eine Erhöhung der Beschleunigungsspannung, bei gleichzeitiger Reduktion der Lackdicke und einer optimierten Entwicklung, auch bei Tieftemperatur möglich sein sollte.

In Abb. 4.15 (f) ist weiterhin eine REM-Aufnahme eines bei Tieftemperatur und 10 kV isoliert belichteten Pixels (24 pC) gezeigt, welcher in das darunterliegende Substrat mit dem in Kap. 5.2.1 vorgestellten Ätzprozesses übertragen wurde. Das Resultat ist ein Zylinder mit einer Höhe von etwa 100 nm, bei einem Durchmesser von nur 40 nm. Das sehr hohe Aspektverhältnis und die hohe Ätztiefe sind dabei mehr als ausreichend um z.B. nanometallene Kavitäten [BKF<sup>+</sup>14] herzustellen.



**Abbildung 4.15:** (a)-(e) In PMMA bei verschiedenen Dosen geschriebene Einzelpixeln. Die Dosis wurde dabei so hoch gewählt, dass eine Invertierung des Lacks stattgefunden hat. Die dünnsten, durchgängigen Linien sind in (d) mit 65 nm und einem Abstand von 400 nm zu finden. (f) In das darunterliegende Substrat geätzter, isoliert belichteter Punkt mit einer Höhe von 100 nm und einem Durchmesser von 40 nm.

	Linienabstand	Linienbreite	Dosis
(a)	2,0 $\mu\text{m}$	250 nm	3,0 $\mu\text{C}/\text{cm}$
(b)	1,5 $\mu\text{m}$	200 nm	2,0 $\mu\text{C}/\text{cm}$
(c)	1,0 $\mu\text{m}$	170 nm	1,5 $\mu\text{C}/\text{cm}$
(d)	400 nm	65 nm	0,50 $\mu\text{C}/\text{cm}$
(e)	300 nm	50 nm	0,35 $\mu\text{C}/\text{cm}$

**Tabelle 4.4:** Die aus Abb. 4.15 (a) bis (e) ermittelten Linienabstände und -breiten, sowie die hierfür notwendigen eingebrachten Liniendosen.

## 4.5 Zusammenfassung des Kapitels

In diesem Kapitel wurden die Ergebnisse zur Strukturierung von HSQ-, AZ-2070- und PMMA-Schichten mittels Elektronenstrahlithographie bei Temperaturen zwischen 5 und 270 K zusammengestellt und ein geeigneter Lack für den in Kap. 5 vorgestellten KLL-Prozess identifiziert. Die hierfür notwendigen Eigenschaften einer sehr hohen Schwellendosis (mehrere  $\text{mC}/\text{cm}^2$ ), einer hohen Ätzresistenz und einer hohen erreichbaren Auflösung werden von PMMA in seinem negativ-Bereich mit einer Onset Dosis von ca.  $8 \text{ mC}/\text{cm}^2$  bei 10 kV, einer Ätzselektivität von 5 gegenüber GaAs und einer erreichten Strukturgröße von 65 nm ausreichend erfüllt.

Zusätzlich konnte anhand der Kontrastkurven von PMMA ein mikroskopisches Modell des Belichtungsprozesses in Abhängigkeit der Temperatur für den negativ- und positiv-Bereich abgeleitet und der Einfluss der Reaktionsprodukte auf die Invertierung nachgewiesen werden. Dabei ist gezeigt worden, dass im positiv-Bereich das ausgefrorene CO

die Wasserstoffabspaltung an der Hauptkette behindert, was bewirkt, dass ein propagierendes Radikal entsteht, welches zu einem schnelleren Kettenbruch und somit zu einer geringeren benötigten Dosis führt. Weiterhin hat sich gezeigt, dass die Invertierung von PMMA stark von der Phasensegregation zwischen den gebrochenen Kettenteilen und den sublimierenden Reaktionsprodukten abhängig ist. Dies bewirkt, dass bei ausgefrorenen Reaktionsprodukten die Karbonisierung des Lacks verlangsamt ist, wodurch die Onset Dosis zu den erforderlichen hohen Werten verschoben ist.

In Vorbereitung auf die 2D- und 3D-Strukturierung der folgenden Kapitel wurden zudem die Punktspreizfunktion, sowie die Abhängigkeit der PMMA Onset Dosis von der Beschleunigungsspannung und der Lackdicke im negativ-Bereich ermittelt.



## 5 Deterministische Nanostrukturierung von Halbleitern

Kernpunkt der Realisierung von deterministisch hergestellten QP-Bauelementen ist die Möglichkeit einer möglichst genauen Vorcharakterisierung der zu integrierenden Quantenemitter. Die hierfür entwickelten Charakterisierungskonzepte reichen dabei von einer reinen Oberflächencharakterisierung durch Sekundärelektronenbilder [PLZ<sup>+</sup>14] bis hin zu detaillierten Studien ihrer Lumineszenzeigenschaften mittels  $\mu$ -Photolumineszenz- ( $\mu$ PL) [KKAN13, DLS<sup>+</sup>08] oder Kathodolumineszenz- (KL) Spektroskopie [GGS<sup>+</sup>13, NMB<sup>+</sup>13, GSK<sup>+</sup>13]. Details zu diesen bereits etablierten Verfahren werden in Kap. 5.1 zusammengefasst. Es ist jedoch erst mit der Entwicklung der tieftemperaturfähigen Elektronenstrahlolithographie (EBL) (siehe Kap. 4 [GSK<sup>+</sup>14]) möglich, direkt im Anschluss an die Charakterisierung der Lumineszenzeigenschaften eine in-situ Strukturierung mit hoher Auflösung durchzuführen. Die Herausforderung bei diesem Verfahren besteht vor allem darin, dass die Charakterisierung und somit auch die Strukturierung bei kryogenen Temperaturen erfolgen muss. Dadurch kann auf Proben transferprozesse, welche Ungenauigkeiten in der Positionierung mit sich bringen, verzichtet werden. Im Vergleich zur Laserlithographie [DLS<sup>+</sup>08] ist trotz der deterministischen Strukturierung eine deutlich geringere, erreichbare Auflösung möglich.

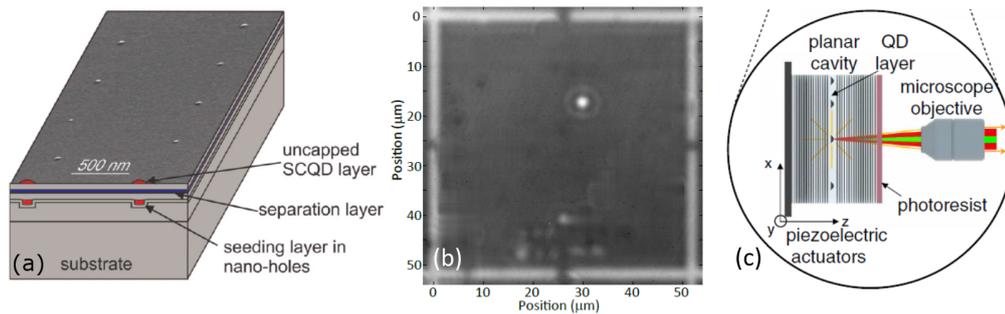
Höchste Anforderungen werden dabei an einen geeigneten, gegenüber der Vorcharakterisierung insensitiven, tieftemperaturfähigen Elektronenstrahlack gestellt. Nach den in Kap. 4.2 durchgeführten Untersuchungen erfüllt Polymethylmethacrylat (PMMA) diese Anforderungen [GSK<sup>+</sup>14]. Weiterhin ist eine leistungsstarke computergestützte Umsetzung der Lithographieeinheit erforderlich, welche in der Lage sein muss, die während der Vorcharakterisierung eingebrachte Dosis punktgenau zu erfassen und in dem Strukturierungsprozess zu berücksichtigen. Ebenso macht es die in-situ Strukturierung erforderlich, dass die Positionsanpassung flexibel und schnell nach der Charakterisierung erfolgt, um parasitäre Einflüsse zu minimieren. Die Herausforderungen, welche mit der in-situ Prozessierung einhergehen, werden in Kap. 5.2.1 näher erläutert, wobei zunächst das generelle Kathodolumineszenzlithographie- (KLL) Verfahren vorgestellt wird. Daraufhin folgt in Kap. 5.2.2 eine Demonstration des Prozessschemas durch die Positionierung von einfa-

chen Mesostrukturen, sowie durch die Charakterisierung ihrer optischen Eigenschaften. Der angewendete Prozess wird anschließend in Kap. 5.3 bezüglich seiner räumlichen und spektralen Genauigkeit untersucht, bewertet und in Kap. 5.1 mit anderen Prozessschemata verglichen [GSS<sup>+</sup>15]. In Kap. 5.4 wird gezeigt, wie der KLL-Grundprozess hinsichtlich seiner Vorcharakterisierung ausgebaut werden kann, was eine direkte Vergleichsmessung zwischen den unmodifizierten und den bauteilintegrierten QPen möglich macht. Dadurch wird es erstmals ermöglicht, den direkten Einfluss einer Veränderung der QP-Umgebung auf einen QP zu erfassen, was schlussendlich zu einem tieferen Verständnis von cQED-Effekten und Ladungsträgerdynamiken führt.

## 5.1 Übersicht über deterministische Technologien

Zur deterministischen Herstellung von QP-Bauelementen stehen grundsätzlich drei verschiedene technologische Ansätze zur Verfügung, deren prominenteste Vertreter in Abb. 5.1 dargestellt sind. Dabei unterscheidet man zwischen dem positionierten QP-Wachstum (a), der Charakterisierung von QPen und der Positionierung von Bauteilen relativ zu Markerstrukturen (b), sowie in-situ Ansätzen (c). Die Positionierungsgenauigkeiten der jeweiligen Methoden sind in Tab. 5.1 zusammengefasst.

Die Methode (a), QPe an definierten Orten entstehen zu lassen, erfolgt während des Wachstums anhand einer gezielt eingebrachten Verzerrung des Kristallgitters am Ort des bevorzugten Nukleationspunkts. Diese Verzerrung wird bei dem von Schmidt *et. al* [SDK<sup>+</sup>02] und Schneider *et. al* [SSS<sup>+</sup>08] verfolgten Ansatz durch das gezielte Ätzen eines Nanolochs in GaAs, welches anschließend mit InAs aufgefüllt wird, erzeugt. Die dabei entstehende Verzerrung pflanzt sich durch die Separationsschicht bis hin zur QP-Wachstumsschicht fort, so dass die QPe bevorzugt über den geätzten Nanolöchern nukleieren (siehe Abb. 5.1 (a)). Der Nachteil dieser Methode besteht darin, dass die optische Qualität der QPe durch die Nähe zu den geätzten Nanolöchern und den dabei eingebrachten Defekte stark verschlechtert wird [ASS<sup>+</sup>10]. Einen Ausweg bietet der Ansatz von Strittmatter *et. al* [SHS<sup>+</sup>12], bei welchem die Verzerrung des Gitters durch die gezielte Oxidation einer unter den QPen liegenden AlGaAs-Schicht erfolgt, wodurch ein Ätzschritt in der Nähe der QPe obsolet wird. Das Oxid bietet zudem die Möglichkeit, beim elektrischen Betrieb der Bauteile den Stromfluss gezielt durch die Nukleationsorte der QPe zu lenken [UQS<sup>+</sup>12], was eine zusätzliche, ortsselektive elektrische Anregung ermöglicht. Der generelle Vorteil der positionierten QP-Ansätze besteht vor allem in ihrer potentiell skalierbaren und somit industriellen Anwendbarkeit. Es muss jedoch der Nachteil in Kauf genommen werden, dass im Vergleich zu anderen deterministischen Technologien keine



**Abbildung 5.1:** (a) Schematische Darstellung der Positionierung von QPen anhand von vergrabenen Nanolöchern (entnommen aus [SHG<sup>+</sup>12]). (b) PL-Leuchtfleck eines QPes in einem Feld, welches von Orientierungsmarkern begrenzt ist (entnommen aus [SDBS15]). (c) Schematische Darstellung der zweifarben in-situ optischen Fernfeldlithographie (entnommen aus [DLS<sup>+</sup>08]).

gezielte spektrale Anpassung, z.B. an Resonatorstrukturen möglich ist, da die Emissionswellenlänge nur im Ensemble kontrolliert werden kann.

Um diese deterministische spektrale Anpassung zu ermöglichen, ist nach dem statistischen Stranski-Krastanow QP-Wachstum (siehe Kap. 2.1) eine spektroskopische Charakterisierung der QPe erforderlich. Viele dieser Verfahren basieren dabei auf der Verwendung von Markerstrukturen [NMB<sup>+</sup>13, PLZ<sup>+</sup>14, KKAN13, SDBS15] (siehe Abb. 5.1 (b)), um die geforderte räumliche Anpassung zu ermöglichen. Die QPe werden hierfür bei Tieftemperatur auf ihre optischen Eigenschaften hin charakterisiert und die Positionen relativ zu den Markern gespeichert. Die Positionierung der Bauteile erfolgt anschließend ex-situ in einem Standard EBL-Prozess bei Raumtemperatur, welcher an den Markerstrukturen ausgerichtet wird. Dieses Verfahren bietet neben der spektralen Anpassung den zusätzlichen Vorteil einer vereinfachten Probenstrukturierung durch die Anwendung von bereits etablierten Lithographieverfahren. Damit einher geht jedoch der Nachteil einer verschlechterten Positionierungsgenauigkeit, welcher durch den zusätzlichen Markererfassungsprozess verursacht wird. Zudem sind zusätzliche Probentransfer- und Prozessierungsschritte notwendig, welche bei manchen Bauteillayouts unter Umständen nicht möglich sind.

Bei den deterministischen in-situ Methoden (siehe Abb. 5.1 (c)) wird sowohl die Probencharakterisierung, als auch die Bauteilstrukturierung in einer einzigen Anlage, ohne die Verwendung von Markerstrukturen, vorgenommen. Bei der Nutzung von optischer Fernfeldlithographie, wie in [DLS<sup>+</sup>08] beschrieben, wird die Probe mit einem photosensitiven Lack beschichtet, welcher für Licht mit einer Wellenlänge  $> 750$  nm insensitiv ist und somit durch einen Laser dieser Wellenlänge charakterisiert werden kann. Wurden geeignete QPe lokalisiert, wird ein zweiter Laser mit einer Wellenlänge von 532 nm verwendet, um Strukturen in den Lack zu schreiben. Obwohl hier bereits eine erfolgreiche Anpassung

Verfahren	in-situ	Spektrale Anpassung	Räumliche Genauigkeit $\sigma$	Quelle
Kathodolumineszenz-Lithographie	Ja	Ja	34 nm	diese Arbeit
Optische Fernfeldlithographie	Ja	Ja	$> 50 \text{ nm}^1$	Dousse <i>et al.</i> [DLS <sup>+</sup> 08]
Markerbasierte $\mu$ -Photolumineszenz	Nein	Ja	44 nm	Sapienza <i>et al.</i> [SDBS15]
Markerbasierte Kathodolumineszenz	Nein	Ja	$71 \text{ nm}^2$	Nogues <i>et al.</i> [NMB <sup>+</sup> 13]
Markerbasierte SEM flach vergrabener QPe	Nein	Nein	16 nm	Pfeiffer <i>et al.</i> [PLZ <sup>+</sup> 14]
Wachstum auf vergrabenen Nanolöchern	Nein	Nein	50 nm	Schneider <i>et al.</i> [SSS <sup>+</sup> 08]
Wachstum auf vergrabenen Oxidaperturen	Nein	Nein	$300 \text{ nm}^3$	Strittmatter <i>et al.</i> [SHS <sup>+</sup> 12]

**Tabelle 5.1:** Vergleich der Positionierungsgenauigkeiten verschiedener deterministischer Ansätze.

von QP und Mikroresonator vorgenommen werden konnte, ist dieser Ansatz durch die verwendete Laserlithographie auf eine maximale Strukturgröße von ca. 700 nm begrenzt. Einen attraktiven Alternativansatz bietet die in dieser Arbeit vorgestellte in-situ KLL [GGS<sup>+</sup>13], welche die dosisabhängige Lackcharakteristik nutzt, um bei niedrigen Dosen eine QP-Charakterisierung mit Hilfe von KL-Spektroskopie durchzuführen, um bei hohen Dosen positionierte Strukturen mit Abmessungen von unter 100 nm in den Lack zu schreiben.

1 Angegeben ist nur, ab welcher räumlichen Verschiebung der Probe eine Veränderung im Signal zur Positionsbestimmung feststellbar ist. Die Genauigkeit zur Positionierung von Strukturen relativ zu den QPen ist nicht weiter angegeben.

2 Für die Umrechnung auf  $\sigma$  wurde der in der Arbeit angegebene Mittelwert mit dem Median gleichgesetzt.

3 Entsprechend einer Simulation der Oberflächenverzerrung.

## 5.2 Kathodolumineszenzlithographie

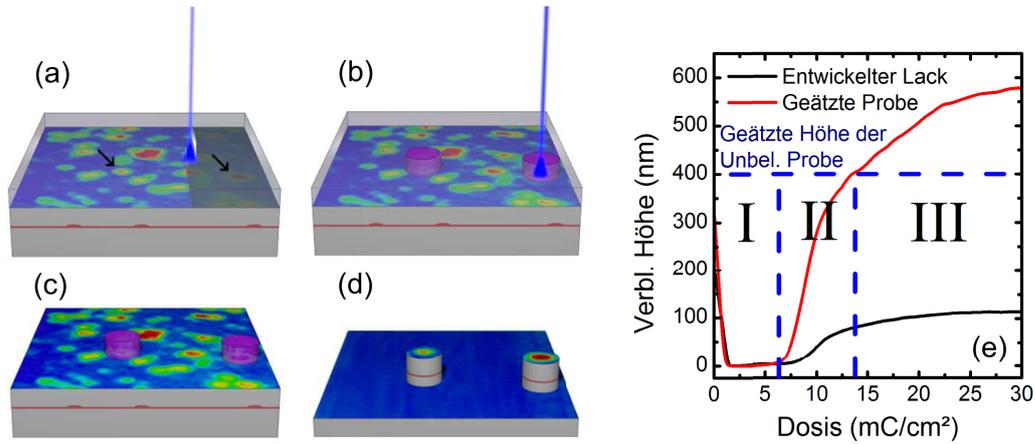
In den folgenden Kapiteln wird zunächst der KLL-Prozess vorgestellt, worin vor allem auf die Kartierung der Probenlumineszenz, die Strukturdefinition in der Lackschicht, die Lackentwicklung und den Ätzprozess zum Strukturübertrag eingegangen wird. Der Prozess wird daraufhin beispielhaft gezeigt, indem einzelne QPe in Mesastrukturen mit Durchmessern von unter 1  $\mu\text{m}$  integriert werden. Die daran anschließende spektroskopische Untersuchung spiegelt sowohl die erfolgreiche Isolation der einzelnen QPe, sowie die gute optische Qualität wider, welche nicht mehr durch andere Lichtemitter überlagert ist.

### 5.2.1 Schematischer Ablauf

Eine in-situ Tieftemperaturstrukturierung verbunden mit einer detaillierten Vorcharakterisierung kombiniert die Vorteile der KL-Spektroskopie mit der hohen erreichbaren Auflösung der EBL. Sie stellt aber auch eine Herausforderung für die am Prozess beteiligten Komponenten dar. Der Prozessablauf der KLL ist in Abb. 5.2 schematisch dargestellt und beginnt mit dem Aufschleudern des tieftemperaturfähigen, elektronenstrahlsensitiven Lacks PMMA, dessen Eigenschaften in Kap. 4.2.3 ausgiebig untersucht worden sind. Nach dem Einbau in die KLL-Anlage und dem langsamen Abkühlen auf eine Temperatur von 5 K, erfolgt die in Abb. 5.2 (a) dargestellte Charakterisierung der QP-Probe anhand ihrer optischen Eigenschaften. Aus der für die Positionierung aufgenommenen Lumineszenzkarte können nun QPe mit geeigneten spektralen Eigenschaften ausgewählt, sowie deren Positionen durch einen 2D-Gaussfit mit einer Genauigkeit von  $\sigma_r^{Pos} = 25 \text{ nm}$  (siehe Abb. 5.7) aus der integrierten QP-Intensität extrahiert werden. Mit den gewonnenen QP-Positionen erfolgt im nächsten Schritt die Strukturierung (b) des Lacks, wobei die Strukturen relativ zu den ausgesuchten QPen mit einer Genauigkeit von  $\sigma_r^{Lit} = 24 \text{ nm}$  ausgerichtet werden können. Je nach eingebrachter Dosis verbleibt dank der Lackcharakteristik von PMMA (siehe Kap. 4.2.1 und Abb. 5.2 (e)) nach dem Entwickeln (Abb. 5.2 (c)) entweder kein (Bereich I) oder nur invertierter (Bereich II und III) und unbelichteter Lack auf der Probenoberfläche. Dieser dient während des darauffolgenden ICP-RIE-Ätzschritts als Maske und trägt dazu bei die geschriebenen Strukturen in die darunterliegende Probe zu übertragen.

#### Kartierung der Probenlumineszenz

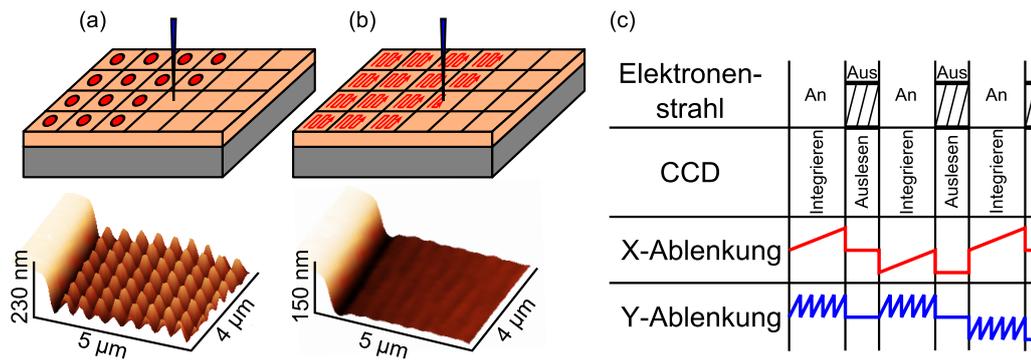
Bei der Kartierung der Probenlumineszenz ist insbesondere darauf zu achten, dass die eingebrachte Dosis unter der Onset Dosis von PMMA bleibt (in dem in Abb. 5.2 (e) dargestellten Bereich I). Dabei wird eine Flächendosis  $D_{\text{map}}$  von



**Abbildung 5.2:** (a) bis (d): Schematische Darstellung der Kathodolumineszenzlithographie. Zur Bestimmung der Positionen der QPe wird im ersten Schritt (a) eine Kathodolumineszenzkarte der Emission aufgenommen. (b) Anschließend erfolgt nach der Auswahl geeigneter QPe eine gezielte Überbelichtung an deren Positionen. (c) Nach dem Entwickeln bleibt eine invertierte PMMA-Maske zurück, welche in (d) in das darunterliegende Substrat übertragen wird. (e) Kontrastkurve des Lacks und Höhenprofil der in das Substrat geätzten Kontrastkurve. Während der Kartierung wird der Lack mit einer Dosis belichtet, welche im Bereich I der entwickelten (e, schwarz) Kontrastkurve liegt. Diese ergibt dann die in (e, rot) dargestellte Materialhöhe der geätzten Probe. Je nach gewünschter Strukturhöhe wird zur Lithographie eine Dosis eingebracht, welche in den Bereichen II oder III liegt. In Bereich II entstehen dabei Strukturen, welche eine geringere Höhe als die durch den unbelichteten Lack geschützte Probenoberfläche aufweisen.

$$D_{\text{map}} = \frac{I_S \cdot t_{\text{px}}}{\Delta x_{\text{px}} \cdot \Delta y_{\text{px}}} \quad (5.1)$$

in den Lack eingebracht, wobei  $I_S$  für den verwendeten Strahlstrom,  $t_{\text{px}}$  für die Integrationszeit, sowie  $\Delta x_{\text{px}}$  und  $\Delta y_{\text{px}}$  für den Abstand der Kartierungspixel stehen. Bei einem üblichen Strahlstrom von 0,5 nA und einem Kartierungspixelabstand von 500 nm in X- und Y-Richtung verbleiben bei einer Schwellendosis von 10 mC/cm<sup>2</sup> also lediglich 50 ms Integrationszeit pro Pixel. Es ist für diesen ersten Schritt der Kartierung also eine zwingende Voraussetzung, dass ausreichend helle Proben zur Verfügung stehen. Diese müssen dann bei einer hohen Setupeffizienz, also einer hohen Wahrscheinlichkeit die erzeugten Photonen auch zu detektieren, vermessen werden. Ebenfalls wichtig ist es, die in diesem Schritt eingebrachte Dosis gleichmäßig über den kartierten Bereich zu verteilen. Abb. 5.3 zeigt den Einfluss auf die entwickelte Lackschicht bei einem normalen für die KL-Spektroskopie üblichen punktförmigen Abrastern (a) und der für die KLL notwendigen mäanderförmigen Dosisverteilung (b). Die Untersuchungen hierfür wurden jeweils an der Flanke der einsetzenden Invertierung durchgeführt (Abb. 5.2 (e), Bereich II), um



**Abbildung 5.3:** (a) und (b) Schematische Darstellung der beiden Kartierungsmodi und zugehörige AFM Aufnahmen (unten). In (a) werden die Spektren Punkt für Punkt aufgenommen, was nach der Entwicklung in einer Noppenstruktur des Lacks resultiert. In (b) hingegen wird jeder Pixel mäanderförmig abgerastert um die eingebrachte Dosis homogener zu verteilen. Deutlich zu erkennen ist die Verbesserung in der AFM Aufnahme. (c) Darstellung der erhöhten Anforderungen an die Synchronisierung der einzelnen beteiligten Komponenten. Der Fokus liegt auf der Strahlaustastung, welche dafür sorgt, dass während der Datenverarbeitung keine ungewollte Belichtung auftritt.

selbst bei einer geringen Dosisänderung eine starke Änderung der verbleibenden Lackhöhe zu erreichen. Beim punktförmigen Abrastern der Probe wird die gesamte Dosis an einem einzigen Punkt eingebracht. Dies führt dazu, dass an diesem Punkt eine starke Invertierung des Lacks auftritt, was nach dem Ätzen zu den in (a) dargestellten „Nanopoppen“ führt. Besser ist die in (b) vorgestellte Methode, bei der die eingebrachte Dosis pro Kartierungspixel mäanderförmig auf die Fläche des untersuchten Pixels verteilt wird. Dies führt zu einer gleichmäßig eingebrachten Dosis, wie in der AFM-Aufnahme des Lacks zu erkennen ist. Der notwendige, durch die Lithographiesoftware gesteuerte Ablauf ist in Abb. 5.3 (c) dargestellt. Während der Detektion der Lumineszenz eines einzelnen Pixels der Lumineszenzkarte sorgen die X- und Y- Ablenkung des Elektronenstrahls dafür, dass die Dosis innerhalb des Pixels verteilt wird, während die CCD die Lumineszenz aufintegriert. Ist die vorgegebene Belichtungszeit erreicht, wird durch die Beambanking-Einheit der Elektronenstrahl blockiert, während das Spektrum der CCD ausgelesen und an den Computer übermittelt wird. Nach erfolgreicher Datenverarbeitung wird der Elektronenstrahl auf dem nächsten Pixel der Lumineszenzkarte freigegeben und der Prozess beginnt von neuem.

Ist die Lumineszenzkarte fertig erstellt, kann aus der integralen Lumineszenz in einem eingeschränkten Spektralbereich ein QP ausgewählt werden und dessen Position über einen 2D-Gaußfit an die Gesamtintensität extrahiert werden. Hierbei ist jedoch darauf zu achten, dass der QP von anderen QPen räumlich oder spektral getrennt ist, damit die integrierte Intensität aller Linien zum Signal beitragen kann.

### Strukturdefinition

Bei der Strukturdefinition muss berücksichtigt werden, dass bereits bei der Kartierung eine Dosis von  $D_{\text{map}}$  in den Lack eingebracht wird. Hinzu kommt, dass es durch den Proximity-Effekt noch zu einer Umverteilung der geschriebenen Dosis kommt (siehe Kap. 4.3). Geht man davon aus, dass die Kontrastkurve  $K(D)$  die dosisabhängige, verbleibende Lackhöhe (Materialhöhe) angibt, so wird mit Hilfe von Gl. 4.2 durch die geschriebene Dosis  $D(r)$  das Höhenprofil

$$h(r) = K \left( D_{\text{map}} + \int D(r') f(r - r') d^2 r' \right) \quad (5.2)$$

mit Hilfe der Punktspreizfunktion (PSF)  $f(r)$  erzeugt. Sinnvollerweise liegt die dabei eingebrachte Dosis in den Bereichen II und III von Abb. 5.2 (e), um eine Strukturformung hervorzurufen. II definiert dabei den Bereich in welchem die resultierende Strukturhöhe nach dem Ätzen kleiner als die erreichbare Strukturhöhe des unbelichteten Bereichs ist. Hier erfolgt z.B. die Strukturierung von Mikrolinsen (siehe Kap. 6.2.2). In Bereich III bleiben hingegen Reste des invertierten Lacks auf den definierten Strukturen zurück, was bei einer Ätztiefe, bei welcher der Halbleiter im unbelichteten Bereich nicht angeätzt wird, zu oben abgeflachten Strukturen führt. Wird tiefer geätzt, um das Höhenprofil dennoch übertragen zu können, muss in Kauf genommen werden, dass QPe in den nicht kartierten Regionen ebenfalls weggeätzt werden.

### Lackentwicklung

Sind die Strukturen definiert, erfolgt die Lackentwicklung nach dem in Kap. 4.2.1 beschriebenen und vom Hersteller *Allresist* empfohlenen Verfahren, welches zur Anwendung in der 3D-Lithographie (siehe Kap. 6.2.2) adaptiert und optimiert wurde. Dabei wird die belichtete Probe für 5 s in AR 600-56, basierend auf Methylisobutenketon (MIBK), bei Raumtemperatur geschwenkt, anschließend in Isopropylalkohol (IPA) für 1 s gespült und der Entwicklungsprozess durch deionisiertes Wasser gestoppt. Anschließend wird die Probe mit sauberem gasförmigen Stickstoff getrocknet.

Es stellt sich heraus, dass die zur Fabrikation notwendigen Kontrastkurven eine durch die Lagerung der belackten Probe bedingte Veränderung der Onset Dosis aufweisen, welche diese innerhalb von 6 Monaten auf etwa 20% reduziert. Dadurch empfiehlt es sich, nur mit frisch belacktem Probenmaterial zu arbeiten oder vor jedem Lithographieprozess eine Kalibration der Mapping- und Belichtungsdosis durchzuführen, was zum Beispiel durch die Aufnahme einer Kontrastkurve geschehen kann.

### ICP-RIE Ätzprozess

Nach der Entwicklung der Strukturen erfolgt der Ätzprozess in der ICP-RIE SI 500 der Firma *Sentech*, wobei eine Mischung aus Chlor, Bortrichlorid und Argon als Prozessgas verwendet wird. Mit dieser Mischung wird die Probe, welche sich auf einem mit Siliziumnitrid beschichteten Aluminium Probenhalter befindet, nach den in Tab. 5.2 beschriebenen Parametern geätzt.

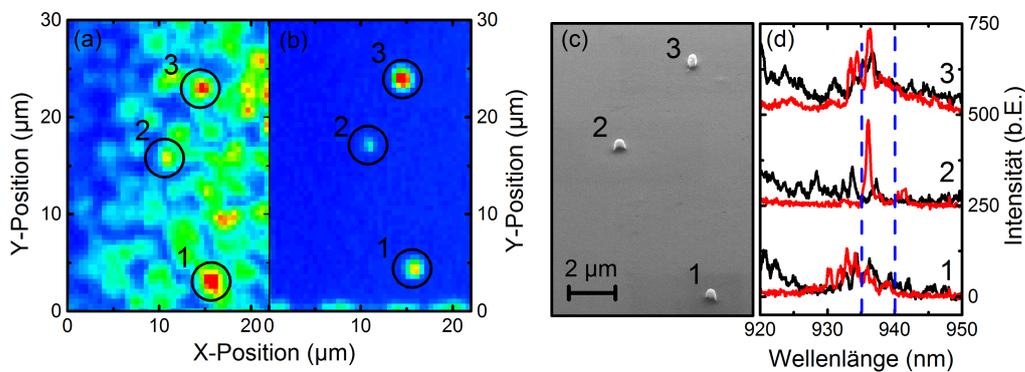
Mit Hilfe der Kontrastkurve der Kalibrierungsprobe kann die Ätzrate, sowie das Ätzverhältnis zwischen PMMA und GaAs bestimmt werden, aus welcher sich die notwendige Zeitdauer ergibt um auf der KLL-Probe die gewünschte Ätztiefe zu erreichen. In Abb. 5.3(e) ist zu erkennen, wie durch das Übertragen der Kontrastkurve (schwarz) in das darunterliegende Material eine Kontrastkurve der Ätztiefe (rot) entsteht, nach welcher die notwendigen Dosen zur Belichtung, sowie die erzielbaren Ätztiefen bestimmt werden können. Um eine erhöhte Reproduzierbarkeit zwischen den verschiedenen geätzten Proben zu erreichen, ist vor dem Strukturübertrag eine Konditionierung der Ätzanlage erforderlich. Hierfür wird zur Reinigung ein 30 minütiges Sauerstoffplasma und anschließend ein 90 minütiges Ätzen eines GaAs-Wafers durchgeführt. Dadurch entsteht eine reproduzierbare Seitenwandbelegung der Ätzkammer, wodurch vergleichbare Ätzbedingungen erreicht werden. Die Genauigkeit des Ätzprozesses ergibt sich dabei aus der Ätzgeschwindigkeit des Lacks und des Probenmaterials, sowie der exakten Bestimmung des Zeitpunkts, ab welchem die unbelichtete Lackschicht vollständig durchgeätzt wurde. Diese kann mittels Laserinterferometrie in-situ abgeschätzt und auf eine Genauigkeit von etwa 5 s angegeben werden. Bei einer typischen Ätzgeschwindigkeit von 50 bis 60 nm/min für unbelichtetes PMMA und einer PMMA-Schichtdicke von meist 200 nm kann die gewünschte Ätztiefe von 400 nm in GaAs (Ätzgeschwindigkeiten um 100 bis 130 nm/min) auf ca. 10 nm genau erreicht werden.

#### 5.2.2 Deterministische Herstellung von sub- $\mu\text{m}$ Mesostrukturen

Zur Demonstration des beschriebenen KLL Prozesses [GGS<sup>+</sup>13] wird im Folgenden gezeigt, wie QPe in Mesostrukturen isoliert werden. Hierfür wird eine Probe mit InGaAs-QPen niedriger Dichte verwendet und mit 200 nm PMMA belackt (Probenlayout siehe Tab. C.1). Die Probe weist dabei symmetrisch im Abstand von 150 nm um die QP-Schicht angeordnete AlGaAs-Barrieren auf, welche eingebrachte Ladungsträger an der Diffusion zur Oberfläche und in das Substrat hindern. Ein 5x5 mm<sup>2</sup> großes Stück der Probe wird in diesem Experiment unter 45° zum einfallenden Elektronenstrahl und somit senkrecht zur Sammeloptik eingebaut und auf 5 K abgekühlt. Die Probenorientierung wirkt sich da-

Parameter	Sollwert
Druck	0,08 Pa
CCP Leistung	24,5 W
ICP Leistung	100 W
Bias	-213 V
CL <sub>2</sub>	1,3 sccm
BCl <sub>3</sub>	4,3 sccm
Ar	1,1 sccm
Träger	Al + SiN
Träger-Temperatur	20° C

**Tabelle 5.2:** Parameter für das trockenchemische Ätzen.

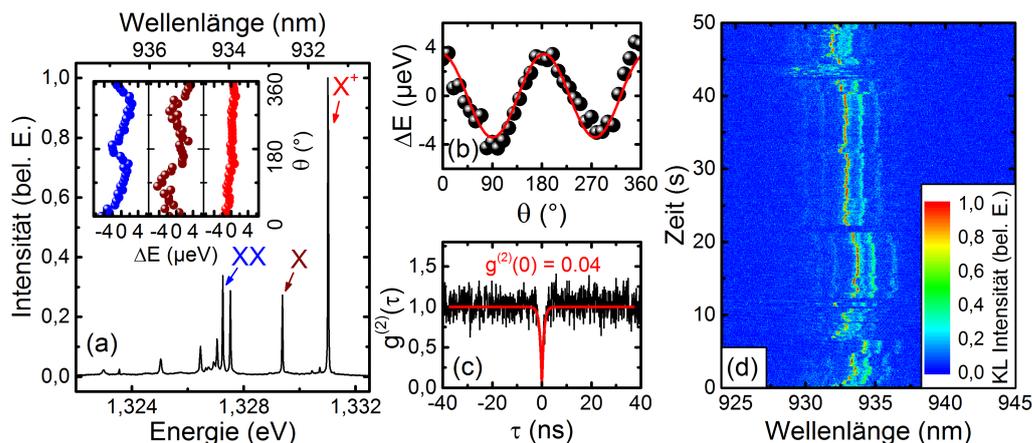


**Abbildung 5.4:** (a) Für die Positionierung der Mesenstrukturen erstellte KL-Karte in linearer Farbskalierung. Die eingekreisten Lumineszenzpunkte geben die Bereiche an, auf welche der 2D-Fitalgorithmus angewendet wurde, um die QP-Positionen zu extrahieren. (b) Lumineszenzkarte des gleichen Bereichs nach der Prozessierung der Mesenstrukturen in linearer Farbskalierung. (c) SEM-Aufnahme der trockenengeätzten Mesen mit Strukturdurchmessern  $< 1 \mu\text{m}$ . (d) Spektren, welche während der KLL-Kartierung (schwarz) und nach der Fertigung der Mesen (rot) aufgenommen wurden. Die blauen Linien markieren den spektralen Bereich, in welchem die integrale Intensitätskarte in (a) und (b) erstellt und die Positionierung durchgeführt wurde.

bei zwar nachteilig auf den Lithographieprozess aus, allerdings wird dadurch eine erhöhte Sammeleffizienz der Probenlumineszenz erreicht, welche nach Gl. (5.1) einen niedrigeren Doseintrag während der Charakterisierung ermöglicht. Das Ergebnis der Kartierung bei einer Beschleunigungsspannung von 10 kV und einem Strahlstrom von 0,5 nA ist in Abb. 5.4 (a) gezeigt. Zu erkennen ist ein  $22 \times 30 \mu\text{m}^2$  großer Ausschnitt der Lumineszenzkarte, wobei die integrierte Intensität in einem Wellenlängenbereich von 930 bis 940 nm linear skaliert und farblich codiert dargestellt ist. Aus dieser Karte sind drei isolierte Emissionspunkte mit den Nummern 1 bis 3, ausgewählt worden, um über einen 2D-Gaußfit den Ursprungsort der Emission zu bestimmen. Die extrahierten Spektren im Zentrum der Leuchtpunkte sind in Abb. 5.4 (d) in schwarz dargestellt, ebenso wie der Spektralbereich

(blaue Linien) in welchem die Anpassung durchgeführt wurde. Um die Mesenstrukturen in den Lack zu übertragen, wurde ähnlich zu der in Kap. 4.3 durchgeführten Bestimmung der PSF, der Lack über den ausgewählten QPen mit einer eingebrachten Punkt-Dosis von 50 pC invertiert. Nach dem, hier vom Standardprozess abweichenden, Kaltentwickeln in IPA bei  $-35^\circ\text{C}$  und dem Übertragen in das darunterliegende Substrat mittels ICP-RIE, resultieren die in Abb. 5.4 (c) dargestellten Mesenstrukturen mit einem Durchmesser von 450 nm. Eine Lumineszenzkarte der entstandenen Mesen ist in Abb. 5.4 (b) dargestellt und zeigt, dass durch den Ätzprozess alle nicht-selektierten QPe entfernt wurden und nur noch die einzelnen, in Mesen integrierten QPe optisch aktiv sind. KL-Spektren dieser QPe sind in Abb. 5.4 (d) in rot dargestellt. Deutlich zu erkennen ist, dass in einem Spektralbereich von 30 nm nur noch die selektierte Lumineszenz zu detektieren ist. Die großen Linienbreiten sind dabei auf eine geringe spektrale Auflösung zurückzuführen, da zum Erlangen eines stärkeren Probensignals der Monochromator-Eintrittsspalt auf  $200\ \mu\text{m}$  vergrößert wurde. Mit der vorgestellten Methode wurden nach der gleichen Vorgehensweise Mesenstrukturen mit Durchmessern von 800 nm, 450 nm und 350 nm erzeugt und dahingehend untersucht, ob der ausgewählte QP nach der Strukturierung noch optisch aktiv ist. Dabei konnten bei Durchmessern von 800 nm und 43 hergestellten Mesenstrukturen eine Ausbeute von 89 %, bei Mesen mit Durchmessern von 450 nm 67 % Ausbeute und für Durchmesser von 350 nm noch 50 % erreicht werden. Ursächlich für die verringerte BauteilAusbeute ist dabei die durch Oberflächenrekombination zunehmende nichtstrahlende Rekombination der Ladungsträger [ATM<sup>+</sup>08, BF02] und die für die Lithographie unvorteilhafte  $45^\circ$ -Orientierung der Probe.

Zur Evaluation der optischen Qualität der hergestellten Strukturen wurde eine optische Charakterisierung der Mesen mittels  $\mu$ -PL durchgeführt. Der Fokus liegt dabei auf Mesa Nummer 3 der in Abb. 5.4 (c) dargestellten Strukturen. Ein hochauflösendes Spektrum dieser QP-Mesa ist in Abb. 5.5 (a), zusammen mit den eingebetteten polarisationsaufgelösten Linienpositionen dargestellt, welche in Kombination mit den Leistungsserien dazu dienen, die jeweiligen exzitonischen Komplexe des integrierten QPes zu ermitteln. Nach Entfaltung der gaussförmigen Verbreiterung des Setups von  $23\ \mu\text{eV}$  können Linienbreiten von  $\gamma_X = 15\ \mu\text{eV}$ ,  $\gamma_{XX} = 13\ \mu\text{eV}$  und  $\gamma_{X^+} = 9\ \mu\text{eV}$  extrahiert werden, welche für eine gute optische Qualität der QPe sprechen. Aus den polarisationsaufgelösten Linienpositionen kann weiterhin die FSS ermittelt werden, welche durch Anpassung eines sinusförmigen Verlaufs an  $(E_X - E_{XX}) - (\overline{E_X} - \overline{E_{XX}})$  (siehe Abb. 5.5 (b)) zu  $E_{\text{FSS}} = 3,4\ \mu\text{eV}$  bestimmt ist. Diese ist in der Größenordnung der natürlichen Linienbreite (ca.  $0,67\ \mu\text{eV}$ ) und zeigt, dass der QP für Experimente zur Polarisationsverschränkung geeignet ist. Weiterhin ist in Abb. 5.5 (c) eine Autokorrelationsmessung an dem positiv geladenen Trion dargestellt, wel-



**Abbildung 5.5:** (a) Hochaufgelöstes  $\mu$ -PL Spektrum des QPes, welcher in Mesa Nr. 3 (vergleiche Abb. 5.4) integriert ist. Anhand der eingebetteten Polarisationsserien, mit  $\theta$  als Polarisationswinkel, in Kombination mit Leistungsserien (nicht gezeigt) kann eine eindeutige Zuordnung der unterschiedlichen exzitonischen Komplexe erfolgen. Aus der polarisationsabhängigen Energiedifferenz von X und XX (b) kann die Feinstrukturaufspaltung zu  $E_{\text{FSS}} = 3,4 \mu\text{eV}$  bestimmt werden. (c) zeigt die Autokorrelation des positiv geladenen  $X^+$  mit  $g^{(2)}(0) = 0,04$ . In (d) ist die in KL prominentere spektrale Diffusion der Emissionslinien zu erkennen. Aus dem für alle Linien gleich verlaufenden Verhalten kann geschlossen werden, dass Mesa Nr. 3 nur einen einzigen QP beinhaltet.

che bereits ohne Berücksichtigung der Detektorzeitaufösung  $g^{(2)}(0) = 0,04$  aufweist. Diese nahezu hintergrundfreie Einzelphotonenemission wird vor allem durch das Wegätzen der umgebenden QPe ermöglicht. Dies zeigt, dass durch die Isolation eines einzelnen Emitters Mehrphotonenereignisse, verursacht durch andere QPe oder die Benetzungsschicht, stark unterdrückt werden. Dass es sich bei dem in Abb. 5.5 (a) gezeigten Spektrum um die Emission eines einzelnen QPes handelt, kann aus der mittels KL-Spektroskopie aufgenommenen Zeitserie in Abb. 5.5 (d) geschlossen werden. Durch die höherenergetische Anregung der Primärelektronen ist in KL die spektrale Diffusion der QP-Emission stärker ausgeprägt als in rein optischer Anregung. Dieser auf den ersten Blick nachteilig scheinende Effekt hat jedoch den Vorteil, dass alle Emissionslinien eines einzelnen QPes den gleichen zeitlichen und spektralen Verlauf aufweisen. Werden also zwei QPe zur selben Zeit angeregt, so treten wie von Rodt *et. al* [RSP<sup>+</sup>05] dargelegt durch Umladungseffekte von Defekten in der direkten Umgebung der QPe zwei unterschiedliche spektrale Diffusionsmuster auf. Wie Abb. 5.5 (d) jedoch zeigt, ist nur ein Diffusionsmuster vorhanden, woraus geschlossen werden kann, dass sich in der untersuchten Mesa nur ein einziger, optisch aktiver QP befindet - die Isolation durch den KLL-Prozess also erfolgreich verlief.

## 5.3 Genauigkeit der räumlichen und spektralen Anpassung

Zentrale Komponente bei der Herstellung von Resonatorstrukturen ist nach Gl. (2.25) eine möglichst exakte spektrale und räumliche Positionierung eines Emitters in dem elektrischen Feld des Resonators. Dabei ist für die Herstellung von z.B. photonischen Kristallkavitäten eine räumliche Positionierungsgenauigkeit von 40 nm notwendig [KKAN13], wobei die erforderliche Genauigkeit der spektralen Anpassung stark von der erzielten Resonatorgüte abhängig ist. Es ist jedoch selbst im Idealfall eines perfekten Resonators eine gewisse Toleranz durch die temperaturabhängige Verschiebung der QP-Emission gegeben (siehe Kap. 6.4.3). Diese beträgt bei dem hier untersuchten Materialsystem etwa 1 nm für eine Temperaturänderung von 30 K (siehe Abb. 6.17 (a)) und ist durch die verschlechterte optische Qualität der Emission bei Temperaturen über 60 K limitiert [SKG<sup>+</sup>15]. Die Genauigkeit, mit welcher ein QP-Emitter im Bezug auf eine lithographierte Struktur positioniert werden kann, sowie die spektrale Verstimmung zwischen dem ausgewählten QP, vor und nach der Integration in die Struktur, sollen im Folgenden untersucht werden.

### 5.3.1 Laterale Positionierungsgenauigkeit

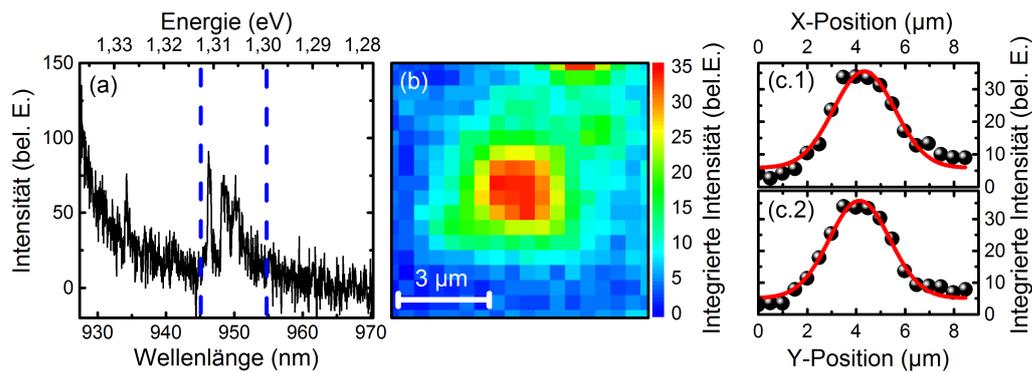
Zur Bestimmung der lateralen Positionierungsgenauigkeit des KLL-Prozesses werden drei Fehlerquellen untersucht:

- Örtlich-zeitliche Drift des Kryostaten
- Ungenauigkeit der Positionsbestimmung
- Laterale Abweichung des Lithographieprozesses

Die Bestimmung der ersten beiden Fehlerquellen erfolgt anhand einer statistischen Untersuchung der wiederholten Positionsbestimmung eines QPes. Zur Analyse der dritten Fehlerquelle werden Fadenkreuze auf Nanolöcher in einem Ti/Pt-Film lithographiert, welche einen darunterliegenden Quantenfilm abschatten. Die Kombination der drei Fehlerquellen gibt schlussendlich die resultierende Positionierungsgenauigkeit des KLL-Prozesses an. Die Untersuchungen in diesem und den folgenden Kapiteln werden alle unter einer Orientierung der Probenoberfläche von 90° zum einfallenden Elektronenstrahl durchgeführt.

#### Positionsbestimmung

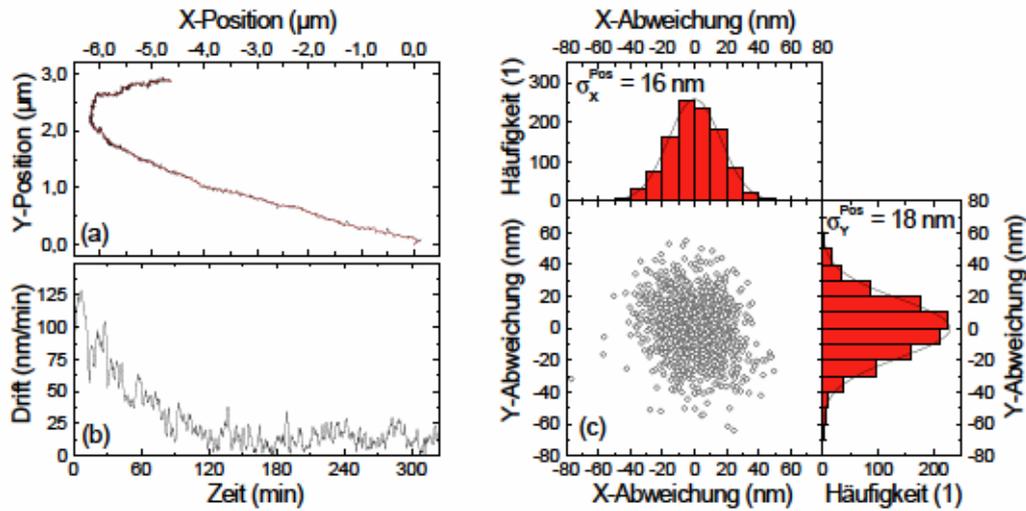
Um die Genauigkeit der Positionsbestimmung ermitteln zu können, wird die in Tab. C.4 beschriebene Probenstruktur mit einer unteren DBR-Sektion für eine erhöhte Auskoppeleffizienz der QP-Lumineszenz verwendet. Die Probe weist eine ausreichend geringe QP-Dichte



**Abbildung 5.6:** (a) KL-Spektrum des QPes, welcher für die wiederholte Bestimmung seiner Position verwendet wurde. Die blauen Linien geben den Spektralbereich an, über den die integrierte Intensität für die Lumineszenzkarte (b) errechnet wurde. Anhand dieser Karte wird die Gauß-Anpassung zur Positionsbestimmung vorgenommen. (c) Schnitte durch die integrierte QP-Intensität in X- und Y-Richtung. Die rote Linie stellt einen Schnitt durch den 2D-Gaußfit dar.

im Bereich von unter  $10^7 \text{ cm}^{-2}$  auf, um einen isolierten QP für die statistische Analyse zu finden. Das Spektrum des QPes, dessen Position über mehrere Stunden hinweg bestimmt wird, ist in Abb. 5.6 (a) dargestellt. Die blauen Linien geben dabei den Spektralbereich an, über welchen die QP-Lumineszenz integriert wurde, um die in Abb. 5.6 (b) dargestellte Lumineszenzkarte zu erhalten. Diese weist ein Signal-zu-Rausch Verhältnis (SNR - engl. signal-to-noise ratio) von 24 auf und wird verwendet, um über die in Kap. 5.2.1 vorgestellte Methode einer 2D-Gaußanpassung die Position des QPs zu extrahieren. Ein Schnitt durch das Zentrum der integralen Intensität der Lumineszenzkarte aus Abb. 5.6 (b) ist, zusammen mit der 2D-Gaußanpassung, für die X- und Y-Richtung in Abb. 5.6 (c) dargestellt.

Die über einen Zeitraum von 5,5 h wiederholt extrahierten 1061 QP-Positionen sind in Abb. 5.7 (a) als schwarze Punkte dargestellt. Um die Drift des Kryostaten von der Genauigkeit des Anpassungsalgorithmus zu trennen, ist in rot eine 5-Punkt Glättung der Daten vorgenommen worden. Beginnend am Koordinatenursprung weist die Probe eine durch die thermische Kontraktion des Kryostaten verursachte Drift von nahezu  $7 \mu\text{m}$  innerhalb einer Zeitspanne von 5,5 h auf. Durch die jeweiligen Zeitstempel der einzelnen Datenpunkte kann daraus der in Abb. 5.7 (b) dargestellte Betrag der Driftgeschwindigkeit in Abhängigkeit der verstrichenen Zeit ermittelt werden. Beginn der Messung ist dabei etwa 30 min nachdem der Kryostat seine Zieltemperatur von 5 K erreicht hat. Weitere 2 h später befindet er sich dann soweit im thermischen Gleichgewicht, dass eine mittlere Driftgeschwindigkeit von  $14 \text{ nm/min}$  auftritt. Dieser, durch die thermische Drift verursachte Versatz, ist die Hauptursache für die im weiteren Verlauf des Kapitels ermittelte Abweichung im Lithographieprozess. Es kann aber bereits hier abgeleitet werden, dass es für eine Anpassung



**Abbildung 5.7:** (a) Lateraler Drift des Probenhalters über eine Dauer von 5,5 h. In schwarz sind die gemessenen Positionen und in rot eine 5-Punkt Glättung der Daten dargestellt. (b) Die aus der Bewegung des Kryostaten errechnete Driftgeschwindigkeit, beginnend etwa 30 min nachdem die Zieltemperatur von 5 K erreicht wurde. (c) Die aus (a) berechnete Abweichung der QP-Position von der geglätteten Drift des Kryostaten. Dazu ist die jeweilige Abweichung in X- und Y-Richtung als Histogramm, welche mit einer Gaußfunktion angepasst wurde, dargestellt. Die Standardabweichung beträgt jeweils  $\sigma_X^{\text{Pos}} = 16 \text{ nm}$  und  $\sigma_Y^{\text{Pos}} = 18 \text{ nm}$ .

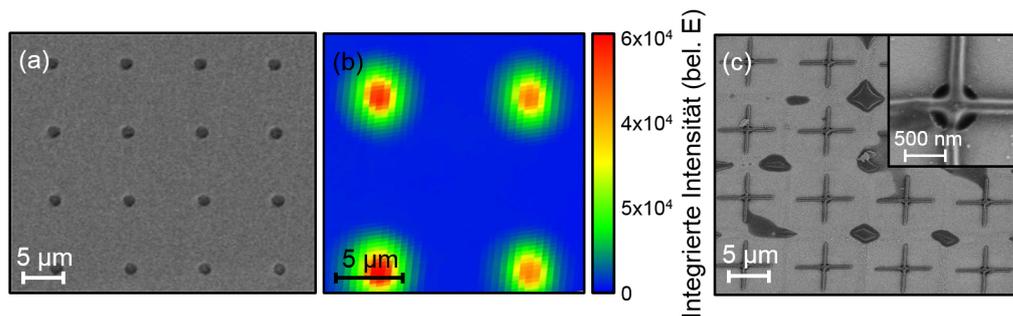
mit höchster Genauigkeit erforderlich ist, nach dem Einkühlen mindestens 2,5 h zu warten und den gesamten KLL-Vorgang in möglichst kurzer Zeit durchzuführen. Die in Abb. 5.8 dargestellten Strukturen wurden deshalb, um höchste Genauigkeiten zu erreichen, in weniger als 30 Sekunden strukturiert.

Aus der Abweichung der einzelnen gemessenen Positionen (in Abb. 5.7 (a), schwarze Punkte) von der thermischen Drift des Kryostaten (rote Linie) kann die Genauigkeit des Anpassungsalgorithmus ermittelt werden. Die relativen Abweichungen in X- und Y-Richtung sind dabei in Abb. 5.7 (c) dargestellt. Oben und rechts ist weiterhin die Verteilung entlang der einzelnen Richtungen mit angegeben. Aus der Anpassung einer Gaußverteilung kann die Standardabweichung in X und Y zu  $\sigma_X^{\text{Pos}} = 16 \text{ nm}$  und  $\sigma_Y^{\text{Pos}} = 18 \text{ nm}$  bestimmt werden. Die radiale Abweichung ergibt sich schließlich durch geometrische Addition zu  $\sigma_r^{\text{Pos}} = 25 \text{ nm}$ , was der Genauigkeit der Positionsbestimmung entspricht.

### Lithographiegenauigkeit

Die Ungenauigkeit, welche durch die nicht exakte Positionierung der Nanostruktur relativ zur ermittelten QP-Position zustande kommt, ist eng mit der zuvor behandelten Kryostatendrift verbunden.

Um die Auswirkungen dieser Fehlerquelle zu bestimmen, wird die in Tab. C.2 beschrie-



**Abbildung 5.8:** (a) SEM-Aufnahme des Ti/Pt-Films mit lithographierten Aperturen, welcher den darunterliegenden Quantenfilm abschirmt. (b) KL-Karte der Aperturen, integriert über den gesamten Spektralbereich des Quantenfilms. (c) SEM-Aufnahme der auf die Aperturen geschriebenen Fadenkreuze. Eingebettet ist eine Nahaufnahme eines positionierten Kreuzes dargestellt. Aus dem Vergleich des Mittelpunkts der Löcher mit dem Schnittpunkt der Kreuze kann der jeweilige Versatz bestimmt werden.

bene Probe mit einem Quantenfilm, welcher sich 165 nm unter der Oberfläche befindet, mit einem 70 nm dicken Ti/Pt-Film beschichtet. Dieser Film weist die in Abb. 5.8 (a) erkennbaren, mittels EBL definierten Aperturen mit Durchmessern von 650 nm bis hin zu 2,0 µm auf. Der Vorteil dieser Aperturen besteht darin, dass diese in SEM-Aufnahmen erkennbar sind, was für vergrabene QPe nicht gegeben ist. Zudem schatten die Aperturen die Lumineszenz des darunterliegenden Quantenfilms in definierter und kontrollierbarer Weise ab. Die so strukturierte Probe wird anschließend nach der in Kap. 4.2.1 beschriebenen Methode mit PMMA beschichtet und entsprechend dem KLL-Prozess aus Kap. 5.2.1 lithographiert. Dabei wird nach dem Einkühlen eine Wartezeit von 3 h eingehalten um den Kryostatendrift zu minimieren (vergleiche Abb. 5.7 (b)). In diesem Zusammenhang ist auch wichtig, dass die Kartierung der Lumineszenz in möglichst kurzer Zeit durchgeführt wird. Der gesamte KLL-Prozess wird daher in weniger als 30 Sekunden durchgeführt, wobei 15 Sekunden auf die Erstellung der KL-Karte, 10 Sekunden auf die Positionsbestimmung und 5 Sekunden auf die Lithographie der Kreuzmarker entfällt. Es ist zu erwähnen, dass die Lumineszenzkarten der kleinsten untersuchten Löcher mit einem Durchmesser von 650 nm bereits ein SNR von 530 aufweisen, was etwa 20 mal höher ist als das SNR der meisten untersuchten QPe. Daher kann davon ausgegangen werden, dass der Fehler, der durch die Positionsbestimmung der Aperturen entsteht, gegenüber der Positionierungsgenauigkeit vernachlässigbar klein ist. Um die Genauigkeit der Positionierung zu ermitteln, werden für verschiedene Aperturdurchmesser Fadenkreuze an die in Abb. 5.8 (b) dargestellten KL-Karten angepasst. Das Ergebnis der fertig entwickelten Strukturen kann der REM-Aufnahme in Abb. 5.8 (c) entnommen werden. Aus der eingebetteten Nahaufnahme kann der Mittelpunkt der Apertur mit dem Schnittpunkt des Fadenkreuzes verglichen und

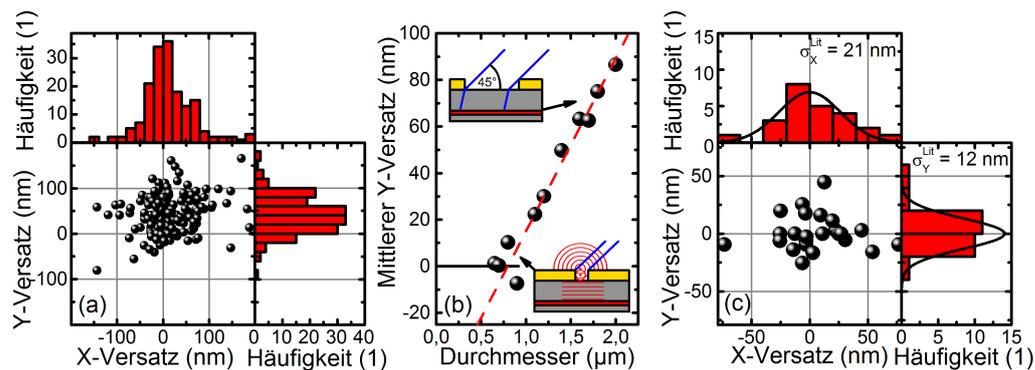
dadurch der Versatz zueinander bestimmt werden.

Die gemessenen Abweichungen sind in Abb. 5.9 (a) für alle untersuchten Aperturdurchmesser, zusammen mit den Histogrammen in X- und Y- Richtung, dargestellt. Zu erkennen ist dabei eine systematische Abweichung in Y-Richtung von etwa 50 nm. Schlüsselte man die mittleren Abweichungen nach der Größe der Apertur auf, so erhält man den in Abb. 5.9 (b) dargestellten Verlauf des Y-Versatzes. Zu erkennen ist ein vom Aperturdurchmesser abhängiger systematischer Versatz der Fadenkreuze in Y-Richtung. Bei großen Aperturdurchmessern wird die Position des Emitters in der Ebene des Quantenfilms gemessen (siehe Abb. 5.9 (b), Einbettung oben). Durch die, im Winkel von  $45^\circ$  in Y-Richtung angebrachte Sammeloptik (siehe Kap. 3.1), wird somit nicht die Lumineszenz senkrecht unterhalb der Apertur detektiert. Wird die Apertur jedoch kleiner und wird der Durchmesser vergleichbar mit der Lichtwellenlänge, so rückt das detektierte Emissionszentrum entsprechend dem Huygensschen Prinzip in die Ebene der Apertur (siehe Abb. 5.9 (b), Einbettung unten). Dadurch erfolgt eine aperturgrößenabhängige Verzerrung der orts aufgelösten Lumineszenz, wodurch ein systematischer Versatz in positiver Y-Richtung bei der Bestimmung der Aperturposition auftritt. Um diesen zu kompensieren, ist in Abb. 5.9 (b) in rot ein linearer Fit durch die systematische Abweichung mit dargestellt. Zu erkennen ist, dass ab einem Durchmesser von unter 800 nm keine nennenswerte systematische Abweichung mehr auftritt. Daher werden für die Bestimmung der lithographischen Positionierungsgenauigkeit nur die kleinsten Aperturdurchmesser von 650 nm und 700 nm berücksichtigt. Der Versatz dieses Subensembles mit insgesamt 24 Elementen ist in (c) zusammen mit den Häufigkeiten in X- und Y- Richtung dargestellt. Die Anpassung einer Gaußfunktion an die beiden Verteilungen liefert Standardabweichungen von  $\sigma_X^{\text{Lit}} = 21$  nm und  $\sigma_Y^{\text{Lit}} = 12$  nm. Die starke Abweichung in X-Richtung ist durch die in Abb. 5.7 (a) ermittelte stärkere Probedrift in diese Richtung zu erklären. Aus den beiden Standardabweichungen lässt sich nun eine radiale Genauigkeit der Strukturpositionierung von  $\sigma_r^{\text{Lit}} = 24$  nm errechnen.

Eine Faltung der Fehlerquellen, welche durch die Positionsbestimmung und durch die Positionierung entstehen, ergibt einen Gesamtfehler des KLL-Prozesses von

$$\sigma_{\text{KLL}} = \sqrt{(\sigma_r^{\text{Pos}})^2 + (\sigma_r^{\text{Lit}})^2} = 34 \text{ nm.} \quad (5.3)$$

Ein Vergleich der Positionierungsgenauigkeit mit anderen deterministischen Ansätzen ist in Tab. 5.1 zusammengefasst und zeigt die herausragende Genauigkeit der KLL. Dabei ist zu betonen, dass diese sogar in Kombination mit einer spektralen Anpassung gegeben ist.

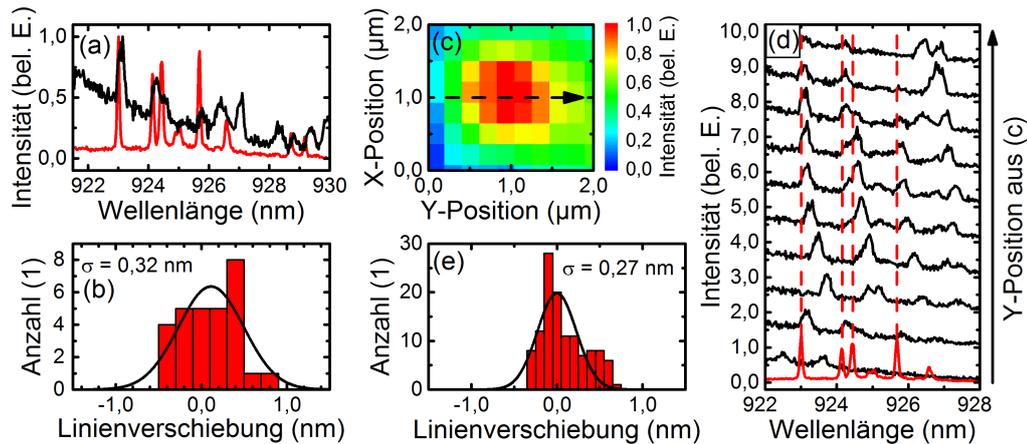


**Abbildung 5.9:** (a) Versatz zwischen Kreuzmarkern und Aperturen, zusammen mit den jeweiligen Verteilungen in X- und Y-Richtung. Zu Erkennen ist eine systematische Abweichung in Y-Richtung. (b) Mittlerer Y-Versatz in Abhängigkeit der Aperturgröße. In rot ist ein linearer Fit durch den systematischen Versatz, welcher durch die Anordnung der Sammeloptik verursacht wird, dargestellt. Eingebettet sind jeweils die Situationen für große und kleine Aperturdurchmesser. (c) Versatz zwischen den Kreuzmarkern, welche auf Aperturen mit Durchmessern von 650 nm und 750 nm angepasst wurden, zusammen mit den jeweiligen Verteilungen in X- und Y-Richtung. Die Standardabweichung beträgt jeweils  $\sigma_X^{Lit} = 21$  nm und  $\sigma_Y^{Lit} = 12$  nm.

### 5.3.2 Prozessbedingte spektrale Veränderung

Neben der räumlichen Positionierung ist für eine deterministische Herstellung von z.B. Resonatorstrukturen eine verlässliche Anpassung der spektralen Eigenschaften zwischen QP und Resonator erforderlich. Hierzu muss die spektrale Lage der QP-Emission im Rahmen der gegebenen Verstimmungsmöglichkeiten erhalten bleiben. Das gängigste Verfahren zur spektralen Verstimmung beruht auf der Temperaturabhängigkeit der Bandlückenenergie [PRB91], welche für den QP eine spektrale Verschiebung von ca. 2,8 meV (umgerechnet ca. 2 nm) ermöglicht, bevor über ca. 50 K zunächst eine störende Linienverbreiterung auftritt, bevor eine thermische Entleerung der Zustände dominiert [SKG<sup>+</sup>15] (siehe Kap. 6.4.3). Weiterhin denkbar sind Methoden beruhend auf elektrischen [FBB<sup>+</sup>01] oder magnetischen Feldern [SYS<sup>+</sup>06], Verspannungen [SKSW13], sowie ein nachträgliches Anpassen der Resonatorstrukturen durch z. B. Stickstoffdeposition [MHR<sup>+</sup>05]. All diese Möglichkeiten weisen jedoch intrinsische Limitierungen auf oder sind aufgrund des Probenaufbaus nicht möglich, weshalb eine möglichst exakte Abstimmung während des KLL-Prozesses wünschenswert ist.

Die Linienverschiebung von 29 in Mikrolinsen integrierten QPen ist in Abb. 5.10 (b) dargestellt. Dabei wurden jeweils Spektren, welche während der KL-Kartierung aufgenommen wurden, mit den entsprechenden Spektren nach der fertigen Prozessierung verglichen. Exemplarisch ist das Spektrum eines QPes in Abb. 5.10 (a), jeweils während (schwarz) und



**Abbildung 5.10:** (a) Spektrum eines QPes während der Positionsbestimmung (schwarz) und nach der Integration in eine Mikrolinse (rot). (b) Die durch die Prozessierung verursachte spektrale Verschiebung der QP-Emissionslinien von 29 QPen, welche eine Fluktuation mit  $\sigma = 0,32$  nm um die ausgewählte Linienposition aufweisen. (c) KL-Karte der KLL-Positionierung. Entlang des schwarzen Pfeils sind die in (d) dargestellten Spektren extrahiert worden. Es ist zusätzlich das Spektrum, wie es nach der Prozessierung bestimmt wurde, in rot mit eingezeichnet. Die roten Hilfslinien markieren die spektralen Positionen der 4 lichtstärksten Emissionslinien der Nachcharakterisierung. Die spektrale Verschiebung zwischen dem roten Kontrollspektrum und der während der Kartierung aufgenommenen Spektren ist in (e) für alle Positionen der KL-Karte dargestellt.

nach der Prozessierung (rot) aufgetragen. Zu beobachten ist, dass die spektrale Linienverschiebung nicht signifikant von dem untersuchten Komplex abhängt. Die quantitative Untersuchung zeigt, dass auch keine bevorzugte Richtung, in welche alle QPe schieben, vorherrscht. Die Häufigkeitsverteilung zeigt eine Standardabweichung von  $\sigma = 0,32$  nm um  $\Delta\lambda = 0$ , welche jedoch leicht durch eine Temperaturveränderung kompensiert werden kann. Da signifikante Linienverschiebungen und -verbreiterungen aufgrund von Oberflächenzuständen erst bei Abständen von unter 100 nm zum QP auftreten [ATM<sup>+</sup>08], kann man daraus schließen, dass die hier beobachtete Verschiebung durch eine veränderte Landungsträgerlandschaft entsteht, welche durch das Umladen von Defekten in der direkten Umgebung der QPe verursacht wird. Selbst das Erwärmen auf Raumtemperatur zwischen zwei Messtagen und das erneute Abkühlen verursacht eine Linienverschiebung von ca. 0,3 nm, wodurch dem KLL-Prozess keine signifikante Beeinflussung zugeordnet werden kann.

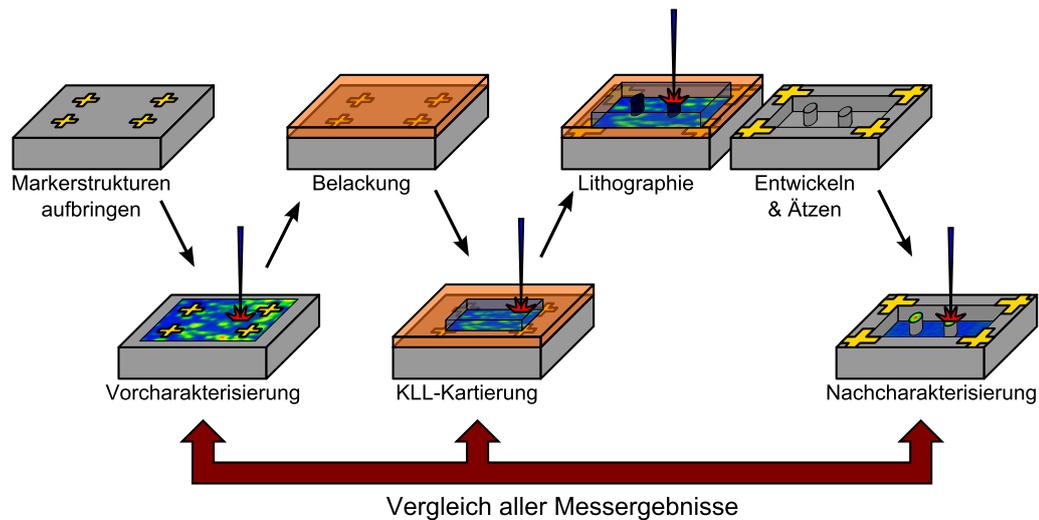
Ein weiterer Unsicherheitsfaktor besteht auch in der spektralen Positionsbestimmung während der KLL-Kartierung der Probe (siehe Abb. 5.10 (c)). Dies ist anhand der in Abb. 5.10 (d) gezeigten Spektren zu erkennen, welche entlang der in Abb. 5.10 (c) eingezeichneten Linie aufgenommen wurden. Zum Vergleich sind in rot die spektralen Posi-

tionen der 4 stärksten Emissionslinien, welche nach der Prozessierung bestimmt wurden, mit eingezeichnet. Deutlich zu erkennen ist ein ortsabhängiges Verschieben der Linien, welches höchstwahrscheinlich auf eine Aufladung der PMMA-Schicht zurückzuführen ist. Diese Aufladung, welche auch zu einer Aufhellung der SE-Bilder an dieser Stelle führt, hat die Erzeugung eines elektrischen Feldes und damit verbunden eine spektrale Verschiebung durch den *quantum confined Stark effect* zur Folge. Die quantitative Auswirkung ist in Abb. 5.10 (e) zusammengefasst, bei welcher die Linienverschiebung für alle während der Kartierung aufgenommenen Spektren ausgewertet wurde. Zu erkennen ist, dass Fluktuationen mit  $\sigma = 0,27$  nm auftreten können, welche je nach verwendetem Probenlayout und aufgebrachtener Lackdicke unterschiedlich stark ausgeprägt sind. Sollte sich die Aufladung und die damit verbundene Verschiebung für eine Strukturgeometrie nachteilig auswirken, kann dies mit der im nächsten Kapitel vorgestellten erweiterten KLL oder durch leitfähige Lackschichten umgangen werden.

## 5.4 Erweiterte Kathodolumineszenzlithographie

Obwohl die KLL eine deterministische Fabrikation von quantenoptischen Bauteilen mit höchster Positionierungsgenauigkeit, bei gleichzeitiger spektraler Anpassung ermöglicht, gibt es Anwendungen im Umfeld der Quantenoptik [SZ12, SSG<sup>+</sup>15, ASS<sup>+</sup>10, MDG15, YBL<sup>+</sup>10], welche spezifischere Anforderungen an die zu integrierenden QPe stellen. So können z.B. für die Realisierung eines Quantenrepeaters [DGM<sup>+</sup>13] ununterscheidbare Photonen gleicher Energie oder polarisationsverschränkte Photonen einer Biexziton-Exziton Kaskade verwendet werden [ALP<sup>+</sup>06, SYA<sup>+</sup>06]. Letzteres setzt QPe voraus, deren Feinstrukturaufspaltung kleiner ist als deren natürliche Linienbreite (siehe Kap. 2.3). Eine deterministische Integration von QPen mit diesen Eigenschaften erfordert jedoch eine ausführliche und zeitintensive Charakterisierung. In dem bisher beschriebenen Standard-KLL-Prozess sind lange Belichtungszeiten aufgrund des hohen Doseintrags in den Lack nicht möglich, da dies zur Invertierung führen würde. Zur Charakterisierung im Standard-KLL-Prozess ist daher nur eine schnelle Kartierung der Probenlumineszenz möglich. Die daraus erhaltenen Spektren, welche nur mit einer Integrationszeit um die 50 ms aufgenommen werden können, geben zwar Aufschluss über die Emissionsenergie der einzelnen Komplexe, detailliertere Aussagen sind mit diesem Verfahren jedoch nicht möglich.

Um den Nachteil der kurzen Belichtungszeiten zu kompensieren, kann der Standard-KLL-Prozess durch die in Abb. 5.11 dargestellten Schritte um eine detaillierte Charakterisierung erweitert werden. Hierfür werden auf die zu untersuchende Probe zunächst



**Abbildung 5.11:** Schematische Darstellung des erweiterten KLL-Prozesses. Zunächst werden Markerstrukturen auf die Probenoberfläche aufgebracht, um die Ergebnisse einer ausführlichen Vorcharakterisierung auch nachträglich einzelnen QPern zuordnen zu können. Anhand dieser Marker kann anschließend die belackte Probe entsprechend der Standard-KLL weiter prozessiert werden, wobei bei der KLL-Kartierung eine Identifikation der vorcharakterisierten QPern stattfindet, damit diese dann gezielt in Strukturen integriert werden können. In Kombination mit einer Nachcharakterisierung nach der abgeschlossenen Prozessierung kann so durch einen Vergleich aller Messergebnisse eine Veränderung der optischen QP-Eigenschaften detailliert nachvollzogen werden.

nummerierte Markerstrukturen aufgebracht, welche sowohl in SE-Bildern, als auch in der KL-Karte sichtbar sind. Diese kreuzförmigen Strukturen begrenzen dabei einen Bereich von  $50 \times 50 \mu\text{m}^2$ , um eine einfache Navigation auf der Probe zu ermöglichen. Durch die Marker können Bereiche und QPern vorselektiert und in einem Vorcharakterisierungsschritt mit einer beliebigen Methode detailliert untersucht werden. Damit ist es möglich QPern mit den gewünschten Eigenschaften auszuwählen und ihre Positionen anhand der Markerstrukturen zu adressieren. Anschließend erfolgt eine Standard-KLL-Prozessierung, bei welcher die mit Markern versehene Probe belackt wird. In der KL-Anlage werden daraufhin mit Hilfe einzelner SE-Bilder, bei welchen der Doseintrag unter vernachlässigbaren  $1 \mu\text{C}/\text{cm}^2$  bleibt, die zuvor untersuchten Bereiche durch die Marker identifiziert und die Lumineszenz in deren Umgebung kartiert. Ein Vergleich der zuvor archivierten QP-Positionen relativ zu den Markern, zusammen mit den spektralen Eigenschaften erlaubt es anschließend die gewünschten QPern zu identifizieren, ihre Position zu bestimmen und das Bauteil relativ dazu zu orientieren. Nach dem standardmäßigen Entwickeln und Ätzen kann eine Nachcharakterisierung der QPern erfolgen, durch welche aus einem direkten Vergleich die Auswirkung der prozessierten Struktur auf die QP-Lumineszenz ermittelt wird. Dies ermöglicht es, nicht nur QPern mit definierten Eigenschaften in Bauteile zu integrieren, sondern auch

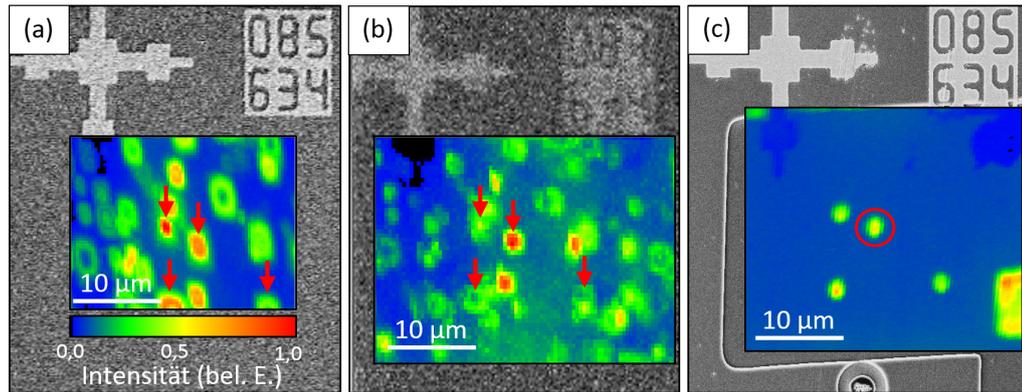
die Auswirkung der Bauteile auf die QP-Emission, z.B. im Rahmen der Licht-Materie-Wechselwirkung (siehe Kap. 2.4), direkt nachzuweisen.

Zur Demonstration dieses Verfahrens werden im Folgenden QPe auf ihre Feinstrukturaufspaltung, Leistungscharakteristik und die Lebensdauer des lichtstärksten Zustandes mit KL-Spektroskopie untersucht und im Rahmen des erweiterten KLL-Prozesses in eine Mesa-Struktur integriert. Dazu werden zunächst kreuzförmige Markierungen, welche eine Fläche von  $50 \times 50 \mu\text{m}^2$  begrenzen, auf die in Tab. C.4 beschriebene Probe strukturiert. Diese werden mittels UV-Lithographie in einem Lift-Off-Verfahren unter Aufdampfen von 5 nm Ti als Haftvermittler und 35 nm Au als kontrastgebendes Material auf die Probe aufgebracht. Die fertigen Strukturen können dann sowohl in den SEM-Aufnahmen in Abb. 5.12 und 5.13, sowie in den darin eingebetteten KL-Karten deutlich erkannt werden. Anhand dieser Marker kann nun eine ausgiebige optische Untersuchung der QPe in der Probe erfolgen, welche im späteren Verlauf dieses Kapitels behandelt wird. Zum Wiederfinden der QPe wird in diesem Schritt zusätzlich das in Abb. 5.12 (a) dargestellte SE-Bild erstellt, welches in Kombination mit der eingebetteten KL-Karte und dem in Abb. 5.13 (b) dargestellten Spektrum zur eindeutigen Identifikation des untersuchten QPes führt.

Nach dem Abschluss der Voruntersuchung wird die Probe wie im Standard-KLL-Prozess (siehe Kap. 4.2.1) mit PMMA belackt, in der KL-Anlage auf 5 K abgekühlt und mit der in Gl. (5.3) angegebenen Positionierungsgenauigkeit mit Strukturen versehen. Anhand einzelner SE-Bilder der nummerierten Marker, kann bei vernachlässigbarer, eingebrachter Dosis, eine Orientierung auf der Probe erfolgen. Nach der Lokalisierung des entsprechenden Feldes<sup>1</sup>, wird in dem Bereich in dem sich die untersuchten QPe befinden, die in Abb. 5.12 (b) eingebettete Lumineszenzkarte erstellt und der entsprechende QP anhand der vorher gesammelten räumlichen und spektralen Informationen identifiziert. Der Spektralbereich, welcher zur Erstellung der Karte verwendet wurde, ist in Abb. 5.13 (c) durch die blauen Linien eingegrenzt und zusammen mit dem Spektrum des untersuchten QPes dargestellt. Die Strukturierung der Mesen mit  $2 \mu\text{m}$  Durchmesser erfolgt anschließend durch die Invertierung des Lacks innerhalb einer entsprechenden kreisrunden Fläche an den Positionen der untersuchten QPe. Nach dem Standardentwicklungs- und Ätzprozess sind die in Abb. 5.13 (a) dargestellten Mesenstrukturen entstanden, wobei der mit einem Kreis markierte QP das in (d) dargestellte Spektrum aufweist. Eine Lumineszenz-Kartierung der fertig prozessierten Probe ist zusätzlich noch in Abb. 5.12 (c) dargestellt.

---

1 Das SEM-Bild im Hintergrund von Abb. 5.12 (b), welches während der Prozessierung aufgenommen wurde dient nur zur Verdeutlichung des Prozessablaufs und ist aufgrund fehlender Datenlage von dem benachbarten Feld 083-634 anstelle von Feld 085-634.

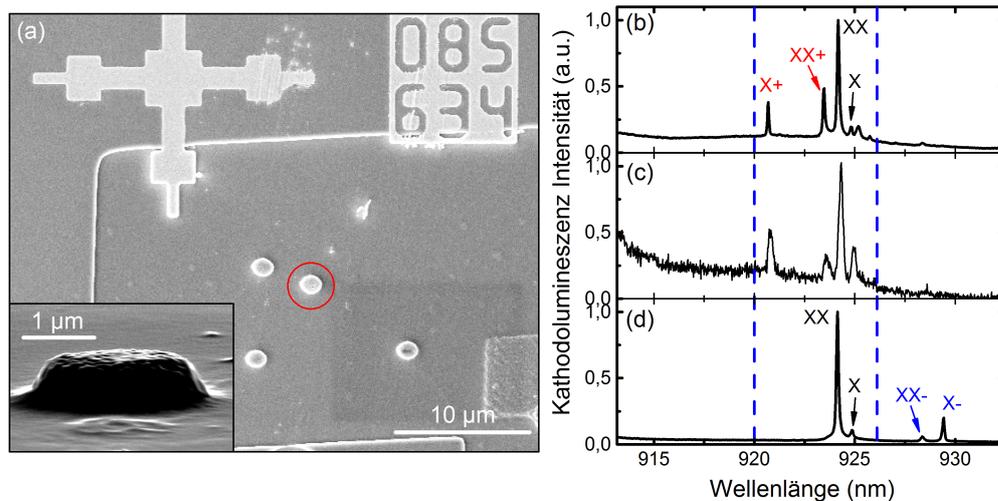


**Abbildung 5.12:** SEM-Aufnahmen und darin eingebettete KL-Karten während der Vorcharakterisierung (a), der Prozessierung (b) und von den fertig prozessierten Mesenstrukturen (c). Die in Mesen integrierten QPe sind mit Pfeilen markiert. In (c) ist die für die weiteren spektralen Untersuchungen verwendete Mesa mit einem Kreis markiert.

Im Anschluss an die Strukturierung kann eine detaillierte Nachcharakterisierung der fertigen Mesen erfolgen, welche mit den in der Vorcharakterisierung gewonnenen Daten zu vergleichen ist. Die Spektren vor und nach der Fertigung sind in Abb. 5.13 (b) und (d) dargestellt. Den einzelnen Linien kann anhand der Polarisations- und Leistungsserien, welche in Abb. D.1 dargestellt sind, der jeweilige exzitonische Komplex nach [SWB07] zugeordnet werden.

Betrachtet man die Emissionsenergien der in beiden Spektren identifizierbaren Komplexe (in diesem Fall X und XX) so lässt sich nur eine sehr geringe Verschiebung um weniger als  $200 \mu\text{eV}$  feststellen. Diese spektrale Verschiebung ist für 8 untersuchte QPe in Abb. 5.14 (b) als Histogramm zusammengefasst. Dieses bestätigt den in Kap. 5.3.2 gezeigten Trend, dass geringe Verschiebungen auftreten, welche jedoch im Rahmen der temperaturabhängigen Verstimmbarkeit der Emissionsenergie kompensiert werden können. Ebenso kann aus der polarisationsabhängigen spektralen Verschiebung der exzitonischen (siehe Abb. D.1 (c)) und biexzitonischen (siehe Abb. D.1 (f)) Komplexe die FSS durch eine sinusförmige Anpassung der in Abb. 5.14 (a) dargestellten Energiedifferenz extrahiert werden. Die Auswertung ergibt eine FSS von  $(31 \pm 2) \mu\text{eV}$  vor und  $(35 \pm 4) \mu\text{eV}$  nach der Prozessierung. Diese Veränderung der FSS ist zusammen mit 7 weiteren untersuchten QPen in Abb. 5.14 (c) dargestellt. Es ist zu erkennen, dass die FSS, welche ihren Ursprung in einer Asymmetrie des QP-Potentials und damit verbunden einer Symmetrierniedrigung auf  $C_{2\nu}$  hat [IP97], durch die Mesenherstellung nahezu unverändert bleibt. Eine Grundvoraussetzung für eine deterministische Bauteilintegration.

Anders verhält es sich bei den exzitonischen Komplexe, welche überhaupt zur QP-Emission beitragen. In Abb. 5.13 (b) ist zu erkennen, dass die QP-Emission im planaren

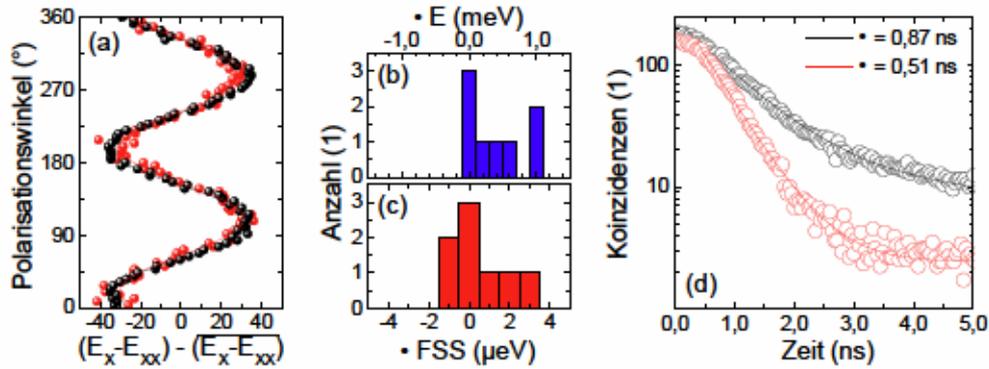


**Abbildung 5.13:** (a) SEM-Aufnahme des fertig prozessierten Mesenfeldes mit einer eingebetteten Nahaufnahme einer Einzel-QP-Mesa. Die markierte Mesa wird im weiteren Verlauf detailliert spektral untersucht. Spektren, aufgenommen während der Vorcharakterisierung (b), der KL-Kartierung (c) und nach erfolgreicher Integration in die Mesa-Struktur (d). Blau markiert ist der Spektralbereich, welcher für die Positionierung ausgewählt wurde. Ebenso sind die anhand von Leistungs- und Polarisationsserien (siehe Abb. D.1) ermittelten exzitonischen Komplexe mit angegeben.

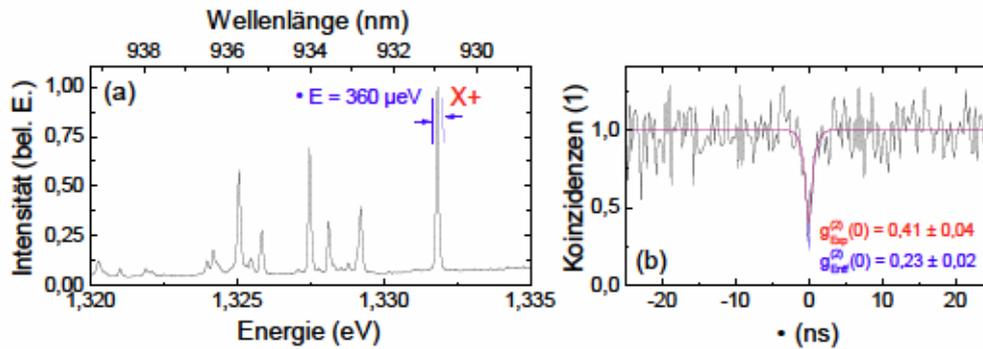
Material deutlich von positiv- und ungeladenen Komplexen dominiert wird. Im Gegensatz hierzu dominiert nach der Integration in die Mesenstruktur (d) die Emission von neutral und negativ geladenen Komplexen. Ursache hierfür kann eine, durch die Mesenfertigung bedingte, lokale Veränderung der Ladungsträgerlandschaft sein. Der Ladungsträgereinfang aus der Umgebung des QPes scheint im planaren Fall bevorzugt durch Löcher und nach der Strukturierung bevorzugt durch Elektronen zu erfolgen.

Untersucht man weiterhin die Lebensdauer, wie sie in Abb. 5.14 (d) für den biexzitonischen Zustand des untersuchten QPes dargestellt ist, so stellt man eine signifikante Verkürzung fest. Eine Ursache hierfür kann in der Existenz des unter den QPen liegenden DBRs zu finden sein, welcher zusammen mit der Oberfläche, welche eine Grenzflächenreflektivität von ca. 30 % aufweist (siehe Erläuterungen in Kap. 6), einen schwachen Resonator bildet. Durch die Fabrikation einer Mesenstruktur um den QP kann eine Reduzierung des Modenvolumens erfolgen, welche in Kombination mit der Resonatorstruktur zu einem schwach ausgeprägten Purcell-Effekt von  $1,71 \pm 0,12$  (siehe Kap. 2.4) führen könnte. Eine andere, wahrscheinlichere Ursache kann jedoch in einer vorzeitigen Entleerung des biexzitonischen Zustands gefunden werden, was durch nichtstrahlende Prozesse verursacht werden kann.

Neben der Lebensdauer, der Bestimmung der exzitonischen Zustände und der FSS kann das Schema der erweiterten KLL auch um komplexere Untersuchungsmethoden erweitert



**Abbildung 5.14:** Vergleich der spektralen Eigenschaften vor (schwarz) und nach (rot) Anwendung der erweiterten KLL: (a) Polarisationsabhängige Differenz der Exziton- und Biexziton-Emissionsenergie. Durch eine sinusförmige Anpassung kann aus der Amplitude die Feinstrukturaufspaltung zu  $31 \mu\text{eV}$  vor und zu  $35 \mu\text{eV}$  nach der Prozessierung ermittelt werden. (b) Relative Energieverschiebung einzelner Emissionslinien, hervorgerufen durch die Integration in Mesenstrukturen. (c) Die aus (a) für mehrere QPe ermittelte Veränderung der FSS. (d) Lebensdauermessung vor und nach der Prozessierung des biexzitonischen Komplexes aus Abb. 5.13 (b) und (d)



**Abbildung 5.15:** (a) Spektrum des QPes, welcher zur Bestimmung der Einzelphotonemission durch KL Spektroskopie herangezogen wurde. Untersucht wurde dabei das positiv geladene Trion, welches in dem blau eingegrenzten Bereich spektral selektiert wurde. (b) Gemessene, angepasste und entfaltete Autokorrelation des positiv geladenen Trions. Bereits der direkt gemessene Wert  $g^{(2)}(0) = 0,41 \pm 0,04$  weist auf das Vorhandensein einer Einzelphotonenquelle hin.

werden. So ist es auch denkbar, dass die QP-Lumineszenz auf ihre Ununterscheidbarkeit oder ihren Einzelphotonencharakter vorab untersucht wird, um gezielt QPe auszuwählen, die den hohen Anforderungen einer Anwendung in der Quantenoptik entsprechen und folglich in Strukturen integriert werden sollten. Eine Untersuchung der Einzelphotonemission ermöglicht es zum Beispiel, gezielt QPe auszuwählen, deren Lumineszenz nicht durch zusätzliche unkorrelierte Hintergrundstrahlung, verursacht durch die Benetzungsschicht, überlagert ist. Dies ist insbesondere bei der Nutzung kavitätsquantenelektrodynamischer

Effekte (siehe Kap. 2.4) von Interesse, da durch den Resonator sowohl die QP-Lumineszenz, als auch unkorrelierte Hintergrundstrahlung gleichermaßen verstärkt werden. Exemplarisch soll hierfür die Lumineszenz eines einzelnen QPes mittels KL Spektroskopie vor der Strukturierung auf seinen Einzelphotonencharakter<sup>1</sup> untersucht werden. Ein KL-Spektrum des untersuchten, in einer planaren Schicht integrierten QPes ist dabei in Abb. 5.15 (a) dargestellt. Für die Evaluation wird das positiv geladene Trion ausgewählt, welches mit einer Bandbreite von 360  $\mu\text{eV}$  um dessen Maximum durch den Monochromator spektral selektiert wird. Durch den in Kap. 3.3.2 erläuterten Hanbury-Brown und Twiss Aufbau, welcher an den zweiten Ausgang des Monochromators der KL Anlage angebracht ist, kann nun die Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung gemessen werden. Das Ergebnis nach 194-minütiger Integrationszeit ist in Abb. 5.15 (b) dargestellt. Durch Anpassung der Autokorrelationsfunktion an die Daten lässt sich  $g_{\text{Exp}}^{(2)}(0) = 0,41 \pm 0,04$  und nach Entfaltung der Daten mit der Detektorzeitauflösung von 480 ps zu  $g_{\text{Entf}}^{(2)}(0) = 0,23 \pm 0,02$  bestimmen, was mit  $g^{(2)}(0) < 0,5$  einen Nachweis des Einzelphotonencharakters der untersuchten Lumineszenz darstellt.

## 5.5 Zusammenfassung des Kapitels

In diesem Kapitel wurde das Prinzip der KLL durch eine deterministische Integration von QPen in Mesenstrukturen demonstriert. Um die KLL in Beziehung zu anderen deterministischen Ansätzen zu setzen, wurde sie in Hinblick auf die laterale Positionierungsgenauigkeit und den Einfluss des Prozesses auf die spektralen Eigenschaften untersucht. In einem erweiterten KLL-Prozess konnte zudem eine detailliertere Untersuchung der QPe vor der Integration erreicht werden.

Der gezeigte KLL-Prozess beginnt mit einer Kartierung der mit PMMA beschichteten Probe, wobei eine definierte Dosis unterhalb der Onset Dosis eingebracht wird, welche zur Löslichkeit der dadurch belichteten Lackschicht führt. Nach der Identifikation geeigneter QPe wird der Lack gezielt oberhalb der QPe invertiert und somit unlöslich, was in dem darauffolgenden Entwicklungsschritt zur Folge hat, dass das invertierte PMMA als Ätzmaske fungieren kann. Der Strukturübertrag in das darunterliegende Substrat erfolgt mittels ICP-RIE und führte bei dem in diesem Kapitel gezeigten Verfahren zu Einzel-QP-Mesastrukturen mit Durchmesser von unter 1  $\mu\text{m}$ , bei einer Ausbeute von 89%. Durch die Isolation der QPe konnten dabei Linienbreiten von bis zu 9  $\mu\text{eV}$  und  $g^{(2)}(0) = 0,04$  gezeigt werden.

---

<sup>1</sup> Dem Kenntnisstand des Autors zum ersten Mal

Zur Demonstration der Genauigkeit des Prozesses wurde die laterale Positionierungsgenauigkeit hinsichtlich eines örtlich-zeitlichen Drifts des Kryostaten, der Ungenauigkeit der Positionsbestimmung und der lateralen Abweichung im Lithographieprozess untersucht. Dabei ergibt sich eine mittlere Driftgeschwindigkeit von 14 nm/min und eine Genauigkeit der QP-Positionsbestimmung von  $\sigma_r^{\text{Pos}} = 25$  nm. Aufgrund der Kryostatendrift können die Nanostrukturen nur mit einer Genauigkeit von  $\sigma_r^{\text{Lit}} = 24$  nm positioniert werden, was unter Berücksichtigung des Fehlers der Bestimmung der QP-Position zu einer Gesamtgenauigkeit des Prozesses von  $\sigma_{\text{KLL}} = 34$  nm führt. Die spektrale Verschiebung der QP-Emission nach der Prozessierung konnte zu  $\sigma = 0,32$  nm bestimmt werden und ist auf die Umladung von Defekten durch die Erwärmung auf Raumtemperatur und die erneute Abkühlung zurückzuführen.

Den Abschluss des Kapitels bildet die Demonstration des erweiterten KLL-Schemas, bei welchem eine detaillierte Vorcharakterisierung relativ zu Markerstrukturen durchgeführt wird und die QPe mit Hilfe der Marker im Standard-KLL-Prozess in Mesenstrukturen integriert werden. Ein Vergleich der Ergebnisse vor und nach der Strukturierung zeigt eine veränderte Potentiallandschaft und eine Reduktion der Zustandslebensdauer, jedoch keine signifikante Verschiebung der Emissionsenergie oder der Feinstrukturaufspaltung.



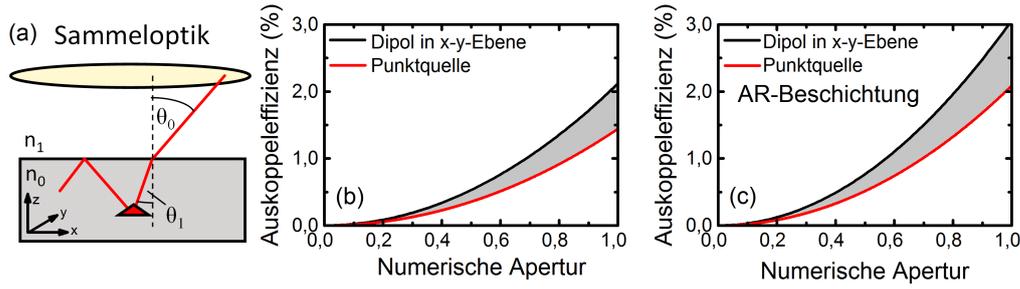
## 6 Methoden der Lichtauskopplung aus Halbleiterstrukturen

Die Grundvoraussetzung für Anwendungen in der Quanteninformationsverarbeitung, wie z. B. dem Quantenrepeater [BDCZ98, GT07] oder der Quantenschlüsselverteilung [BB84, WIS<sup>+</sup>02] sind zuverlässige Quellen von einzelnen, ununterscheidbaren Photonen oder verschränkten Photonenpaaren, welche „auf Knopfdruck“ erzeugt werden können. In diesem Zusammenhang wird z.B. für die Erzeugung von ununterscheidbaren Photonen zum Einsatz in einem Quantenrepeater eine Auskoppel-effizienz von über 70 %, sowie eine Unterdrückung von Mehrphotonenereignissen mit  $g^{(2)}(0) < 0,0001$ , bei einer spektralen Bandbreite von wenigen MHz benötigt [SSM<sup>+</sup>07, SZ12]. Da QPe bereits inhärent Einzelphotonenemitter darstellen und ununterscheidbare Photonen emittieren, müssen Bauteilkonzepte entwickelt werden, welche die emittierten Photonen auch für Anwendungen nutzbar machen. Abgesehen von on-Chip Ansätzen [RLR<sup>+</sup>13, PCO<sup>+</sup>14] besteht die Herausforderung meist darin, die Auskoppel-effizienz in eine vertikal zur Probenoberfläche orientierte Sammeloptik zu erhöhen, die durch die ungerichtete Abstrahlcharakteristik der QPe, in Kombination mit dem hohen Brechungsindexkontrast des Halbleiters  $n_1$  zum umgebenden Medium  $n_0 = 1$ , ohne weitere Maßnahmen sehr niedrig ist.

Durch die totale interne Reflexion an der Grenzfläche zwischen Halbleiter (GaAs -  $n_1 = 3,5$ ) und Vakuum ( $n_0 = 1$ ) verlassen, wie in Abb. 6.1 (a) schematisch dargestellt, nur etwa 2 % der emittierten Photonen den Halbleiter, wobei im besten Fall nur etwa 1 % durch konventionelle Sammeloptiken ( $NA < 0,8$ ) eingesammelt werden können. Analytische Berechnungen hierzu sind in Abb. 6.1 (b) für eine planare GaAs Oberfläche und in (c) für eine, mit einer Antireflexionsschicht beschichtete Fläche zusammengefasst. Hier wurde für jeweils eine isotrop abstrahlende Quelle mit der Intensitätsverteilung

$$I(\theta, \phi) \propto \frac{1}{4\pi} \tag{6.1}$$

und einen Dipolemitter, welcher parallel zur Oberfläche in x-Richtung orientiert ist, mit der Verteilung



**Abbildung 6.1:** (a) Schematische Darstellung der Lichtauskopplung aus einem planaren Halbleiter. Durch totale interne Reflexion an einer Grenzfläche mit hohem Brechungsindexkontrast wird ein Großteil der von QPEn emittierten Photonen in das Material zurückreflektiert. Der prozentuale Anteil der von einer Sammeloptik eingefangenen Photonen für eine planare Probe ohne (b) und mit Antireflexionsbeschichtung (c) ist daher sehr niedrig. In Schwarz ist die Berechnung für eine isotrope Punktquelle als Emittor dargestellt und in Rot die Berechnung für einen Dipolstrahler als Emittor, welcher bevorzugt in vertikaler Richtung emittiert.

$$I(\theta, \phi) \propto \frac{3}{8\pi} \left(1 - \sin^2(\theta) \cos^2(\phi)\right) \quad (6.2)$$

mit  $\theta$  und  $\phi$  als dem Polar- und Azimutwinkel, die Auskoppelleffizienz für verschiedene numerische Aperturen ermittelt [BBG<sup>+</sup>02]. Die Berechnung der Auskoppelleffizienz  $\eta$  erfolgt über eine Raumwinkelintegration der Intensitätsverteilung des Emitters

$$\eta = T_P \int_0^{\arcsin(\text{NA}/n_1)} I(\theta_1, \phi) \sin(\theta_1) d\theta d\phi. \quad (6.3)$$

Dabei wird bis zu dem Winkel  $\theta_1$  mit  $\sin(\theta_1) = \frac{n_0}{n_1} \sin(\theta_0)$  integriert, welcher durch die Sammeloptik mit einer numerischen Apertur  $\text{NA} = n_0 \sin(\theta_0)$  noch mit eingeschlossen ist.  $T_P$  beschreibt dabei die Grenzflächentransmission

$$T_P = 1 - \left(\frac{n_1 - n_0}{n_1 + n_0}\right)^2, \quad (6.4)$$

welche vereinfachend als winkel- und polarisationsunabhängig angenommen wurde. Die winkelunabhängige Transmission ist mit Gl. (6.4) als obere Grenze zu sehen und wird mit größer werdendem Winkel abnehmen, bis sie beim Winkel der totalen internen Reflexion null erreicht. Die Auskoppelleffizienz wird mit dieser Annahme also überschätzt. Die Transmission wurde für die Berechnung von Abb. 6.1 (b) mit berücksichtigt und kann im Idealfall durch eine passende Antireflexionsbeschichtung (siehe Abb. 6.1 (c)) erhöht werden. Aus Gl. (6.3) ergibt sich somit für eine Punktquelle der Ausdruck

$$\eta_{\text{Iso}}^{\text{P}} = \frac{T_{\text{P}}}{2} \left( 1 - \sqrt{1 - \frac{\text{NA}^2}{n_1^2}} \right) \quad (6.5)$$

und für einen Dipolstrahler in z-Richtung

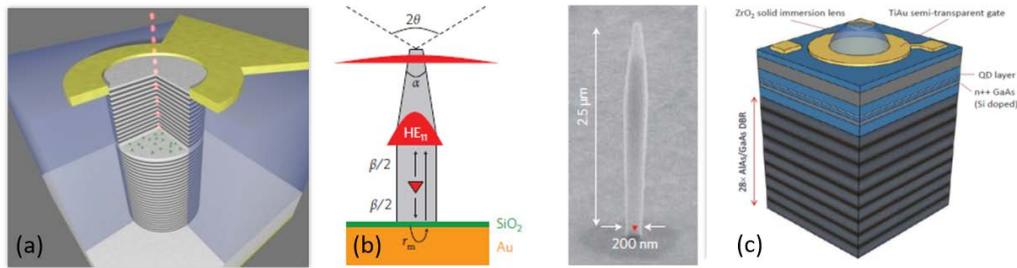
$$\eta_{\text{Dip}}^{\text{P}} = \frac{T_{\text{P}}}{32} \left( 15 \left( 1 - \sqrt{1 - (\text{NA}/n_1)^2} \right) + (1 - \cos(3 \arcsin(\text{NA}/n_1))) \right). \quad (6.6)$$

Da die exakte Abstrahlcharakteristik eines QPes nicht bekannt ist, sind die beiden Grenzfälle eines Dipolstrahlers und einer Punktquelle in (b) und (c) jeweils in Schwarz und Rot dargestellt. In Realität sollte sich die Auskoppelleffizienz  $\eta_{\text{ext}}$  in dem grau hinterlegten Bereich bewegen. Die erreichbare  $\eta_{\text{ext}}$  liegt aber in jedem Fall deutlich unter den für die Anwendung in der Quanteninformationstechnologie benötigten Anforderungen.

## 6.1 Übersicht über Technologien zur Erhöhung der Auskoppelleffizienz

Um der niedrigen Auskoppelleffizienz entgegenzuwirken, wurden in den vergangenen Jahren viele Konzepte zur Integration von QPen in optoelektronische Bauteile entwickelt, welche neben dem angestrebten elektrischen Betrieb vor allem eine Erhöhung der Auskoppelleffizienz in vertikaler Richtung, unter Beibehalt der Einzelphotoneneigenschaften und der Visibilität der vom QP emittierten Photonen erreichen sollen. Diese Konzepte lassen sich in die drei in Abb. 6.2 dargestellten Ansätze unterteilen: Die Integration der QPe in Kavitätsstrukturen (a), die Kopplung der QPe an Wellenleiterstrukturen (b) und die Erhöhung der Auskoppelleffizienz durch geometrische Ansätze (c) [GKM13]. Die experimentell ermittelten Auskoppelleffizienzen und die dazugehörigen  $g^{(2)}(0)$ -Werte sind für verschiedene Bauteilkonzepte in Tab. 6.1 zusammengefasst.

Bei der Integration von QPen in Kavitätsstrukturen zielt man auf eine Licht-Materie-Kopplung der beiden Systeme im Sinne der cQED ab (siehe Kap. 2.4). Durch die Kavität wird die optische Modendichte in der Umgebung des QPes derart verändert, dass die Photonen in Resonanz, entsprechend Fermis' Goldener Regel (siehe Gl. (2.22)), bevorzugt in die Kavitätsmode emittiert werden. Im Grenzfall eines idealen, dreidimensionalen photonischen Einschlusses entsteht sogar eine Abfolge von diskreten optischen Moden, den Resonatormoden, in welche der QP ausschließlich emittieren kann [GBM<sup>+</sup>96, Yab87]. Bei geeignetem Resonatordesign kann hierdurch eine Kopplung an Moden im Resonator erreicht werden, deren Energie bevorzugt in Richtung der Sammeloptik dissipiert wird (siehe hierzu auch die Erläuterungen in Kap. 6.4.1). Mit den auf diesem Prinzip basierenden, in Abb. 6.2 (a) dargestellten Mikrosäulenresonatoren konnten somit bereits Aus-



**Abbildung 6.2:** Verschiedene Strategien zur Erhöhung der Auskoppel-effizienz. (a) Resonatorstrukturen, welche die optische Zustandsdichte in der Umgebung des QPes modifizieren. Dadurch tritt im Rahmen der cQED der sogenannte Purcell-Effekt auf, was in Resonanz zu einer Verkürzung der Lebensdauer des Zustands führt (nach [HSL<sup>+</sup>10a]). (b) Wellenleiterstrukturen, welche die optische Zustandsdichte anderer Moden unterdrücken, wodurch eine bevorzugte Einkopplung in die Struktur erfolgt. In Kombination mit einer adiabatischen Auskopplung in vertikaler Richtung können Effizienzen von bis zu 75 % erreicht werden (entnommen aus [CBM<sup>+</sup>10]). (c) Rein geometrische Ansätze über Mikrolinsen. Durch die gekrümmte Oberfläche wird der Auftreffwinkel der Photonen verändert, wodurch Winkel, welche zu totaler interner Reflexion führen, vermieden werden (entnommen aus [GFT<sup>+</sup>12]).

koppeleffizienzen von bis zu 79 % unter optischer Anregung experimentell nachgewiesen werden [GMdVA<sup>+</sup>13]. Ein weiterer Effekt der Kopplung an diskrete Resonatormoden ist, dass im Regime der schwachen Kopplung (siehe Kap. 2.4) eine zusätzliche Verkürzung der Lebensdauer des an den Resonator gekoppelten Zustandes durch den Purcell-Effekt erfolgt [Pur46]. Hierdurch kann der Zustand schneller wieder befüllt werden und somit öfter strahlend zerfallen, was eine erhöhte Emissionsrate gegenüber anderen Bauteilkonzepten zur Folge hat. Nachteilig wirkt sich hierbei jedoch aus, dass für einen signifikanten Purcell-Effekt eine hohe Güte der Resonatorstrukturen erforderlich ist, was zu einer spektral schmalbandigen Resonanz führt. Dadurch wird die spektrale Anpassung von Emitter und Kavitätsmode notwendig, wodurch eine breitbandige Auskopplung, wie sie z.B. für Photonen einer Biexziton-Exziton-Kaskade notwendig wäre, nahezu unmöglich wird. Dennoch konnten durch Resonatoransätze bereits Auskoppel-effizienzen von bis zu 79 % [GMdVA<sup>+</sup>13] und unabhängig davon  $g^{(2)}(0) < 0,01$  [SDBS15] in verschiedenen Resonatorgeometrien nachgewiesen werden. Es ist jedoch anzumerken, dass auch eine Kopplung an eine Resonatormode durch Phononenprozesse auftreten kann, was bei hohen Anregungsleistungen und mehreren QP'en im Resonator zu einer Verschlechterung von  $g^{(2)}(0)$  führt [AUU<sup>+</sup>09]. Eine hohe Emissionsrate, bei vernachlässigbarer Mehrphotonenemission kann daher nur durch eine gezielte Integration eines einzelnen QP'es in den Resonator erfolgen. Trotz dieser Nachteile haben elektrisch betriebene Mikrosäulenresonatoren in den letzten Jahren eine deutliche Verbesserungen erfahren und konnten bereits in Anwendungen zur Quantenschlüsselverteilung eingesetzt werden [HKR<sup>+</sup>12, RHU<sup>+</sup>14].

Bauteilkonzept	$\eta$ (%)	NA	$g^{(2)}(0)$	Referenz
Planare Kavität (Theorie)	28 (21)	1,0 (0,5)	-	Royo <i>et al.</i> [RSI01]
Photonischer Kristall	44	0,6	0,04	Madsen <i>et al.</i> [MAL <sup>+</sup> 14]
Zirkulares Bragg-Gitter	48	0,4	< 0,01	Sapienza <i>et al.</i> [SDBS15]
Mikrosäulenresonator (optisch)	79	0,75	0,15	Gazzano <i>et al.</i> [GMdVA <sup>+</sup> 13]
Mikrosäulenresonator (elektrisch)	61	1,0	0,13	Heindel <i>et al.</i> [HSL <sup>+</sup> 10b]
Konisch verjüngter Nanodraht	72 (35)	0,75 (0,4)	< 0,008	Claudon <i>et al.</i> [CBM <sup>+</sup> 10]
Trompetenförmig auslaufender Nanodraht	75	0,75	0,31	Munsch <i>et al.</i> [MMD <sup>+</sup> 13]
SIL - Hemisphäre	1,7	0,4	-	Barnes <i>et al.</i> [BBG <sup>+</sup> 02]
SIL - Weierstrass	2,9	0,4	-	Barnes <i>et al.</i> [BBG <sup>+</sup> 02]
Monolithische Linse	8,9	0,8	< 0,01	diese Arbeit
SIL mit DBR	10	-	0,02	Gao <i>et al.</i> [GFT <sup>+</sup> 12]
Monolithische Linse mit DBR	23	0,4	< 0,01	diese Arbeit
Monolithische Linse mit Gold-Spiegel (Theorie)	86 (61)	1,0 (0,8)	-	diese Arbeit
Kavitätsintegrierte Linse	42	0,7	0,02	Maier <i>et al.</i> [MGF <sup>+</sup> 14]
Planare dielektrische Antenne mit SIL <sup>1</sup>	96	1,65	0,12	Lee <i>et al.</i> [LCE <sup>+</sup> 11]

**Tabelle 6.1:** Experimentell erreichte und theoretisch errechnete laterale Auskoppelleffizienzen  $\eta$  bei gegebener numerischer Apertur (NA), sowie die erreichte Güte der Einzelphotonemission, beschrieben durch die Autokorrelationsfunktion bei  $g^{(2)}(0)$ , der unterschiedlichen Bauteilkonzepte.

Der zweite Ansatz (b) beruht auf der Kopplung von QPen an die optische Mode eines Nanodrahtes mit einem Durchmesser von etwa 150 bis 300 nm [FSH<sup>+</sup>09]. Er nutzt den Umstand, dass durch die geringe Ausdehnung in lateraler Richtung eine Unterdrückung der nicht erwünschten, horizontalen „leaky“ Moden entsteht. Der QP koppelt demzufolge bevorzugt in die vertikal orientierte Mode ein, wodurch eine gerichtete Emission, jedoch ohne den Effekt einer Lebensdauerverkürzung, bei gleichzeitig breitbandiger Lichtauskopplung,

stattfindet. Eine Maximierung der Auskoppelleffizienz kann durch die Verwendung eines rückseitigen Gold- oder DBR-Spiegels (engl. - Distributed Bragg Reflector) in Kombination mit einer adiabatischen Auskopplung, bestehend aus einer Verjüngung bzw. Verbreiterung an der Spitze, erfolgen. Mit diesem verbesserten Design konnten bereits Auskoppelleffizienzen von bis zu 75 % mit breitbandiger Auskopplung und gleichzeitig  $g^{(2)}(0) < 0,008$  nachgewiesen werden [CBM<sup>+</sup>10, MMD<sup>+</sup>13]. Nachteilig wirken sich bei diesem Strukturdesign jedoch die erforderlichen anspruchsvollen Herstellungsmethoden aus. Obwohl Nanodrähte in der Regel in einem „bottom-up“ - Verfahren gewachsen werden können, ist für die Fabrikation der für die hohen Auskoppelleffizienzen verantwortlichen Geometrie in der Regel ein „top-down“ - Verfahren erforderlich, in welchem Drahtdurchmesser von 150 bis 300 nm am unteren Ende, bei kegelförmig oder trompetenförmig zulaufenden Spitzen erreicht werden müssen. Dies in Kombination mit der Integration eines QPes im Zentrum der Struktur, sowie der rückseitigen Aufbringung eines Spiegels in einem „flip-chip“ - Verfahren bergen große Herausforderungen für die Probenherstellung. Weiterhin ist dieses Konzept nicht kompatibel mit einer praktikablen elektrischen Kontaktierung [ZAvW<sup>+</sup>08].

Die letzte Gruppe von Bauteilen (c) beruht auf einem rein geometrischen Ansatz, welcher darauf abzielt, der totalen internen Reflexion an der Oberfläche entgegenzuwirken. Um dies zu erreichen, werden meist Festkörper-Immersionlinsen (SIL - engl. Solid Immersion Lens) mit makroskopischen Abmessungen auf QPen platziert, was durch den kleineren Auftreffwinkel der Photonen auf der Oberfläche zu einer geringeren Reflektivität und somit zu einer erhöhten Auskoppelleffizienz führt. Demonstriert wurde dies unter anderem von Gao et. al [GFT<sup>+</sup>12], welcher in Kombination mit einem rückseitigen Bragg-Spiegel Auskoppelleffizienzen von etwa 10 % erreicht hat. Die in Kap. 6.2.1 vorgestellten analytischen Berechnungen zeigen jedoch, dass höchste Auskoppelleffizienzen nur durch monolithische Linsenstrukturen, welche aus dem selben Halbleitermaterial bestehen in dem auch die QPe integriert sind, erreicht werden können. Dem Themenkomplex der erhöhten Lichtauskopplung durch monolithisch integrierte Mikrolinsen widmen sich Kap. 6.2 und 6.3, in welchen Auskoppelleffizienzen von  $(8,9 \pm 3,7) \%$  bei einfachen Linsenstrukturen und  $(23,3 \pm 3,0) \%$  bei Linsen mit rückseitigem Bragg-Spiegel nachgewiesen werden. Eine weitere Verbesserung kann darüber hinaus durch die Verwendung von Goldspiegeln erzielt werden, welche laut numerischen Simulationen Auskoppelleffizienzen bis zu 86 % ermöglichen.

Strukturen basierend auf einfachen geometrischen Ansätzen bieten im Vergleich zu adiabatisch auskoppelnden Nanodrähten den Vorteil einer einfachen Strukturierung, die Mög-

---

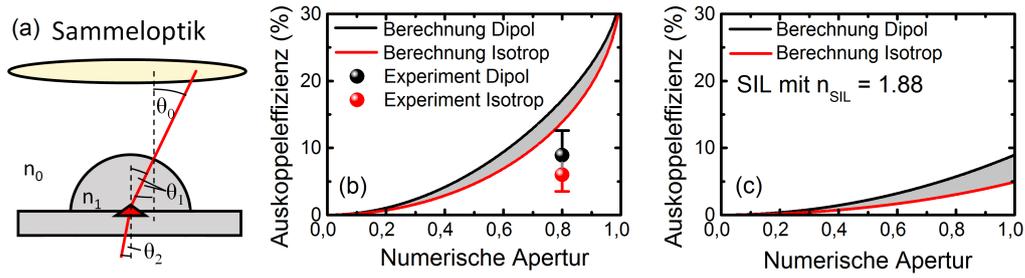
1 Die Messungen wurden an einem einzelnen Terrylen-Molekül durchgeführt.

lichkeit zur Kontaktierung und sie erlauben es im Gegensatz zu Resonatorstrukturen das Licht breitbandig auszukoppeln. Weiterhin behalten die Linsen, wie in Kap. 6.3.2 gezeigt, die Einzelphotonencharakteristik und Güte der Ununterscheidbarkeit auch bei hohen Anregungsleistungen bei.

## 6.2 Linsenstrukturen

Die Verwendung von Linsenstrukturen bietet eine elegante geometrische Möglichkeit der totalen internen Reflexion an einer Grenzfläche entgegenzuwirken. Die meisten Ansätze beruhen dabei, wie oben bereits erläutert, auf der Verwendung von Glaskugeln mit Durchmessern von wenigen Millimetern, welche an einer Seite flach zur Hemisphäre geschliffen und dann über dem Emitter platziert werden. Der Vorteil bei der Verwendung von zentrisch platzierten Hemisphären liegt in einer chromatisch aberrationsfreien Erhöhung der Auskoppelleffizienz und ist insbesondere in der Mikroskopie ein verbreitetes Konzept. [MK90, KYB<sup>+</sup>99] Müssen die abbildenden Eigenschaften, wie im Fall einer reinen Erhöhung der Auskoppelleffizienz, nicht beibehalten werden, so bietet die sogenannte Weierstrass-Geometrie [BBG<sup>+</sup>02] den Vorteil zusätzlichen einer gerichteten Auskopplung des Lichts und somit höhere Effizienzen bei kleineren numerischen Aperturen der Sammeloptik. Hierfür wird die sphärische Linse um  $r - r/n$ , mit  $r$  als Krümmungsradius und  $n$  als Brechungsindex, abgeschliffen, wodurch die fokussierende Wirkung eintritt. Dies ermöglicht es Sammeloptiken mit kleineren numerischen Aperturen einzusetzen und ist z.B. für die Einkopplung in Glasfasern von Interesse.

Die maximal erreichbare Auskoppelleffizienz ist jedoch, wie in der analytischen Darstellung in Kap. 6.2.1 dargelegt wird, von dem Brechungsindex des verwendeten Linsenmaterials abhängig. Demzufolge sollte eine ideale Linse aus dem selben Material wie das Substrat, aus dem das Licht ausgekoppelt wird, bestehen. Dadurch bringen monolithisch integrierte Linsen deutlich höhere Auskoppelleffizienzen mit sich. Allerdings sind für deren Herstellung aufwendigere Methoden, wie z.B. die Verwendung von fokussierten Ionenstrahlen (FIB - engl. Focused Ion Beam) [HHSC<sup>+</sup>10] zur Oberflächenstrukturierung notwendig, was eine gezielte Positionierung auf einem Emitter unmöglich macht. Einen Ausweg bietet 3D Elektronenstrahlolithographie [SOR<sup>+</sup>92], welche mit der deterministischen KLL kombinierbar ist und in Kap. 6.2.2 vorgestellt wird. Die experimentelle Bestätigung der erhöhten Auskoppelleffizienz der monolithisch integrierten und deterministisch platzierten Mikrolinsen erfolgt im Anschluss in Kap. 6.2.3.



**Abbildung 6.3:** (a) Schematische Darstellung der Lichtauskopplung aus einem, mit einer monolithisch integrierten Linse versehenen, Halbleiter. Durch die Krümmung fallen alle nach oben emittierten Photonen senkrecht auf die Oberfläche, wodurch keine totale interne Reflexion mehr auftreten kann. (b) Analytische Berechnung des prozentualen Anteils der von der Sammelloptik eingefangenen Photonen für eine hemisphärische Linse aus dem Halbleitermaterial und einer Festkörperimmersionslinse mit  $n = 1,88$  (c). In Schwarz wurde als Emittor eine isotrope Punktquelle berechnet und in Rot ein Dipolstrahler mit bevorzugter Emission in vertikaler Richtung. Die Punkte geben die experimentell ermittelten Auskoppelkoeffizienzen der gefertigten Linsen an, jeweils unter der Annahme einer isotropen Lichtquelle und eines Dipolstrahlers (siehe Kap. 6.2.3).

### 6.2.1 Analytische Beschreibung

Zur analytischen Berechnung der Auskoppelkoeffizienten von hemisphärischen Linsen kann erneut Gl. (6.3) herangezogen werden. Unter der Voraussetzung einer zentrischen Positionierung der Linse mit einem Brechungsindex von  $n_1$  auf einem Substrat mit Brechungsindex  $n_2$  und einer Auskopplung in das umgebende Medium mit Brechungsindex  $n_0$  soll gelten  $n_0 \leq n_1 \leq n_2$ . Weiterhin soll gelten, dass sich der Emittor im Vergleich zum Linsenradius dicht unter der Probenoberfläche befindet. Durch diese Geometrie (siehe Abb. 6.3 (a)) tritt nun Brechung an der Grenzfläche zwischen Substrat und Linse nach dem Snellius'schen Brechungsgesetz  $n_1 \sin \theta_1 = n_2 \sin \theta_2$  auf. Durch die hemisphärische Geometrie treffen die Photonen an der Grenzfläche zur Luft unter einem Winkel von  $90^\circ$  zur Linsenoberfläche auf, wodurch keine Brechung oder totale interne Reflexion auftritt. Dadurch ergibt sich  $\theta_1 = \theta_0$  und für den maximalen Winkel, der von einer Sammelloptik mit gegebener NA eingesammelt werden kann:

$$\theta_{0,\text{Max}} = \arcsin \frac{n_1 \text{NA}}{n_0 n_2}. \quad (6.7)$$

Einsetzen in Gl. (6.3) ergibt für eine isotrop in alle Richtungen abstrahlende Punktquelle

$$\eta_{\text{Iso}}^L = T_L \frac{1}{2} \left( 1 - \sqrt{1 - \left( \frac{n_1 \text{NA}}{n_0 n_2} \right)^2} \right) \quad (6.8)$$

und für einen Dipolstrahler als Emittor

$$\eta_{\text{Dip}}^{\text{L}} = T_{\text{L}} \frac{1}{32} \left( 15 \left( 1 - \sqrt{1 - \left( \frac{n_1 \text{NA}}{n_0 n_2} \right)^2} \right) + \left( 1 - \cos \left( 3 \arcsin \frac{n_1 \text{NA}}{n_0 n_2} \right) \right) \right), \quad (6.9)$$

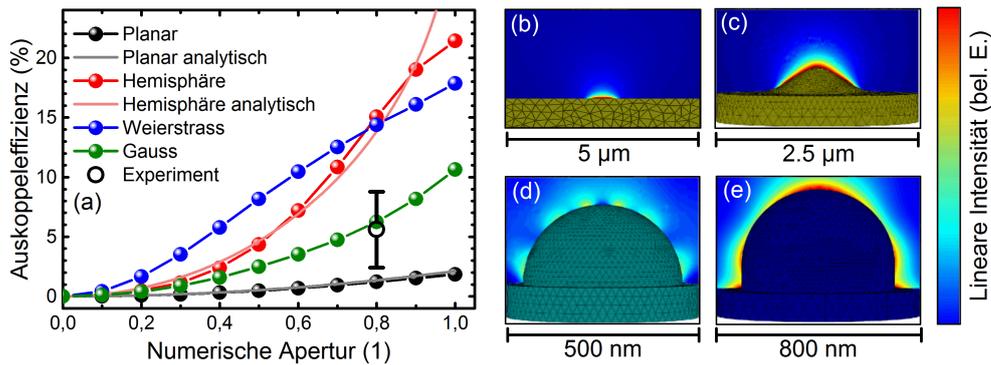
wobei sich die Transmission an den beiden Grenzflächen aus

$$T_{\text{L}} = \left( 1 - \left( \frac{n_1 - n_0}{n_1 + n_0} \right)^2 \right) \left( 1 - \left( \frac{n_2 - n_1}{n_2 + n_1} \right)^2 \right) \quad (6.10)$$

zusammensetzt.

Die berechneten Auskoppelleffizienzen für die beiden Grenzfälle eines Dipolstrahlers (schwarz) und eines isotropen Emitters sind in Abb. 6.3 (b) für eine monolithisch integrierte Linse  $n_2 = n_1 = 3,5$  und in Abb. 6.3 (c) für eine SIL mit  $n_1 = 1,88$  (LaSFN9 Glas) und GaAs als Substrat  $n_2 = 3,5$  dargestellt, wobei in beiden Fällen in Vakuum mit  $n_0 = 1$  ausgekoppelt wird. Deutlich zu erkennen ist die stark reduzierte maximal mögliche Auskoppelleffizienz bei der Verwendung von SILen, welche selbst bei großen numerischen Aperturen weniger als  $1/3$  beträgt. In Abb. 6.3 (b) ist zudem noch die in Kap. 6.2.3 experimentell ermittelte Auskoppelleffizienz der monolithisch gefertigten Linsen mit aufgetragen, welche durch einen Vergleich mit QPen in einer planaren Oberfläche ermittelt werden konnte.

Für die angestrebte monolithische Fabrikation mittels 3D-Elektronenstrahlolithographie ist die Herstellung von perfekt hemisphärischen Linsen, unter anderem aufgrund des Proximity-Effekts, eine Herausforderung. Die entstehenden Abweichungen der Auskoppelleffizienz können, ebenso wie Linsen der Weierstrass-Geometrie, nicht mehr analytisch berechnet werden. Um dennoch die Auskoppelleffizienz ermitteln zu können, wird auf Streurechnungen im Rahmen der finiten elemente Methode (FEM), durchgeführt mittels des Softwarepakets JCMWSuite (siehe Anhang B), zurückgegriffen. Innerhalb dieser Softwareumgebung kann die elektrische Feldverteilung innerhalb und außerhalb einer Linse beliebiger Form, in deren Zentrum sich ein dipolartiger Emitter befindet, in 3D berechnet werden. Aus der winkelabhängigen Intensitätsverteilung im Fernfeld kann dann die in Abb. 6.4 (a) dargestellte Auskoppelleffizienz in Abhängigkeit der numerischen Apertur der Sammeloptik errechnet werden. Die 3D-Gitter, welche die Grundlage der Berechnung bilden, sind in Abb. 6.4 (b) bis (e), zusammen mit der Intensitätsverteilung außerhalb der Linse im Nahfeld, dargestellt. Neben den Fällen des planaren Substrats (b) und der hemisphärischen Linse mit einem Durchmesser von 380 nm (d) wird die in Kap. 6.2.2 hergestellte gaußförmige Linse (c) mit einer Halbwertsbreite von 994 nm und einer Höhe von



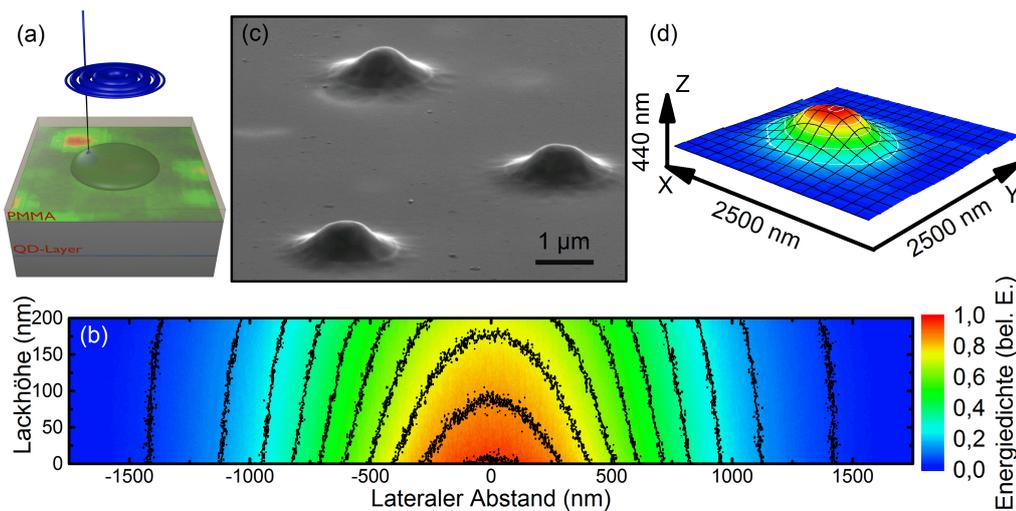
**Abbildung 6.4:** (a) Numerische Berechnungen der Auskoppel-effizienz eines Dipolemitters aus verschiedenen Strukturen, auf der Basis von Streurechnungen, durchgeführt mit JCMSuite. Als zugrundeliegende Geometrien wurde in (b) ein planarer Halbleiter, in (c) eine gaußförmige Mikrolinse, in (d) eine Hemisphäre und in (e) eine Linse in Weierstrass-Geometrie verwendet. (b)-(e) zeigen die 3D-Gitter der Simulation und die Intensitätsverteilung im Nahfeld. Zusätzlich ist in (a) noch die in Kap. 6.2.3 experimentell bestimmte Auskoppel-effizienz und die in Abb. 6.3 und Abb. 6.1 bestimmte analytisch berechnete Auskoppel-effizienz mit eingezeichnet.

450 nm, sowie eine mittels 3D-Lithographie herstellbare Version der Weierstrass-Geometrie (e) berechnet<sup>1</sup>. Gut zu erkennen ist die Übereinstimmung der analytischen Lösung des planaren Substrats und der hemisphärischen Linse (siehe Abb. 6.3 (b) und 6.1 (b)) mit der numerischen Lösung (siehe Abb. 6.4 (a)). Vergleicht man weiterhin die Auskoppel-effizienz der Weierstrass- mit der Auskoppel-effizienz der Hemisphären-Geometrie, so zeigt sich bei ersterer eine deutliche Steigerung bei geringen numerischen Aperturen, was den Effekt der Strahlfokussierung bestätigt. Erst bei  $NA > 0,8$  ist die Hemisphäre der hier untersuchten Weierstrass-Geometrie überlegen. Etwa halb so hohe Auskoppel-effizienzen weisen die leichter herzustellenden und in Kap. 6.2.2 realisierten gaußförmigen Linsen auf, deren experimentell ermittelte Auskoppel-effizienz (siehe Kap. 6.2.3) als schwarzer Kreis mit eingezeichnet ist und von der numerischen Simulation sehr gut bestätigt wird.

## 6.2.2 Deterministische Linsenherstellung

Die Fabrikation der Linsenstrukturen erfolgt während des KLL-Prozesses nach der Kartierung und Selektion von geeigneten QPen mittels 3D-Elektronenstrahlolithographie. Der Prozessablauf entspricht dabei dem in Kap. 5.2.1 beschriebenen, mit dem einzigen Unterschied, dass während des Lithographieschrittes ein rotationssymmetrisches Dosisprofil in den Lack eingebracht wird. Dieses führt nach dem Entwicklungsprozess zu linsenförmigen

<sup>1</sup> Eine Hemisphäre mit einem Radius von 302 nm, welche auf einem Zylinder mit einer Höhe von 98 nm sitzt.



**Abbildung 6.5:** (a) Schematische Darstellung der 3D Linsolithographie. Zur Höhenstrukturierung werden rotationssymmetrische Dosisprofile, zentriert um den QP, in den Lack eingebracht. Die Dosisprofile erzeugen eine Energiedichteverteilung, wie sie in dem in (b) dargestellten Schnitt durch eine Monte-Carlo Simulation berechnet wurden. Deutlich zu erkennen ist das gaußförmige Linsenprofil. (c) SEM-Aufnahme dreier fertig prozessierter Linsen und (d) Höhenprofil der untersten Linse.

PMMA-Masken auf der Oberfläche (siehe hierzu auch die Kontrastkurven in Kap. 4.2.3), welche durch den anschließenden Trockenätzprozess in den darunterliegenden Halbleiter übertragen werden, wodurch das gewünschte Linsenprofil um den QP herum entsteht.

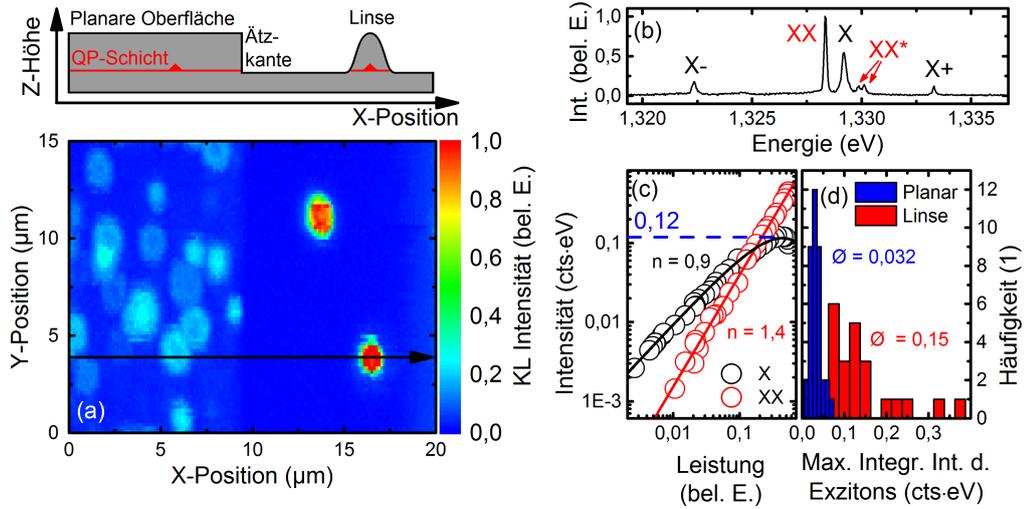
Vorraussetzung für die Anwendung der 3D-Lithographie sind ausreichend große Lackdicken, in welche die Struktur übertragen werden kann. Dies führt in Kombination mit den niedrigen verwendeten Beschleunigungsspannungen zu einem ausgeprägten Einfluss des Proximity-Effekts, dessen Hauptanteil eine gaußförmige Form aufweist (siehe Kap. 4.3). Der Einfachheit halber werden daher zunächst gaußförmige Linsen strukturiert, welche durch den Proximity-Effekt zwar in ihrer Größe, jedoch nicht in ihrer Form, beeinflusst werden. Um dies zu erreichen, wird wie in Abb. 6.5 (a) angedeutet, der Elektronenstrahl im Lithographieschritt des KLL-Prozesses in konzentrischen Kreisen um den QP herum bewegt, wobei die radiale Verweildauer des Strahls und somit die eingebrachte Dosis entsprechend des gewünschten Linsenprofils variiert wird. Den Ausführungen in Kap. 4.3 folgend, findet eine Umverteilung der eingebrachten Dosis durch Faltung mit der PSF statt, aus welcher durch eine Abbildung auf die Kontrastkurve das Höhenprofil errechnet werden kann. Hierfür zeigt Abb. 6.5 (b) für eine radial eingebrachte, gaußförmige Dosisverteilung die Energiedichteverteilung im Lack in einem Längsschnitt, welche anhand einer Monte-Carlo Simulation (siehe Kap. A) errechnet wurde. Für die Simulation wurde ein gaußförmiges Dosisprofil mit einer Breite von  $\sigma = 620$  nm bei 10 kV und einer Lackdi-

cke von 200 nm simuliert. Anhand der Energiedichteverteilung ist zu erkennen, dass die Energiedichte von unten nach oben abnimmt, wodurch die Invertierung des Lacks Probenseitig beginnt. Bei einem geeignet gewählten Dosisbeitrag kann dadurch ein gaußförmiges Höhenprofil erzeugt werden, welches nach der Entwicklung auf der Probe verbleibt. Experimentell hergestellte Linsen sind in der SEM-Aufnahme in Abb. 6.5 (c) dargestellt und weisen das in (d) gezeigte Höhenprofil auf. Um zu erreichen, dass der QP auch in der Höhe richtig plaziert ist, wird die in Tab. C.3 beschriebene Probenstruktur verwendet, welche eine Deckschicht von 400 nm GaAs über den QPen aufweist. In diese Schicht wird die Linsenstruktur geätzt. Dies führt dazu, dass der selektierte QP mittig in der Linse sitzt und umliegende QPe weggeätzt werden.

### 6.2.3 Experimentell ermittelte Erhöhung der Auskoppelleffizienz und quantenoptische Eigenschaften

Nach der Fertigung der positionierten Mikrolinsen wird zur Prozesskontrolle hochauflösende KL-Spektroskopie eingesetzt, um die Erhöhung der Auskoppelleffizienz im Vergleich zu planar eingebetteten QPen zu ermitteln. Hierzu ist in Abb. 6.6 (a) eine im Bereich der QP-Lumineszenz panchromatische KL-Karte der fertig prozessierten Linsenstrukturen (rechts), sowie der daran angrenzenden planaren, ungeätzten Fläche (links) zu erkennen. Die darüberliegende schematische Zeichnung zeigt das Höhenprofil der Probe entlang des schwarzen Pfeils. Die QPe innerhalb des planaren Bereichs wurden während des KLL-Prozesses durch unbelichtetes PMMA geschützt, wodurch der Trockenätzprozess innerhalb der angewendeten Ätzdauer die Halbleiteroberfläche nicht angegriffen hat. Dies hat zur Folge, dass die geschützten QPe weiterhin optisch aktiv sind. Im Vergleich hierzu wurde in den kartierten Bereichen der Lack um die Linsen positiv belichtet und bei der Entwicklung entfernt, wodurch hier das Material bis zur QP-Schicht weggeätzt wurde. Deutlich zu erkennen ist die starke Lumineszenz an den Stellen, wo sich die Linsenstrukturen befinden. Die darin eingebetteten QP weisen eine 4 bis 5 mal höhere Intensität auf als die QPe, welche aus der planaren Oberfläche auskoppeln.

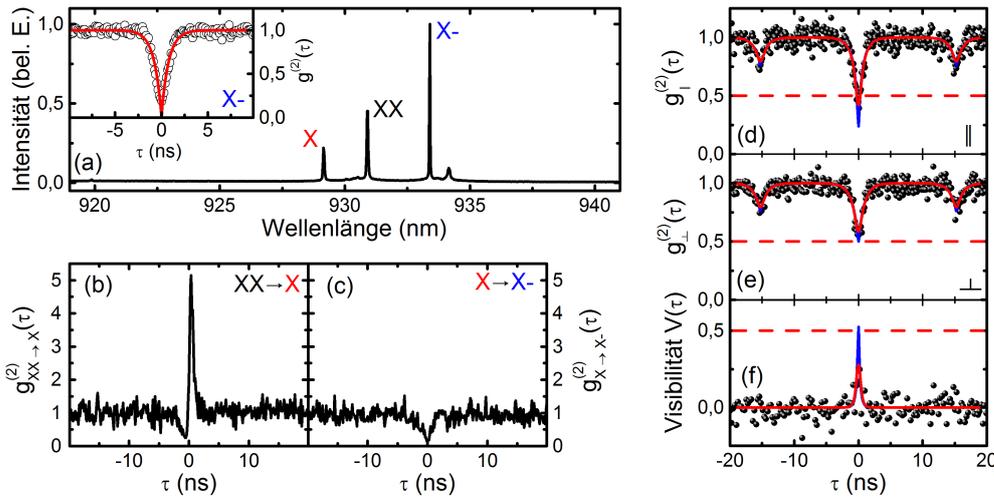
Um diesen ersten Eindruck auch quantitativ zu bestätigen, wird durch eine statistische Analyse die Intensität der QPe verglichen. Exemplarisch ist hierzu in Abb. 6.6 (b) das Spektrum eines QPes gezeigt, an welchem die Leistungsserie, dargestellt in Abb. 6.6 (c), aufgenommen wurde. Um dabei unabhängig von der jeweiligen Anregungssituation zu sein, wird für den Vergleich die Sättigungsintensität der Summe aller monoexzitonischen Komplexe, hier durch die blaue Linie angedeutet, ermittelt. Diese wird als Referenz für die jeweilige Helligkeit des untersuchten QPes verwendet. Die Statistik, welche für 37 QPe im planaren Material und 22 QPe unter Linsen erstellt wurde, ist in Abb. 6.6 (d) dargestellt.



**Abbildung 6.6:** (a) KL-Karte einer fertig prozessierten Linsenprobe und darüber das schematische Höhenprofil entlang des eingezeichneten, schwarzen Pfeils. Links sind die durch den unbelichteten Lack geschützten QPe zu erkennen, rechts zwei in Linsen integrierte QPe mit deutlich höherer KL Intensität. (b) Spektrum einer Linse, aus welcher die in (c) dargestellte leistungsabhängige, integrierte Intensität der exzitonen und biexzitonen Komplexe extrahiert und nach Gl. (3.7) angepasst wurde. Zum Vergleich der Auskoppelleffizienzen (d) zwischen QPen, welche im planaren Material eingebettet sind, und QPen, welche in Linsen integriert sind, wurde jeweils die Sättigungsintensität der Summe der exzitonen Komplexe herangezogen. Im Durchschnitt ergibt sich für den planaren Fall  $\varnothing_P = (0,032 \pm 0,013)$  cts · eV und für die Linsen  $\varnothing_L = (0,145 \pm 0,083)$  cts · eV, wodurch sich eine Erhöhung um  $4,6 \pm 2,6$  und somit im Mittel eine Auskoppelleffizienz von  $\eta_L = (5,6 \pm 3,2)$  %, bezogen auf die numerische Simulation des planaren Falls (siehe Abb. 6.4 (a)), ergibt.

Diese ergibt für den planaren Fall eine mittlere Helligkeit von  $\varnothing_P = (0,032 \pm 0,013)$  cts · eV und für die Linsen  $\varnothing_L = (0,145 \pm 0,083)$  cts · eV, wobei hier deutlich stärkere Fluktuationen, bedingt durch die individuelle Linsenform auftreten. Es lässt sich im Mittel eine Erhöhung um einen Faktor von  $4,6 \pm 2,6$  feststellen. Geht man weiterhin davon aus, dass im planaren Fall bei  $NA = 0,8$  eine Auskoppelleffizienz von 1,22 %, wie in Kap. 6.2.1 numerisch berechnet, vorliegt, kann die Auskoppelleffizienz der gefertigten Linsen zu  $\eta_L = (5,6 \pm 3,2)$  % abgeschätzt werden, was in sehr guter Übereinstimmung mit den numerisch berechneten Werten in Abb. 6.4 für gaußförmige Linsen ist.

Um weiterhin die ausgezeichnete optische Qualität der QPe in Kombination mit dem Vorteil der räumlichen Isolation eines einzelnen QPes zu demonstrieren, sind in Abb. 6.7 die spektroskopischen Ergebnisse unter nichtresonanter Dauerstrichanregung zusammengefasst. Abb. 6.7 (a) zeigt das Spektrum bei  $T = 15$  K einer einzelnen QP-Linse mit auflösungsbegrenzten Linienbreiten von 34  $\mu$ eV, wobei als Inset die Autokorrelationsmessung



**Abbildung 6.7:** (a)  $\mu$ -PL Spektrum eines QPes, welcher in eine Linse integriert wurde. Ein-gebettet dargestellt ist eine Autokorrelationsmessung (schwarze Kreise), sowie der Fit der mit der Detektorzeitauflösung entfaltenen Autokorrelationsfunktion (rote Linie) an dem negativ geladenen Trion mit  $g_{\text{Entf.}}^{(2)}(0) < 0,01$ . Dazu ist die Kreuzkorrelation zwischen dem Biexziton- und Exziton-Zustand (b), sowie zwischen dem neutralen Exziton und geladenen Trion (c) gezeigt. Beides weist darauf hin, dass es sich bei dem gezeigten Spektrum um die Emissionslinien eines einzigen QPes handelt. (d)-(f) HOM Experiment (schwarze Punkte), Fit (rote Linie) und detektorzeitauflösungskorrigierter Fit (blaue Linie) zur Ununterscheidbarkeit der emittierten Photonen des negativ geladenen Trions mit einer Visibilität von  $V_{\text{kor}}(0) = (52 \pm 18) \%$ .

des negativ geladenen Trions dargestellt ist. Hier kann ein gemessenes  $g_{\text{Exp}}^{(2)}(0) = 0,19$  extrahiert werden, welches durch Entfaltung mit der Detektorzeitauflösung von 530 ps auf  $g_{\text{Entf.}}^{(2)}(0) < 0,01$  bestimmt werden kann. Diese niedrige Anzahl an Mehrphotonenereignissen kann darauf zurückgeführt werden, dass durch den KLL-Prozess andere QPe, sowie große Teile der Benetzungsschicht entfernt wurden, wodurch in einem großen Spektralbereich nur ein einziger Emittor verbleibt. Um nachzuweisen, dass alle in Abb. 6.7 (a) dargestellten Linien einem einzigen QP zuzuordnen sind, wird eine Photonen-Kreuzkorrelation durchgeführt. Das Ergebnis zeigt Abb. 6.7, wobei in (b) die Korrelation des biexzitonischen mit dem exzitonischen Komplex und in (c) die Korrelation des neutralen exzitonischen mit dem negativ geladenen exzitonischen Komplex dargestellt ist [SFP<sup>+</sup>02]. Die Kreuzkorrelation mit dem biexzitonischen Zustand als Start-Impuls und dem exzitonischen Zustand als Stopp-Impuls zeigt das charakteristische Verhalten der Emission einer XX-X-Zerfallskaskade (siehe Kap 2.2.2). Hier verbleibt nach dem strahlenden Zerfall des biexzitonischen Zustands ein Exziton im QP, welches auf der Zeitskala seiner Lebensdauer strahlend rekombiniert und somit das starke Bunching bei positiven Zeiten verursacht. Koinzidenzen bei negativen Zeiten haben wiederum die Bedeutung, dass nach der Detek-

tion von Photonen eines exzitonischen Zerfalls ein Photon eines biexzitonischen Zerfalls detektiert wird. Die Wahrscheinlichkeit, dass nach der Rekombination eines Exzitons zwei weitere Exzitonen in den QP relaxieren und in sehr kurzer Zeit zerfallen ist jedoch äußerst gering, weshalb bei negativen Zeiten Antibunching auftritt. Ebenso verhält es sich bei der Kreuzkorrelation zwischen neutral geladenem Exziton und negativ geladenem Trion (Abb. 6.7 (c)). Da sich diese beiden Zerfallskanäle gegenseitig ausschließen und kein kaskadierter Prozess vorliegt, kann bei der Korrelation nur Antibunching vorliegen, sofern die Photonen einem einzigen QP entstammen. Würden hingegen Photonen der Emissionslinien A und B von zwei unterschiedlichen QP'en korreliert werden, so würde sich im Experiment ein  $g_{A \rightarrow B}^{(2)}(0) = 1$  zeigen, da diese unabhängig voneinander emittiert werden. Daher belegen die Kreuzkorrelationsmessung in Abb. 6.7 (b) und (c), dass alle in (a) untersuchten Linien von ein und demselben QP stammen. Ein Umstand, welcher durch die gezielte Isolation durch den KLL-Prozess erreicht wurde.

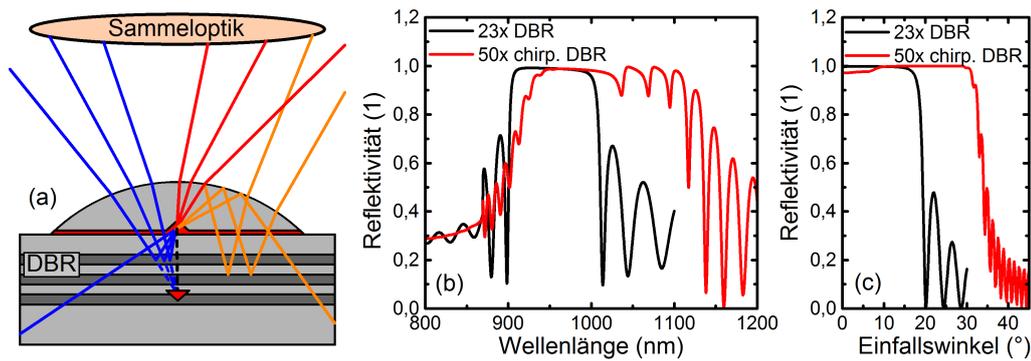
Zur Demonstration der für viele Anwendungen wichtigen Ununterscheidbarkeit wird das emittierte Licht des negativ geladenen Trions in einem fasergekoppelten HOM-Experiment (siehe Kap. 3.3.3) unter nichtresonanter Dauerstrichanregung untersucht. Hierzu wird durch die jeweilige Stellung eines  $\lambda/2$ -Plättchens die Polarisation in einem der Arme des Interferometers in senkrechte oder parallele Konfiguration zueinander gedreht und so gezielt Unterscheidbarkeit und Ununterscheidbarkeit zwischen den Photonen erzeugt. Die Messung in paralleler Konfiguration zum Test auf Ununterscheidbarkeit, ist in Abb. 6.7 (d) dargestellt und zeigt ein deutliches Antibunching mit  $g_{\parallel}^{(2)}(0) = 0,24$ , sowie eine Kohärenzzeit von  $t_c = (0,66 \pm 0,30)$  ns nach Entfaltung mit der Detektorzeitauflösung von 530 ps. Als Referenz ist in Abb. 6.7 (e) die Messung in senkrechter Konfiguration zum Test auf Unterscheidbarkeit dargestellt, welche wie erwartet ein Antibunching von  $g_{\perp}^{(2)}(0) = 0,5$  nach Entfaltung der Detektorzeitauflösung ergibt. Eine Berechnung der korrigierten Visibilität nach Gl. (3.10) ergibt den in Abb. 6.7 (f) dargestellten Verlauf und eine Anpassung daran ergibt ein  $V(0) = (52 \pm 18)$  %. Die Visibilität ist dabei ein Maß des Überlapps der Wellenfunktionen und ergibt 1 für völlig ununterscheidbare Photonen. In dem hier vorliegenden Fall ist die Visibilität jedoch hauptsächlich durch die nichtresonante Anregung limitiert. Diese führt durch die erhöhte Anzahl an Ladungsträgern in der Umgebung der QPe zu spektraler Diffusion auf sehr kurzer Zeitskala und limitiert entsprechend den Überlegungen aus Kap. 2.3.3 die Visibilität. Anregungsschemata unter resonanter oder quasi-resonanter Anregung ermöglichen hingegen deutlich höhere Visibilitäten wie in Kap. 6.3.2 und in [SFV<sup>+</sup>02, GTM<sup>+</sup>14] gezeigt wird.

### 6.3 Linsen-Reflektor Strukturen

Obwohl einfache Linsenstrukturen eine signifikante Verbesserung der Lichtauskopplung bewirken, ist dieser Ansatz alleine nicht ausreichend für erweiterte Konzepte der Quantenkommunikation wie dem Quantenrepeater, welcher deutlich höhere Auskoppelleffizienzen bei gleichbleibender Qualität der Emission erfordert. Die Hauptproblematik besteht in der Tatsache, dass bei dem einfachen Linsenansatz bereits 50 % der emittierten Photonen in den unteren Halbraum, also in das Substrat, verloren gehen und nicht genutzt werden können. Abhilfe schafft ein rückseitiger Spiegel, welcher die in das Substrat emittierten Photonen wieder in Richtung Sammeloptik reflektiert. Die Kombination aus Linsenstruktur, welche für eine erhöhte direkte Auskopplung der nach oben emittierten Photonen sorgt, und einem rückseitigem Spiegel kann für eine deutlich erhöhte Auskoppelleffizienz sorgen. Mit der Frage wie der Aufbau einer solchen Kombination aussehen soll beschäftigt sich Kap. 6.3.1 in welcher auch das zugrunde liegende Prinzip diskutiert wird. Die spektroskopisch erreichten Ergebnisse des optimierten Strukturdesigns sind weiterhin in Kap. 6.3.2 zusammengestellt, in welchem herausragende Auskoppelleffizienzen von bis zu  $\eta_{\text{DBRL}} = (23,3 \pm 3,0) \%$  bei nahezu leistungsunabhängiger quantenoptischer Qualität gezeigt werden.

#### 6.3.1 Numerische Beschreibung und Modellierung

Die geometrische Optimierung der Linsen-Reflektor-Kombination muss unter Beibehalt der Isolation eines einzelnen Emitters erfolgen und ist bei einer QP-Dichte von  $10^8 \text{ cm}^{-2}$  in der Linsengröße auf wenige  $\mu\text{m}$  begrenzt. Dies bedingt, dass der Reflektor nur wenige 100 nm unterhalb des Emitters sitzen darf, damit reflektierte Photonen überhaupt durch den Linseneffekt ausgekoppelt werden können. Metallene Reflektoren weisen dabei zwar sehr gute Reflexionseigenschaften auf, sind technologisch jedoch deutlich aufwendiger herzustellen. Daher wird im ersten Schritt zur Verwirklichung des Linsen-Reflektor-Konzepts auf Bragg-Spiegel zurückgegriffen, welche während des Wachstums in kontrollierter Weise unterhalb der QP-Schicht abgeschieden werden können. Nun gilt es die mittels KLL zu fertigende Linsengeometrie derart zu optimieren, dass eine maximale Auskoppelleffizienz erreicht werden kann. Hierfür sind zum Verständnis der Linsen-DBR-Kombination in Abb. 6.8 (a) verschiedene Lichtwege exemplarisch dargestellt. Die Auskopplung der QP-Emission in den oberen Halbraum wird maßgeblich durch die Krümmung der Linsenoberfläche beeinflusst und ist bei senkrechtem Einfall der Photonen auf die Oberfläche maximal. Wird nur die direkte Auskopplung (rot) berücksichtigt, so stellt die hemisphärische Linse wie in Kap. 6.2.1 dargelegt den Idealfall dar. Berücksichtigt man jedoch auch



**Abbildung 6.8:** (a) Schematische Darstellung der Lichtauskopplung einer Linsen-DBR-Kombination. Die verschiedenen Farben geben unterschiedliche Möglichkeiten der Lichtwege an. Dabei erfolgt die Erhöhung der Auskopplung durch die Linsenkrümmung (rot), durch Rückreflexion an der DBR-Struktur (blau) und durch Rückreflexion der an der Grenzfläche zur Luft reflektierten Photonen (orange). (b) Errechnete Reflektivität einer DBR-Struktur mit 23 Spiegelpaaren (schwarz) optimiert für 945 nm und eines gechirpten DBRs (rot) mit 50 Spiegelpaaren, dessen Wellenlänge zwischen 945 bis 1100 nm gechirpt wurden. (c) Winkelabhängige Reflexionseigenschaften der beiden DBRs.

Photonen, welche an der Oberfläche durch Grenzflächen- oder totale interne Reflexion zurückgestreut werden (orange), so können diese durch den DBR wieder reflektiert werden und bekommen erneut die Möglichkeit ausgekoppelt zu werden. Da die Reflektivität des DBRs jedoch stark vom Einfallswinkel abhängig ist (siehe Abb. 6.8 (c)), wäre zur erhöhten Auskopplung der rückgestreuten Photonen eine parabolische Linsengeometrie mit dem Emitter im Fokus von Vorteil, welche die an der Oberfläche reflektierten Photonen senkrecht in den DBR streut. Weiterhin ist die direkte Emission in den unteren Halbraum (blau) zu berücksichtigen. Diese wird in den Spiegelschichten unterhalb des Emitters reflektiert, wodurch man vereinfachend annehmen kann, dass ein virtuelles Bild der Quelle unterhalb der aktiven Schicht entsteht. Möchte man die Auskopplung der im DBR reflektierten Photonen erhöhen, so ist es wie bei der normalen Linsengeometrie von Vorteil, wenn die Photonen senkrecht auf die Oberfläche fallen. Da die virtuelle Quelle jedoch tiefer liegt als der eigentliche QP, ist zur Auskopplung der reflektierten Photonen eine Hemisphäre mit größerem Radius und tieferliegendem Mittelpunkt erforderlich. Die Kombination der drei angesprochenen Effekte (rot, orange und blau) führt somit zu einer optimalen Linsengeometrie, welche nicht mehr analytisch berechenbar ist. Vielmehr muss auf numerische Methoden zurückgegriffen werden, um die Linsenform zu optimieren. Es ist jedoch bereits zu erwarten, dass hier flachere Linsenstrukturen als in Kap. 6.2 besprochen, erforderlich sind.

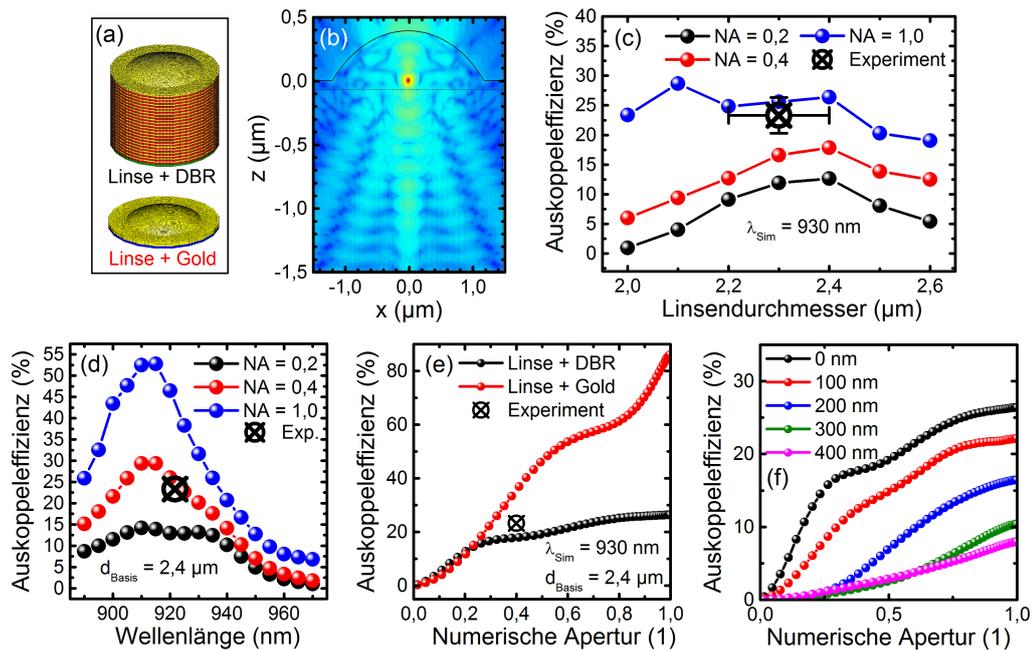
Einen Nachteil bei der Verwendung eines DBRs stellt die winkelabhängige Reflektivität dar, welche in Abb. 6.8 (c) numerisch für 23 Spiegelpaare (schwarz) berechnet wurde. Diese

hängt direkt mit der in (b) dargestellten wellenlängenabhängigen Reflektivität zusammen. Nimmt man vereinfachend an, dass die Reflektivität bei einem Winkel von  $20^\circ$  von 1 auf 0 sinkt, werden nur etwa 3,0% eines vor dem Spiegel platzierten, isotrop abstrahlenden Emitters zurückreflektiert. Abhilfe kann hier die Verwendung eines sogenannten gechirpten DBRs schaffen, dessen Spiegelpaare sukzessive in ihrer Dicke zu größeren Wellenlängen hin variiert werden. Für den in rot dargestellten Fall wurde ein 50-fach DBR simuliert, dessen Schichtdicken über  $\lambda/4n_{\text{GaAs}}$  und  $\lambda/4n_{\text{AlAs}}$  graduell von  $\lambda = 945 \text{ nm}$  bis  $1100 \text{ nm}$  vergrößert wurden. Dieser zeigt deutlich höhere Akzeptanzwinkel bis zu  $34^\circ$ , was zur Rückreflexion von 8,5% des Lichts eines vor den Spiegel platzierten, isotropen Emitters führt.

Um das optimale Design der Linsen-Reflektor-Struktur zu ermitteln, wurden in Zusammenarbeit mit dem Zuse-Institut Berlin<sup>1</sup> numerische 2D und 3D Streurechnungen, basierend auf dem Softwarepaket JCMSuite durchgeführt, dessen Ergebnisse in Abb. 6.9 zusammengefasst sind (siehe auch Anhang B). Für die anfängliche Optimierung wurde dabei auf 2D-Streurechnungen zurückgegriffen, welche die generellen Eigenschaften der simulierten Strukturen widerspiegeln und als Basis für die numerischen 3D Berechnungen dienen. Eine Bestimmung der tatsächlichen physikalischen Größen kann jedoch nur in einer aufwendigen 3D-Simulation erfolgen. Aufgrund der durch den DBR ausgedehnten Struktur werden hierfür erhebliche Rechenkapazitäten<sup>2</sup> benötigt, weswegen die Berechnungen durch das Zuse-Institut Berlin durchgeführt wurden. Die 3D-Rechengitter der zugrundeliegenden, untersuchten Strukturen sind in Abb. 6.9 (a) dargestellt. Der Fokus der Optimierung liegt dabei auf der Linsen-DBR-Kombination, welche aus einer unteren DBR-Sektion mit 23 Spiegelpaaren und einer  $400 \text{ nm} + \lambda_{\text{Sim}}/2n$  dicken GaAs Deckschicht, in welche die Linse integriert ist, besteht. Dabei ist  $\lambda_{\text{Sim}} = 930 \text{ nm}$  die Wellenlänge auf welche optimiert wird und  $n$  der Brechungsindex von GaAs (das genaue Probenlayout ist in Tab. C.4 zu finden). Der Emmitter, welcher als Punktquelle definiert wird, befindet sich entsprechend der realen Struktur in einer Tiefe von  $400 \text{ nm}$  zur Oberfläche. In Kombination mit den geometrischen Überlegungen am Anfang des Kapitels kann nun anhand der numerischen Simulationen die erforderliche optimale Linsengeometrie bestimmt werden. Getestet wurden Gauß-, Hemisphärische- und Weierstrass-Geometrien, wobei sich herausstellt, dass die höchsten Auskoppelleffizienzen durch die Verwendung von flach angeschnittenen Kugelsegmenten erreicht werden können. Das Nahfeld eines Kugelsegments mit einer Höhe

<sup>1</sup> Konrad-Zuse-Zentrum für Informationstechnik Berlin, Takustraße 7, 14195 Berlin, <http://www.zib.de>

<sup>2</sup> Die Bestimmung der Auskoppelleffizienz einer einzigen simulierten Struktur für verschiedene numerische Aperturen benötigt auf einem Rechner mit 890 GB Arbeitsspeicher, 32 Prozessorkernen mit je 2,4 GHz Taktfrequenz etwa 12h.



**Abbildung 6.9:** Numerische JCMSuite Simulationen des Zuse-Instituts Berlin zur Auskoppel-effizienz einer Kombination aus Linse und Reflektor: (a) Die zur Simulation verwendete Gittergeometrie für eine Linse-DBR-Kombination (oben) und eine Linse-Goldspiegel-Kombination (unten). (b) Nahfeld einer Linsen-DBR-Kombination. Errechnete Auskoppel-effizienz der Linsen-DBR-Kombination für verschiedene numerische Aperturen in Abhängigkeit des Basisdurchmessers der Linse (c) bzw. der Emitterwellenlänge (d). (e) Auskoppel-effizienz der in (a) gezeigten Strukturen. Der schwarze, gekreuzte Kreis in (c) bis (e) zeigt die experimentell ermittelte Auskoppel-effizienz. (f) NA-abhängige Auskoppel-effizienz einer Linse-DBR-Kombination unter lateraler Fehlpositionierung der Linse.

von 400 nm und einem Basisdurchmesser von  $d_{\text{Basis}} = 2,4 \mu\text{m}$ , bei einer simulierten Emissionswellenlänge des Emitters  $\lambda_{\text{Sim}} = 930 \text{ nm}$ , zeigt Abb. 6.9 (b). Die für  $\text{NA} = 0,4$  und  $\lambda_{\text{Sim}} = 930 \text{ nm}$  optimale Linsengeometrie wurde dabei durch die in Abb. 6.9 (c) durchgeführte Variation des Basisdurchmessers der angeschnittenen Kugelsegmente ermittelt, wobei die Segmenthöhe von 400 nm beibehalten wurde. Die wellenlängenabhängige Auskoppel-effizienz der Linse mit  $d_{\text{Basis}} = 2,4 \mu\text{m}$  ist in Abb. 6.9 (d) gezeigt. Man kann erkennen, dass eine breitbandige Auskopplung der Photonen mit einer spektralen Bandbreite von ca. 40 nm möglich ist. Es zeigt sich jedoch auch, dass das zugrundeliegende Layout sein Effizienzmaximum bei 915 nm und nicht, wie angestrebt, bei 930 nm hat. Die Ursache hiervon ist die nicht-triviale Abhängigkeit von den Dicken der DBR-Schichten, dem Abstand zwischen Emitter und DBR, sowie der Segment-Höhe und -Krümmung. Die Auskoppel-effizienz der in Abb. 6.9 (a) gezeigten Strukturen mit  $d_{\text{Linse}} = 2,4 \mu\text{m}$ , bei  $\lambda_{\text{Sim}} = 930 \text{ nm}$  in Abhängigkeit der NA der Sammeloptik ist in Abb. 6.9 (e) dargestellt. Bei der hier

untersuchten Linsen-DBR-Geometrie können bei einer NA von 0,4 bis zu 18 % erreicht werden. In rot ist weiterhin die Effizienz einer Linsen-Goldspiegel-Kombination gleicher Form gezeigt, welche für hohe numerische Aperturen Auskoppelleffizienzen bis zu 86 % erreicht. Diese Strukturen sind bei der Herstellung jedoch auf flip-chip-Prozesse und auf eine Methode zur Unterdrückung der Metaldiffusion im Halbleiter angewiesen. Zusätzlich zu den simulierten Werten ist in Abb. 6.9 (c) bis (e) die experimentell ermittelte Auskoppelleffizienz von  $\eta_{\text{Linse-DBR}} = (23,3 \pm 3,0) \%$  des Emitters der Wellenlänge  $\lambda_E = 922 \text{ nm}$ , welcher in einer Linse mit dem Durchmesser  $d_{\text{Basis}} = (2,3 \pm 0,1) \mu\text{m}$  sitzt und in eine NA von 0,4 emittiert, als gekreuzter Kreis mit dargestellt. Zentraler Punkt der Fabrikation ist die Notwendigkeit einer guten räumlichen Positionierung des Emitters. Abb. 6.9 (f) zeigt die Veränderung der Auskoppelleffizienz bei einer sukzessiven Fehlpositionierung der Linse in lateraler Richtung. Obwohl die hier dargestellte Situation im Vergleich zu Resonatorstrukturen wie z.B. photonischen Kristallen [DRS<sup>+</sup>11] deutlich besser ist, führt eine Fehlpositionierung von 100 nm dennoch zu Einbußen von bis zu 20 %. Dies zeigt, dass für die Herstellung von Linsen in der Größenordnung von wenigen  $\mu\text{m}$  eine deterministische Technologie zur Integration erforderlich ist.

Entsprechend dieser Vorgaben ist die Probenherstellung auf einer DBR-Probe mit 400 nm Deckschicht (siehe Tab. C.4), analog zu dem in Kap. 6.2.2 beschriebenen Verfahren, durchgeführt worden. Besonderes Augenmerk lag dabei auf der Fabrikation von flachen, breiten Linsenstrukturen mit geringem Krümmungsradius, welche das Ergebnis der hier durchgeführten Simulationen darstellen. Zur Integration wurden QPe im Wellenlängenbereich zwischen 920 nm und 940 nm ausgewählt. Es ist jedoch anzumerken, dass sich durch den DBR ein höheres Signal-zu-Rausch-Verhältnis ergibt, wodurch sich die Emissionslinien einfacher den einzelnen QPen und exzitonischen Komplexen zuordnen lassen, was das Verfahren zur Auswahl der QPe generell vereinfacht.

### 6.3.2 Experimentell ermittelte Auskoppelleffizienz und quantenoptische Eigenschaften

Die quantenoptischen Untersuchungen der fertig prozessierten Linsenstrukturen wurden von Alexander Thoma im Rahmen seiner Promotion durchgeführt. Mit seiner freundlichen Genehmigung wird hier in Auszügen von den gewonnenen Erkenntnissen berichtet. Weitere Details zu den Untersuchungen und weitere Messergebnisse werden in seiner Doktorarbeit, durchgeführt an der Technischen Universität Berlin, dargelegt.

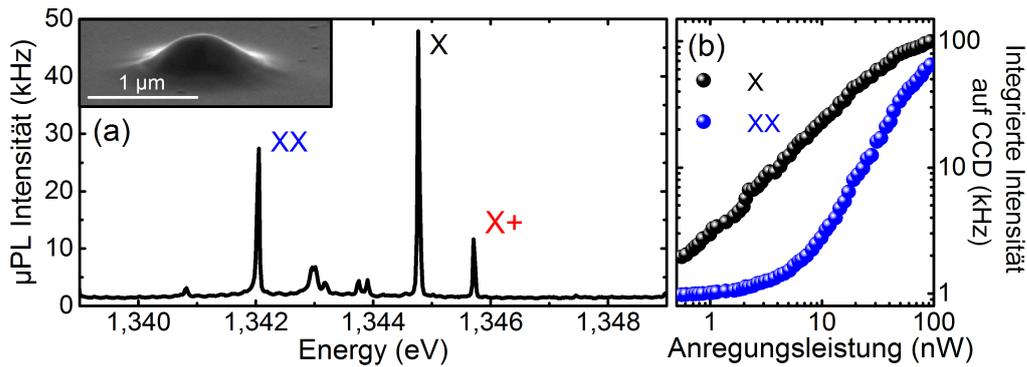
### Auskoppeffizienz

Der Kernaspekt bei der Integration von QPen in nanophotonische Strukturen ist die Erhöhung der Auskoppeffizienz  $\eta$ . Die Auskoppeffizienz ist die Wahrscheinlichkeit, dass nach der Anregung des QPes ein Photon in einen gewissen Raumwinkel ausgekoppelt wird. Bei den folgenden Untersuchungen wurde mit einer numerischen Apertur von 0,4 gearbeitet, wodurch die Auskoppeffizienz für den dadurch vorgegebenen Winkel bestimmt wird. Um diese zu ermitteln, wird zunächst die Setupeffizienz  $\eta_{\text{Aufbau}} = (0,80 \pm 0,08) \%$  des  $\mu$ -PL-Aufbaus, dargestellt in Abb. 3.4, bei der gleichen Wellenlänge wie die Emissionswellenlänge des QPes unter Photonennraten die der QP-Signalarate entsprechen, durch einen Laser bestimmt.

In Abb. 6.10 (a) ist das Spektrum des QPes zu erkennen, dessen Auskoppeffizienz zu bestimmen ist. In der Grafik eingebettet ist exemplarisch eine mittels KLL gefertigte Mikrolinse gezeigt. Der QP, welcher untersucht wird, ist in eine Mikrolinse mit einem Durchmesser von  $(2,3 \pm 0,1) \mu\text{m}$  integriert, was im Rahmen der Ungenauigkeit dem errechneten optimalen Linsendurchmesser von  $2,4 \mu\text{m}$  entspricht (siehe Diskussion in Kap. 6.3.1). Die höchsten Zählraten auf dem CCD-Chip können für diesen QP bei nichtresonanter Anregung mit einer Wellenlänge von  $810 \text{ nm}$  und einer Pulsfrequenz von  $\Gamma_{\text{Laser}} = 80 \text{ MHz}$ , bei einer Sättigungsleistung des QPes von  $100 \text{ nW}$  erreicht werden (siehe Abb. 6.10 (b)). Die exakte Bestimmung der Auskoppeffizienz erfolgt durch eine APD, welche fasergekoppelt an einen Monochromator zur spektralen Filterung, angebracht ist. Eine Bestimmung der Zählraten des polarisationsaufgespaltenen Exzitons ergibt für jede Polarisationsrichtung  $\Gamma_{\text{APD}} = (60 \pm 1) \text{ kHz}$ , woraus sich für die Gesamtauskoppeffizienz

$$\eta_{\text{QD,X}} = \frac{2 \cdot \Gamma_{\text{APD}}}{\Gamma_{\text{Laser}} \cdot \eta_{\text{Aufbau}}} = (18,8 \pm 1,9) \% \quad (6.11)$$

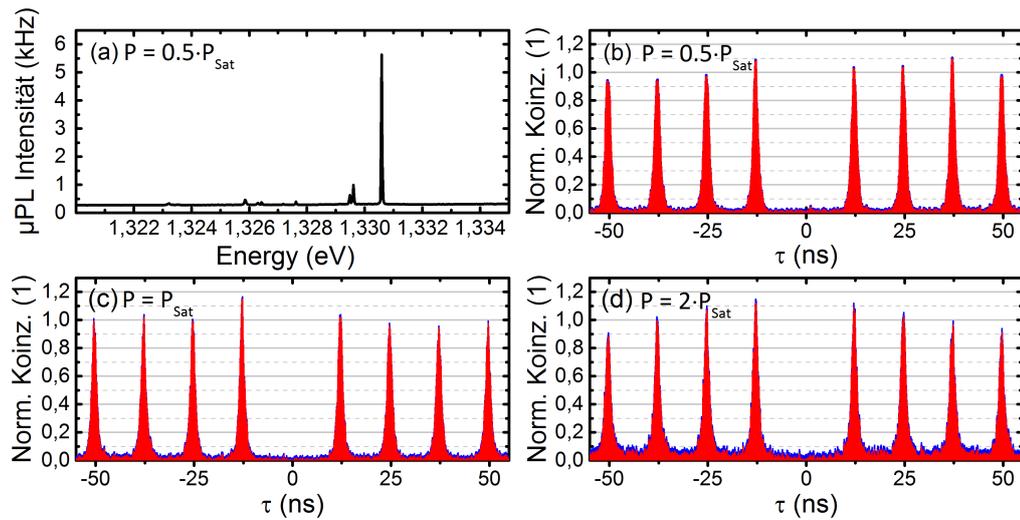
ergibt, unter der Annahme einer internen Quanteneffizienz von 1. Da jedoch pro Anregungspuls immer mehrere, sich gegenseitig ausschließende exzitonische Komplexe angeregt werden, muss nach dem gleichen Verfahren die Auskoppeffizienz der Trionen mitbestimmt werden. Hierfür ergibt sich für  $\eta_{\text{QD,X}^+} = (4,6 + 2,3) \%$ , wohingegen das negativ geladene Trion keine detektierbare Emission zeigt. Die Summe der beiden Auskoppeffizienzen ergibt somit  $\eta_{\text{QD}} = (23,3 \pm 3,0) \%$ . Die in Kap. 6.3.1 berechnete Auskoppeffizienz zeigt hervorragende Übereinstimmung mit der hier Gemessenen, wenn man wie in Abb. 6.9 (d) berücksichtigt, dass der Emittor bei einer Emissionswellenlänge um  $\approx 922 \text{ nm}$  emittiert. Dies macht insbesondere deutlich, dass der Ansatz mit Linsen robust ist gegenüber Ungenauigkeiten in der Fertigung.



**Abbildung 6.10:** (a) Spektrum einer Linse-DBR-Kombination mit einer Auskoppel-effizienz aller exzitonenischen Komplexe von insgesamt  $\eta_{\text{Linse-DBR}} = (23,3 \pm 3,0) \%$  unter nichtresonan-ter Anregung. Darin eingebettet ist exemplarisch eine mittels KLL gefertigte Mikrolinse gezeigt. (b) Leistungsserie des exzitonenischen und biexzitonenischen Komplexes mit einer integrierten Intensität von mehr als 0,1 MHz auf einem CCD-Chip.

### Einzelphotonenemission

Ein Aspekt, welcher insbesondere für die Realisierung eines Quantenrepeaters betrachtet werden muss, ist neben einer hohen Auskoppel-effizienz die Ununterscheidbarkeit der emittierten Photonen und der Einzelphotonencharakter der Emission [PCL<sup>+</sup>12]. Diesbezüglich soll im Folgenden die Linse-DBR-Kombination untersucht werden. Die Einzelphotonen-emission wird dabei in einer fasergekoppelten HBT-Messanordnung (siehe Kap. 3.3.2) unter quasi-resonan-ter, gepulster Anregung in die p-Schale des QPes bei verschiedenen Leistun-gen untersucht. Das vom QP emittierte Spektrum, welches bei einer Leistung von 30  $\mu\text{W}$  aufgenommen wurde, ist in Abb. 6.11 (a) dargestellt und zeigt eine einzelne Linie, welche dem positiv geladenen Trion zugeordnet werden kann. Nun kann für verschiedene Leistun-gen, welche einem Vielfachen der Sättigungsleistung (0,5x; 1,0x; 2,0x) dieses Komplexes entsprechen, die Einzelphotonencharakteristik ermittelt werden, welche in Abb. 6.11 (b) bis (d) dargestellt ist. Nach Korrektur des Untergrundes von den Rohdaten (blau) kann aus den korrigierten Daten (rot) für alle Leistungen ein  $g^{(2)}(0) < 0,01$  ermittelt werden. Dies steht in starkem Kontrast zu kavitätsbasierten Ansätzen mit mehreren Emittlern, wel-che durch nichtresonante Kopplung an den Resonator bei zunehmender Leistungen eine verstärkte Mehrphotonenemission aufweisen [GMdVA<sup>+</sup>13]. Die gute Einzelphotonencha-rakteristik ist eine direkte Folge der deterministischen Isolation eines QPes, durch welche störende Emittler und benachbarte QPe effektiv entfernt werden können. Obwohl dieser Effekt bei allen nicht-kavitätsbasierten Ansätzen mit einem isolierten QP, wie z.B. bei photonischen Nanodrähten [CBM<sup>+</sup>10] auftritt, zeigen die hier untersuchten Strukturen zusätzlich einen hohen Grad an Ununterscheidbarkeit, welcher durch die große Entfernung



**Abbildung 6.11:** (a)  $\mu$ -PL-Spektrum eines QPES in einer Linsen-DBR-Kombination zur Untersuchung der Einzelphotonenemission und der Ununterscheidbarkeit der emittierten Photonen. Die Anregungsleistung entspricht der halben Sättigungsleistung  $P_{\text{sat}}$  des exzitonicen Komplexes. (b) - (d) Gepulste Autokorrelation, durchgeführt mit der HBT-Messanordnung, bei verschiedenen Anregungsleistung bis hin zur doppelten Sättigungsleistung des untersuchten exzitonicen Komplexes. Die fehlenden Koinzidenzen um  $\tau = 0$  zeugen von  $g^{(2)}(0) < 0,01$  und sprechen deutlich für den robusten Einzelphotonencharakter der Emission.

zu geätzten Oberflächen zu erklären ist.

### Ununterscheidbarkeit

Die Ununterscheidbarkeit wird in einem faserbasierten Hong-Ou-Mandel Experiment (siehe Kap. 3.3.3) unter quasi-resonanter Anregung, bei unterschiedlichen Anregungsleistungen, untersucht. Hier zeigt sich bei einem Anregungsabstand von 12,5 ns eine korrigierte (rohe) Zwei-Photonen-Interferenz-Visibilität von  $V_{\text{HOM}}^{12,5\text{ns}} = (43 \pm 4) \% ((25 \pm 3) \%)$ , welche ebenso wie der Einzelphotonencharakter nahezu unabhängig von der Anregungsleistung ist. Zur Korrektur wurden die Dunkelzählraten der APDs, die Wahrscheinlichkeit für Mehrphotonenereignisse, das asymmetrische Strahlteilverhältnis von  $R = 0,51$  zu  $T = 0,49$ , sowie der endliche Photonenüberlapp im Strahlteiler von 98 % berücksichtigt. Eine höhere Visibilität erhält man bei einem geringeren Pulsabstand von 2 ns, wo sich unter quasi-resonanter Anregung in Sättigung, eine korrigierte (rohe) Visibilität von  $V_{\text{HOM}}^{2\text{ns}} = (80 \pm 7) \% ((76 \pm 4) \%)$  ergibt [GTS<sup>+</sup>15]. Noch höhere Visibilitäten sollten sich unter strikt-resonanter Anregung ergeben, wie bereits bei planaren Kavitäten (99,5 %) [WHC<sup>+</sup>14] gezeigt wurde. Ein zweifarbiges quasi-resonantes Anregungsschema kann ebenfalls sehr hohe Visibilitäten erzeugen, wodurch bei Mikrosäulenresonatorstrukturen bereits  $V = 92 \%$  [GMdVA<sup>+</sup>13] nachgewiesen werden konnte.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass der Ansatz einer Linsen-DBR-Kombination neben hohen breitbandigen Auskoppelleffizienzen eine nahezu leistungsunabhängige Qualität des Einzelphotonencharakters und der Ununterscheidbarkeit der emittierten Photonen bietet. Dies sind Vorzüge, welche nur durch eine gezielte Isolation eines einzelnen QPs mittels KLL und dem Verzicht auf Resonatorstrukturen erreicht werden können und mit anderen Ansätzen nicht oder nur schwer zu realisieren sind. Obwohl die Auskoppelleffizienz noch deutlich unter 70 % liegt, wie es für die Anwendung in einem Quantenrepeater [SSM<sup>+</sup>07, SZ12] benötigt wird, zeigen die durchgeführten numerischen Berechnungen in Kap. 6.3.1, dass bei der Verwendung von gechirpten DBRs und insbesondere Goldreflektoren Auskoppelleffizienzen von über 86 % bei großen numerischen Aperturen erreichbar sind.

## 6.4 Kavitätsintegrierte Mikrolinsen

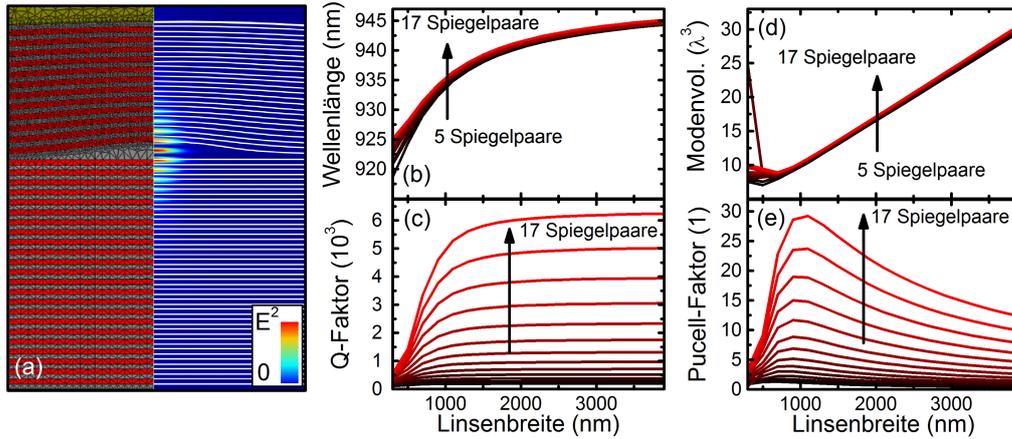
Der nächste logische technologische Schritt nach der Kombination einer Linse mit einer unteren DBR-Sektion zur Erhöhung der Auskoppelleffizienz ist die Integration einer Linse in eine Kavitätsstruktur zur Erzielung von cQED-Effekten. Dies führt durch den Purcell-Effekt zu höheren Repetitionsraten und ist insbesondere für die Anwendung als Einzelphotonenquelle interessant. Das Design, welches von Muller *et. al* [MLA<sup>+</sup>06, MSA<sup>+</sup>06b, MSA<sup>+</sup>06a] vorgeschlagen und realisiert wurde, besteht aus einer Mesa, welche von zwei DBR-Sektionen umschlossen wird (siehe Abb. 6.12 (a)). Dieser Designvorschlag wurde später von Ding *et al.* [DSM<sup>+</sup>13] verbessert, welcher errechnet, dass durch eine gaußförmige „Mesenstruktur“, bzw. Linse, ein erhöhter Q-Faktor bei gleichbleibenden Modenvolumen erreicht werden können. Die Funktionsweise der Struktur besteht darin, dass die DBR-Sektionen einen photonischen Einschluss in vertikaler Richtung verursachen. Die „Linse“ hingegen, welche in der Kavitätsschicht integriert ist, sorgt für den photonischen Einschluss in der Ebene, woraus sich eine laterale Reduktion des Modenvolumens der Resonatormode ergibt. Der Vorteil dieser Struktur liegt vor allem darin, dass der Resonator vollständig in eine planare Struktur integriert ist. Im Vergleich zu Mikrosäulenresonatoren tritt dadurch keine Reduktion des Q-Faktors durch Streuung an den Resonatorwänden auf, und es ist eine bessere thermische Kopplung an die Umgebung, sowie eine einfachere elektrische Kontaktierung möglich. Gängige Herstellungsprozesse beruhen auf der Herstellung von Mesastrukturen in QP-Schichten [MLA<sup>+</sup>06], einer selbstständigen Entstehung während des Wachstumsprozesses aufgrund von Defekten [MGF<sup>+</sup>14] oder auf einer gezielten Vorstrukturierung des Substrats, gefolgt von dem Aufspalten der gesamten planaren Kavitätsstruktur [MDS<sup>+</sup>13a]. Um einen QP effektiv an das entstandene Modenfeld koppeln

zu können, muss sich der QP entsprechend Gl. (2.25) räumlich im Maximum der Feldintensität befinden und spektral in Resonanz mit der Resonatormode sein. Damit die Herstellung unabhängig von Zufallsprozessen wird und spektral und räumlich in kontrollierter Art und Weise durchgeführt werden kann, sind deterministische Methoden wie z.B. KLL erforderlich. Voraussetzung ist dabei jedoch eine detaillierte Kenntnis des Verhaltens der entstehenden Resonatormode, welche sowohl durch die Form der Linse, als auch durch die DBR-Spiegel beeinflusst wird. Die Eigenschaften des kombinierten Systems werden in Kap. 6.4.1 anhand numerischer Resonanzmoden-Simulationen evaluiert, durch welche auch ein geeignetes Probenesign ermittelt wird. Mit den daraus gewonnenen Erkenntnissen kann mittels KLL in Kombination mit einem definierten Probenwachstumsprozess die QP-Emissionswellenlänge auf die Resonanz der kavitätsintegrierten Mikrolinsen abgestimmt werden. Die Herstellung der Strukturen wird daran anschließend in Kap. 6.4.2 behandelt, woraufhin in Kap. 6.4.3 eine Zusammenfassung der spektroskopischen Erkenntnisse erfolgt.

#### 6.4.1 Numerische Beschreibung und Modellierung

Zum Verständnis des spektralen Verhaltens der Resonatorgrundmode in Abhängigkeit der Probengeometrie wird auf numerische Simulationsrechnungen basierend auf der Methode der finiten Elemente zurückgegriffen. Die Berechnungen erfolgen mit der kommerziell erhältlichen Simulationssoftware JCMSuite, beschrieben in Anhang B, und basieren auf Resonanzmodenberechnungen zur Untersuchung der Grundmode [PBZS07]. Ziel dieser Berechnungen ist es die Resonanzwellenlänge in Abhängigkeit der Probengeometrie zu bestimmen, um diese deterministisch mit der QP-Emission abstimmen zu können. Weiterhin sollen Eigenschaften des Resonators im Hinblick auf seine Güte, den Purcell-Effekt und die Auskoppelleffizienz ermittelt werden, aus welchen dann das optimale Probenlayout abgeleitet werden kann.

Das Rechengitter der simulierten Struktur ist in Abb. 6.12 (a, links) zu erkennen, welches um die z-Achse rotiert zur zylindersymmetrischen Struktur aufgespannt wird. Abb. 6.12 (a, rechts) zeigt dabei die quadrierte elektrische Feldverteilung innerhalb des Rechengebiets. Die DBR-Sektionen bestehen aus alternierenden Paaren aus  $\lambda/4n$ -dicken Schichten aus GaAs ( $n_{\text{GaAs}} = 3,56$ ) und AlAs ( $n_{\text{AlAs}} = 3,04$ ) und werden entsprechend dem Probenaufbau in Tab. C.5 für die untere DBR-Sektion mit 23 Spiegelpaaren simuliert. Die Linse wird als gaußförmig mit einer variablen Linsenbreite von  $\sigma_{\text{Linse}}$  und einer festen Höhe von  $3\lambda/4n$  angenommen, wobei zusammen mit der letzten  $\lambda/4n$  Spiegelschicht eine  $\lambda$  Kavität in der Mitte der Linse entsteht. Die Struktur wird mit einer oberen DBR-Sektion, bestehend aus 5 bis 17 Spiegelpaaren abgeschlossen, welche erneut aus  $\lambda/4n$  dicken Schichten



**Abbildung 6.12:** (a, links) 2D Gitter der simulierten, kavitätsintegrierten Linsenstruktur und (a, rechts) das quadrierte elektrische Feld der fundamentalen Kavitätsmode in linearer Skalierung. (b) Numerisch berechnete Resonanzwellenlänge in Abhängigkeit der Defektbreite unter Variation der oberen Spiegelanzahl von 5 (schwarz) Spiegelpaaren bis 17 (rot) Spiegelpaaren. Dazu die für die entsprechenden Resonanzen errechneten Q-Faktoren (c), Modenvolumina (d) und die sich daraus ergebenden Purcell-Faktoren (e).

aus GaAs und AlGaAs bestehen. Darin setzt sich die Gaußform mit einer Breite von  $\sigma_{\text{DBR},i,j} = \sigma_{\text{Linse}} + i \cdot \lambda/4n_{\text{GaAs}} + j \cdot \lambda/4n_{\text{AlAs}}$ , wobei  $i$  und  $j$  die Indizes der einzelnen Schichten darstellen, fort. Das Ergebnis der Resonanzmodenberechnung der Grundmode ergibt das in Abb. 6.12 (b) bis (e) dargestellte Verhalten in Abhängigkeit der Linsenbreite und der Anzahl der oberen Spiegelpaare. Dabei berechnet sich die Resonanzwellenlänge (b) und der Q-Faktor (c) [SKV05, SBP<sup>+</sup>06] aus

$$\lambda_{\text{Res}} = \frac{2\pi \cdot c_0}{\text{Re}(\omega)} \quad \text{und} \quad Q_{\text{Res}} = -\frac{\text{Re}(\omega)}{2 \cdot \text{Im}(\omega)}, \quad (6.12)$$

mit  $\omega$  als komplexer Eigenwert der zeitharmonischen Maxwellgleichung B.4. Das Modenvolumen  $V_{\text{M}}$  [GBM<sup>+</sup>96] kann aus der elektrischen Feldstärkeverteilung  $\mathbf{E}(\mathbf{r})$  über

$$\begin{aligned} V_{\text{M}} [\lambda_{\text{Res}}^3] &= \left( \frac{n_{\text{GaAs}} + n_{\text{AlAs}}}{2 \cdot \lambda_{\text{Res}}} \right)^3 \cdot V_{\text{M}} [\text{m}^3] \\ &= \left( \frac{n_{\text{Eff}}}{\lambda_{\text{Res}}} \right)^3 \cdot \frac{\int \epsilon |\tilde{\mathbf{E}}(\mathbf{r})|^2 d^3\mathbf{r}}{\text{Max}(\epsilon |\tilde{\mathbf{E}}(\mathbf{r})|^2)} \end{aligned} \quad (6.13)$$

mit  $n_{\text{Eff}}$  als effektiver Brechungsindex,  $\epsilon$  als Dielektrizitätskonstante und  $\text{Max}(\epsilon |\tilde{\mathbf{E}}(\mathbf{r})|^2)$  als maximale Feldintensität berechnet werden. Der maximal mögliche Purcell-Faktor (siehe Abb. 6.12 (e)) für einen resonant gekoppelten QP ergibt sich aus dem Q-Faktor, dem Modenvolumen und der Resonanzwellenlänge über den ersten Term in Gl. (2.25):

$$F_P = \frac{3Q(\lambda_C/n)^3}{4\pi^2 V_M}. \quad (6.14)$$

Es zeigt sich aus Abb. 6.12 (b), dass für die Anpassung zwischen Resonanzwellenlänge und QP-Emissionswellenlänge ein von der Anzahl der Spiegelpaare nahezu unabhängiger Spektralbereich von ca. 20 nm zur Verfügung steht, was durch eine Veränderung der Linsengeometrie erreicht werden kann. Die Resonanzwellenlänge verschiebt dabei ausgehend von  $\sigma_{\text{Linse}} \rightarrow \infty$ , welches dem planaren Kavitätsfall entspricht, zu kürzeren Wellenlängen, was durch die laterale Modenlokalisierung hervorgerufen wird. Eine starke Abhängigkeit von der Linsengeometrie zeigt erwartungsgemäß das Modenvolumen, welches ein Minimum bei einer Linsenbreite von 500 nm aufweist. Bei großen Linsen ist das Lichtfeld lateral auf einen größeren Bereich ausgedehnt und bei kleinen Linsen sorgt die zu starke Einschränkung dafür, dass sich die optische Mode im DBR ausbreitet. Das Modenvolumen in Kombination mit dem Q-Faktor ist über Gl. (6.14) für das Verhalten des Purcell-Faktors verantwortlich. Dieser besitzt ein ausgeprägtes Maximum bei etwa 1  $\mu\text{m}$  und ist über den Q-Faktor stark von der Anzahl der Spiegelpaare abhängig. Bei kleineren Linsenbreiten wird der Purcell-Faktor  $F_P \propto Q_{\text{Res}}/V_M$  durch den geringer werdenden Q-Faktor begrenzt, wohingegen sich bei größeren Linsenbreiten das Modenvolumen weiter in der Kavitätsschicht ausdehnen kann. Die optimale Linsenbreite liegt im Bereich der in Kap. 6.2.2 hergestellten Mikrolinsen.

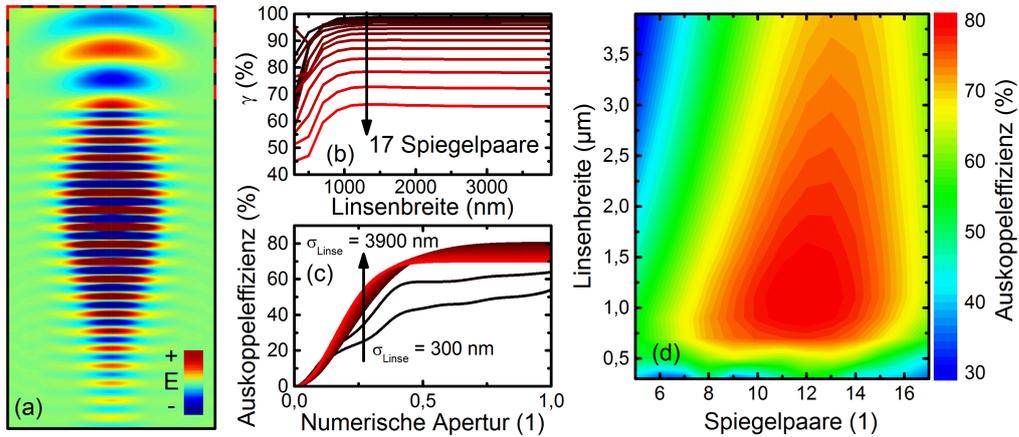
Um die optischen Eigenschaften des Bauteils weiter beurteilen zu können, ist eine Betrachtung der Auskoppel-effizienz notwendig. Diese ist im Wesentlichen von den Parametern  $\beta$  und  $\gamma$  bestimmt [BBG<sup>+</sup>02, GKM13], deren Produkt die Auskoppel-effizienz

$$\eta = \beta \cdot \gamma \quad (6.15)$$

ergibt. Dabei beschreibt

$$\beta = \frac{\Gamma_M}{\Gamma_M + \Gamma_{\text{Rest}}} = \frac{F_P}{F_P + 1} \quad (6.16)$$

den Anteil der QP-Emission, welcher in die gewünschte Resonatormode eingekoppelt wird, mit der spontanen Emissionsrate  $\Gamma_M$  in die betrachtete Resonatormode und der spontanen Emissionsrate  $\Gamma_{\text{Rest}}$  in alle anderen verfügbaren Moden. Daraus ergibt sich mit der Definition des Purcell-Faktors die rechte Seite von Gl. (6.16) [GKM13]. Diese Kopplung des Emitters an die Resonatormode kann bereits mit den in Abb. 6.12 (e) berechneten Purcell-Faktoren bestimmt werden. Der Faktor  $\gamma$  gibt an, wie groß die Wahrscheinlichkeit ist, dass ein Photon, welches die Resonatormode verlässt, von der Sammeloptik eingesammelt wird. Um den  $\gamma$ -Faktor zu berechnen, werden aus der Feldverteilung



**Abbildung 6.13:** (a) Elektrische Feldamplitude der Grundmode in linearer Skala. Für die Bestimmung der Auskoppel-effizienz wird der Betrag des Poynting-Vektors durch die rot-schwarz punktierte Grenzfläche durch den Betrag des Poynting-Vektors der Gesamtoberfläche geteilt. Der Auskoppelkoeffizient der Resonatormode [GKM13] ist in (b) dargestellt, aus welcher sich durch die QP-Resonator-Kopplung nach Gl. (6.16) die in (d) berechnete Auskoppel-effizienz des QPes nach Gl. (6.15) bestimmen lässt. In (c) ist die QP-Auskoppel-effizienz bei einer oberen Spiegelanzahl von 12 über der numerischen Apertur aufgetragen.

in Abb. 6.12 (a) zunächst die Poynting-Vektoren  $\mathbf{S}$  durch die Grenzflächen des Rechengebiets bestimmt, welche den abgestrahlten Leistungsdichten des Resonators entsprechen. Um nun die Wahrscheinlichkeit  $\gamma$  zu berechnen, wird der Anteil der Leistungsdichte, welcher in Vakuum (siehe Abb. 6.13 (a), schwarz-rot punktierte Linie) dissipiert wird, durch die Gesamtdissipation über

$$\gamma = \frac{\mathbf{S}_{\text{Luft}}}{\mathbf{S}_{\text{Luft}} + \mathbf{S}_{\text{GaAs}} + \mathbf{S}_{\text{AlAs}}} \quad (6.17)$$

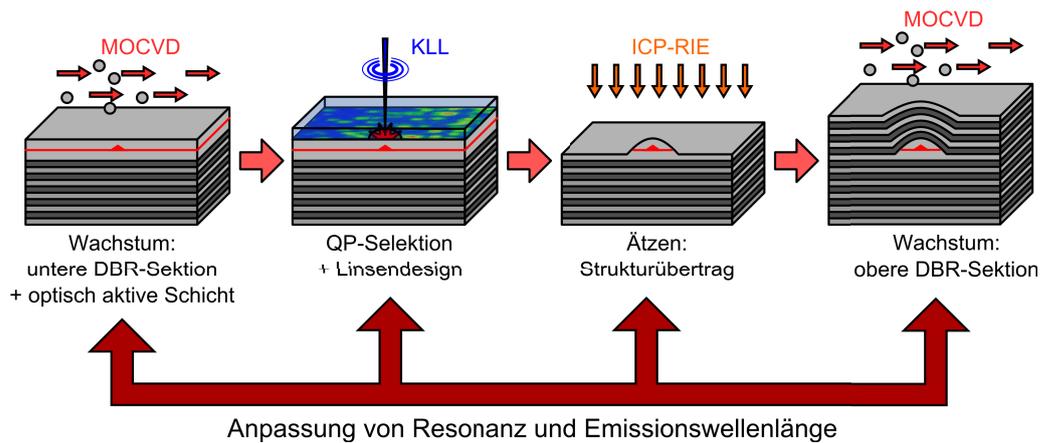
mit den Poynting-Vektoren in den jeweiligen Materialien, berechnet [HCI<sup>+</sup>07]. Daraus ergibt sich in Abhängigkeit von der Linsenbreite und der Anzahl der Spiegel-paare das in Abb. 6.13 (b) dargestellte Verhalten. Der  $\gamma$ -Faktor nimmt dabei mit zunehmender Spiegelanzahl immer weiter ab, da bei einem symmetrischeren Spiegelverhältnis von oberem zu unterem DBR immer mehr Photonen den Resonator in Richtung Substrat verlassen. Die Auskoppel-effizienz kann nun mit Gl. (6.15) berechnet werden und ist in Abb. 6.13 (d) dargestellt. Diese zeigt ein ausgeprägtes Maximum von 81 % bei einer oberen DBR-Sektion mit 12 Spiegel-paaren und einer Defektbreite von 1100 nm, sowie einem Purcell-Faktor von  $F_P = 8,6$  in Resonanz. Da für die Berechnung nach Gl. (6.17) der Anteil der Leistungsdichte in den gesamten in Vakuum befindlichen Raum herangezogen wurde, sind die Auskoppel-effizienzen für  $NA = 1,0$  zu verstehen. Um für beliebige numerische Aperturen die Auskoppel-effizienz zu ermitteln, kann über eine Fernfeldberechnung auf einer Kugelo-

berfläche die winkelabhängige Intensität des propagierenden elektrischen Feldes bestimmt werden. Diese ist auf die Auskoppelleffizienz bei  $NA = 1,0$  normiert in Abb. 6.13 (c) für eine obere Spiegelanzahl von 12 bei variabler Linsenbreite dargestellt. Deutlich zu erkennen ist, dass bereits bei einer  $NA$  von 0,5 fast die maximale Auskoppelleffizienz erreicht wird, was durch die gerichtete Reflexion der DBR-Sektionen (siehe Kap. 6.3.1) hervorgerufen wird und vorteilhaft für z.B. faserbasierte Sammeloptiken ist.

#### 6.4.2 Herstellung von kavitätsintegrierten Mikrolinsen

Die Herstellung erfolgt nach dem in Abb. 6.14 beschriebenen Prozessverlauf, dessen Schritte gezielt aufeinander abgestimmt werden müssen, um die Übereinstimmung zwischen Resonanzwellenlänge der Kavität und Emissionswellenlänge der QPe zu erreichen. Dabei werden durch die Schichtdicken und Brechungsindizes der durch MOCVD abgeschiedenen Materialien die Eigenschaften der planaren Kavität festgelegt. Um eine Resonanzbedingung zu erhalten, muss zunächst das Stoppband der unteren DBR-Sektion mit dem Stoppband der oberen DBR-Sektion übereinstimmen (siehe Abb. 6.15 (a) und (b)). Zusammen mit der Dicke der planaren Kavitätsschicht wird somit die Wellenlänge der planaren Resonanz bestimmt. Diese kann nun durch die Linsenfabrikation entsprechend den Simulationen in Abb. 6.12 verändert werden, wobei die Linsen in Abhängigkeit ihrer Größe eine Verschiebung der Resonanzwellenlänge von bis zu -20 nm, ausgehend von der Resonanzwellenlänge der planaren Struktur, ermöglichen. Die Herausforderung bei dieser Methode besteht jedoch darin, dass die Linsenfabrikation **vor** dem Wachstum des oberen DBRs erfolgt. Dies führt dazu, dass einige Punkte beachtet werden müssen:

- Da obere und untere DBR-Sektion in ihren Reflexionseigenschaften übereinstimmen müssen, zwischen dem Wachstum der beiden Schichten jedoch der KLL-Linsen-Herstellungsprozess durchgeführt wird, muss auf eine sehr präzise Kalibration des MOCVD-Wachstums anhand von Reflexionsmessungen geachtet werden (siehe hierzu Abb. 6.15 (a) und (b)).
- Die Messung der Reflexionsspektren wird der Einfachheit halber bei Raumtemperatur durchgeführt. Wie sich in dieser Arbeit zeigt, muss eine Resonanzwellenlängenverschiebung von -13,8 nm zwischen Raumtemperatur und 15 K berücksichtigt werden (siehe Abb. 6.15 (d)).
- Das Wachstum der oberen DBR-Sektion erfolgt auf einer teilweise geätzten Oberfläche. Während der Prozessierung der Mikrolinsen muss also darauf geachtet werden, dass keine Mikromaskierungen oder raue Oberflächen entstehen.



**Abbildung 6.14:** Schematische Darstellung der kavitätsintegrierten Mikrolinsenherstellung. Nach dem Wachstum der unteren DBR-Sektion kann mittels KLL ein geeigneter, zu integrierender QP ausgesucht und mittels ICP-RIE in eine Linse integriert werden. Anschließend erfolgt das Wachstum der oberen DBR-Sektion. Dabei ist darauf zu achten, dass während des Prozessablaufs die QP-Emissionswellenlänge auf die Resonatorwellenlänge abgestimmt wird.

- Bevor das Wachstum des ersten Spiegelpaares des oberen DBRs, beginnend mit AAs, erfolgen kann, muss zuerst eine Initiationschicht, bestehend aus 20 nm GaAs auf die Kavitätsschicht aufgebracht werden. Die Ergebnisse dieser Arbeit zeigen, dass dadurch die Kavitätsresonanz um +20 nm von der Designwellenlänge  $\lambda$  abweicht (siehe Abb. 6.16 (e)).
- Je nach Größe der integrierten Linse kann die Resonanzwellenlänge zwischen -0 und -20 nm verändert werden (siehe Abb. 6.16 (e)).
- Ausgehend von der zu fertigenden Linsengröße, der angestrebten Dicke der Initiationschicht und dem Layout der gewachsenen Probe müssen die QPe bei der angestrebten Resonanzwellenlänge mit niedriger Dichte gewachsen und mittels KLL selektiert werden.
- Die Kavitätsdicke in den kartierten KLL-Bereichen, in welchen keine Linsen prozessiert wurden, sollte eine Dicke von  $\lambda/4n$  aufweisen. Einerseits wird damit sichergestellt, dass die QPe um die Linsen weggeätzt werden, andererseits bildet eine  $\lambda/4n$ -dicke Kavität im Gegensatz zu einer  $\lambda/2n$ -dicken Kavität keine Resonanz aus. Dies ist vor allem bei der nachfolgenden optischen Charakterisierung der fertigen Strukturen hilfreich.

Die im Folgenden durchgeführten Messungen dienen in erster Linie dazu, das Resonanzverhalten während der Prozessierung zu prüfen und die oben aufgelisteten Effekte und Werte zu ermitteln.

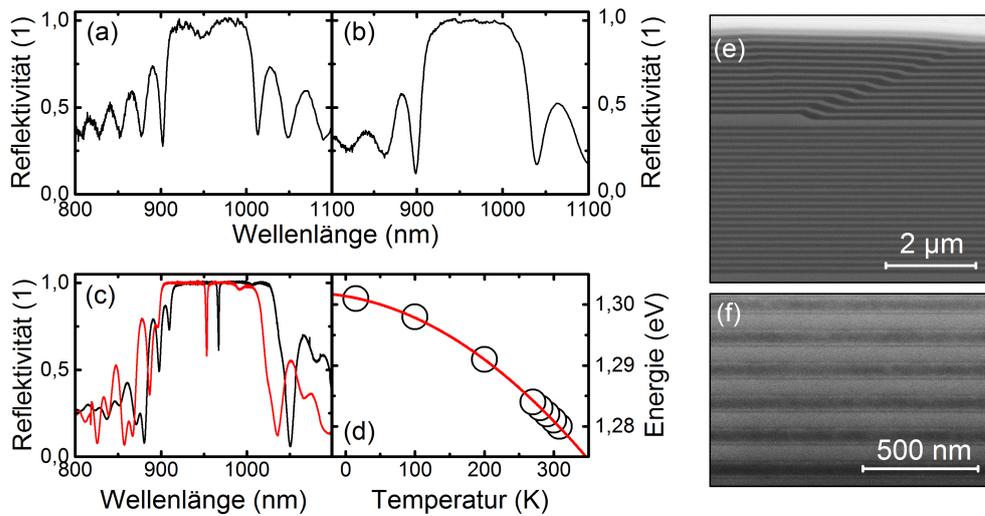
Für die Realisierung der kavitätsintegrierten Mikrolinsen wird abweichend von dem in Kap. 6.4.1 für die Auskoppelleffizienz berechneten Idealfall ein Design mit 23 unteren und 14 oberen Spiegelpaaren gewählt. Hiermit verbunden ist zwar eine etwas geringere theoretisch erreichbare Auskoppelleffizienz von 76 %, allerdings können dadurch auch deutlich höhere Q-Faktoren von 2700 und somit ein stärker ausgeprägter Purcell-Effekt von 15 erreicht werden. Hierzu wurde die in Tab. C.5 beschriebene Probenstruktur verwendet und QPe mit dem Verfahren aus Kap. 6.2.2 mit einer Wellenlänge um 940 nm in Linsen mit einer breiten Variation der Linsengrößen integriert. Die Linsen wurden dabei mit einer Ätztiefe von  $\lambda/2n$  in die Kavitätsschicht geätzt, was bei den folgenden optischen Messungen zu einer erschwerten Bestimmung der Linsenresonanz führt. Das Probenstück wurde nach dem Ätzen der Linsenstrukturen für 5 min in Aceton und Isopropanol, sowie für 30 s in 75 %-iger Salzsäure gereinigt, bevor die Initiationsschicht aus GaAs, zusammen mit der oberen DBR-Sektion (siehe Tab. C.5) aufgewachsen wurde.

### 6.4.3 Spektroskopische Ergebnisse

Die Reflexionsspektren der unteren<sup>1</sup> und oberen<sup>2</sup> DBR-Sektion sind in Abb. 6.15 (a) und (b) dargestellt. Das Stoppband der beiden DBR-Spiegel stimmt sowohl in seiner Breite, als auch in seiner Position überein. Der Einbruch der Reflektivität des unteren DBRs in der Mitte des Stoppbandes ist dem Umstand geschuldet, dass die Struktur mit einer  $\lambda/n$ -dicken GaAs-Schicht abgeschlossen wird, was zusammen mit der Grenzflächenreflexion an der Oberfläche (ca. 30 % zur Luft) zu einer schwachen Resonatorstruktur führt. Die Reflexionsspektren der vollständigen, planaren Kavitätsstruktur sind in Abb. 6.15 (c) bei Raumtemperatur (schwarz) und 15 K (rot) dargestellt. Aus der temperaturabhängigen Veränderung der Brechungsindizes ergibt sich die in Abb. 6.15 (d) dargestellte Dispersion der Resonatormode, welche nach Skauli *et. al* [SKV<sup>+</sup>03] durch einen quadratischen Verlauf genähert wird. Hieraus ergibt sich, dass bei der Wachstumsanpassung der Resonatormode, deren Kalibrierung bei Raumtemperatur erfolgt, eine Verschiebung der Resonanzwellenlänge von  $-13,8$  nm berücksichtigt werden muss, um die Emissionswellenlänge der QPe bei Tieftemperatur „zu treffen“. Von der Resonanzwellenlänge des planaren Resonators ausgehend kann in Zukunft die Zielwellenlänge der kavitätsintegrierten Mikrolinsen über die in Abb. 6.12 (b) dargestellte Wellenlängenverschiebung der Resonanz an die QPe angepasst werden. Die Schwierigkeit besteht allerdings darin, dass das Wachstum des oberen

<sup>1</sup> Das Reflexionsspektrum der unteren DBR-Sektion ist vor der Prozessierung der Mikrolinsen entstanden und stammt von der planaren DBR-Oberfläche mit Kavitätsschicht (siehe NP5643 in Tab. C.5)

<sup>2</sup> Das Reflexionsspektrum der oberen DBR-Sektionen wurde an einer Referenzprobe gemessen, welche neben der zu überwachenden Probe mit im Reaktor lag. (siehe NP5867 in Tab. C.5)



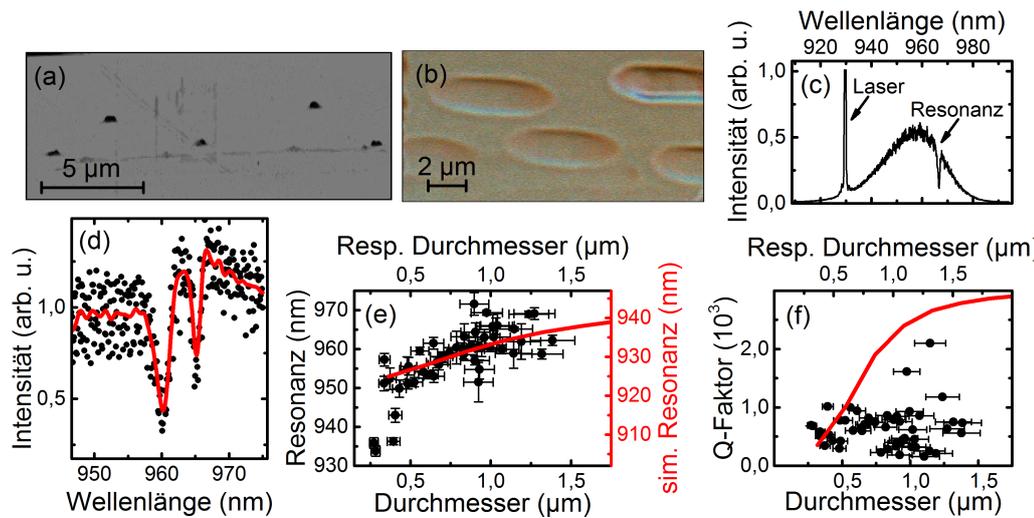
**Abbildung 6.15:** Gemessene Reflektivität des unteren (a) und oberen (b) DBR-Spiegels. (c) Reflektivität der planaren Kavitätsstruktur für eine Temperatur von 15 K (rot) und 300 K (schwarz). Die Verschiebung der Resonanz in Abhängigkeit der Temperatur ist in (d) gezeigt. (e) REM-Aufnahme der Querschnittsfläche der Kavitätsstruktur am Übergang zwischen planarem und kartiertem Bereich. (f) Die Nahaufnahme der oberen DBR-Struktur zeigt eine deutliche Substruktur der Spiegelschicht.

Spiegels erst nach der Linsenprozessierung erfolgt, weswegen hierfür eine reproduzierbare Kalibrierung der Wachstumsanlage essentiell ist.

In Abb. 6.15 (e) ist weiterhin eine SEM-Aufnahme einer Querschnittsfläche gezeigt, welche auf der linken Seite die planare Kavitätsstruktur zeigt und auf der rechten Seite den kartierten und somit geätzten Bereich. Deutlich zu erkennen ist, wie sich die Kante in den oberen DBR-Schichten fortsetzt. Abb. 6.15 (f) zeigt weiterhin eine Nahaufnahme der oberen DBR-Schicht, welche eine deutlich erkennbare Substruktur in dem AlGaAs-Bereich aufweist. Dies stellt möglicherweise die Erklärung für die in Abb. 6.16 (f) gezeigten, reduzierten Q-Faktoren der Linsenstrukturen dar.

Eine REM-Aufnahme der mittels KLL gefertigten Linsenstrukturen ist in Abb. 6.16 (a) dargestellt, welche nach dem Überwachsen mit dem DBR die in der Mikroskopaufnahme in Abb. 6.16 (b) gezeigte, elongierte Oberflächenstruktur aufweist. Deutlich zu erkennen ist die bevorzugte Elongation in  $[-110]$ -Richtung, welche aus einer anisotropen Diffusionsgeschwindigkeit bei der Oberflächenrekonstruktion während des Wachstums resultiert [JKBJ01] und welche auch von Maier *et. al* [MGF<sup>+</sup>14] beobachtet werden konnte.

Um das in Kap. 6.4.1 simulierte Verhalten verifizieren zu können, werden aus den Aufnahmen der noch nicht überwachsenen Linsen die Durchmesser extrahiert und mit den Q-Faktoren und Resonanzwellenlängen der fertigen Strukturen bei Raumtemperatur verglichen. Um diese Daten ermitteln zu können, muss auf einen Laser als Anregungsquelle



**Abbildung 6.16:** (a) REM-Aufnahme der gefertigten Linsen, sowie ein Mikroskopbild (b) der überwachsenen Strukturen. Aus der Reflexion des Laserlichts lässt sich die Kavitätsresonanz im planaren Fall (c) und im Fall der integrierten Linsen (d, schwarze Punkte) bei Raumtemperatur bestimmen. Die rote Kurve in (d) stellt eine Glättung der Messpunkte dar, aus welcher ersichtlich wird, dass sich in der Linse auch eine Resonanzmode höherer Ordnung ausgebildet hat. (e und f) Vergleich der experimentell bestimmten (schwarze Punkte) und in Kap. 6.3.1 simulierten (rote Linie) Resonanzwellenlängen und Q-Faktoren.

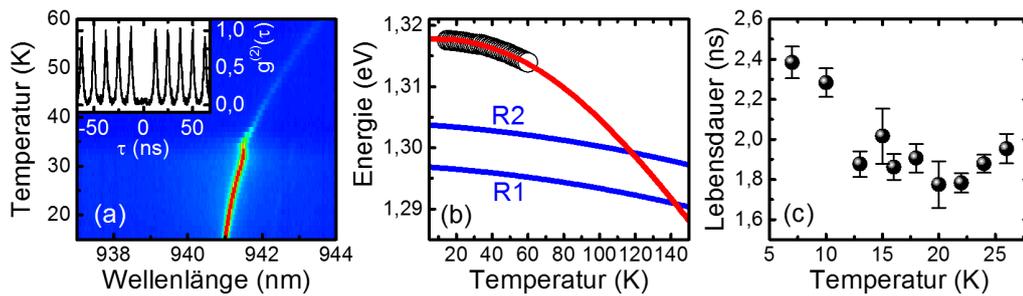
zurückgegriffen werden, da hierbei ein Fokus in der Größe der Linsenstrukturen erreicht werden kann, welcher mit einer Weißlichtquelle nicht erreichbar ist. Regt man die planare Kavitätsstruktur mit einem Laser der Wellenlänge von 930 nm an, ergibt sich das in Abb. 6.16 (c) dargestellte, rückgestreute Intensitätsverhalten. Dabei wird vermutlich in den oberen Spiegelschichten durch Absorptions-, Relaxations- und Emissionsprozesse an Defekten und Grenzflächenzuständen (siehe auch die Substruktur in Abb. 6.15 (f)) Licht mit geringerer Energie als die des Lasers erzeugt, welches mit dem Resonator wechselwirken kann, wodurch die Kavität ohne aufwändiges Lasertuning abgetastet werden kann. Aus der Charakterisierung der planaren Struktur lässt sich nun die Resonanzwellenlänge zu  $\lambda_{2D} = 967,1 \text{ nm}$  und  $Q_{2D} = 1,94 \cdot 10^3$  ermitteln. Bei der Vermessung der kavitätsintegrierten Linsen (dargestellt in Abb. 6.16 (d, schwarze Punkte)) kann festgestellt werden, dass sich neben der Grundmode auch eine angeregte optische Mode des Resonators bei einer um -5 nm verschobenen Wellenlänge ausgebildet hat. Den numerischen Simulationen entsprechend (nicht gezeigt) besitzt die quadrierte elektrische Feldverteilung der höher angeregten optischen Mode einen zusätzlichen Knoten in radialer Richtung. Zum Vergleich mit den theoretischen Simulationen aus Kap. 6.4.1 wird für die Resonanzwellenlänge (e), sowie den Q-Faktor (f) nur die Resonanz der Grundmode analysiert und mit den simulierten Werten (rote Linie) verglichen. Dabei muss darauf geachtet werden, dass die Durchmesser

der gefertigten, vorwiegend zylinderförmigen Linsen mit den entsprechenden simulierten, gaußförmigen Linsenbreiten verglichen werden. Zum Zweck des Vergleichs wird jeweils derjenige Durchmesser verwendet, bei welchem die Kavität in  $z$ -Richtung um  $\lambda/8$  reduziert wird und sich somit das optische Feld an dieser Stelle in  $z$ -Richtung am Übergang zur destruktiven Interferenz befindet. Es ist deutlich zu erkennen, dass abgesehen von einem Versatz, der durch das abweichende Spiegellayout verursacht wird, der generelle Trend der Resonanzwellenlänge in Abhängigkeit der Linsengröße durch das Experiment bestätigt wird. Die Q-Faktoren, welche experimentell unter den zu erwartenden Werten liegen, weisen jedoch darauf hin, dass zusätzliche Verluste durch Streuung an Rauigkeiten an der Linsengrenzfläche und den DBR-Spiegeln auftreten und somit die optische Qualität des Bauteils limitieren.

Um zu demonstrieren, dass cQED-Effekte vorliegen wurden unabhängig von der Defektgröße die in Abb. 6.17 dargestellten, temperaturabhängigen optischen Messungen an der in Abb. 6.16 (d) vermessenen, kavitätsintegrierten Linse durchgeführt. Die Temperatur dient dazu, die Verstimmung zwischen Resonator und QP zu reduzieren und ihr Einfluss soll hier exemplarisch aufgezeigt werden. In Abb. 6.17 (a) ist hierzu eine Temperaturserie einer QP-Linie gezeigt, deren Dispersion in (b, schwarze Kreise) dargestellt ist. Die an dieser Emissionslinie unter gepulster optischer Anregung gemessene Autokorrelation zeigt  $g^{(2)}(0) = 0,15$  und ist somit eindeutig einem Einzelphotonenemitter zuzuordnen. Die Temperaturdispersion der QP-Linie weist nach dem Modell nach Pässler [Päs01] für die Temperaturabhängigkeit einer Bandlücke die Form

$$E_g(T) = E(0) - \alpha \sum_{i=1}^2 \frac{W_i \theta_i}{\exp(\theta_i/T) - 1} \quad (6.18)$$

auf, wobei  $\alpha$  die Steigung der linearen Temperaturabhängigkeit für hohe Temperaturen,  $W_i$  Gewichtungsfaktoren und  $\theta_i$  zwei diskrete Phonontemperaturen sind, welche das Zwei-Oszillator-Modell beschreiben.  $E(0)$  gibt normalerweise die Bandlückenenergie am Temperaturnullpunkt an und muss hier um die Confinement-Energie korrigiert werden. Die in Abb. 6.17 (b) dargestellte rote Linie entspricht dem Bandlückenverlauf von GaAs (verschoben um die Confinement-Energie), welches als umgebendes Matrixmaterial maßgeblich die Temperaturabhängigkeit des QPs bestimmt. Die schwächere Dispersion der kavitätsintegrierten Linsenresonanz kann über das in Abb. 6.15 (d) genäherte, quadratische Verhalten der planaren Resonanz extrapoliert werden. Dabei sind in Abb. 6.17 (b) in blau die durch das optische Confinement der kavitätsintegrierten Mikrolinse (siehe Abb. 6.16 (d)) verschobenen Resonatordispersionen der Grundmode R1 und der ersten angeregten Mode R2 aufgetragen. Aufgrund der starken anfänglichen spektralen Verstimmung zwischen



**Abbildung 6.17:** (a) Temperaturabhängige Lumineszenz einer kavitätsintegrierten Mikrolinse (lineare Farbskala). Darin eingebettet ist die an dieser Linie gemessene Autokorrelation mit  $g^{(2)}(0) = 0,15$ . (b) Anhand der Dispersion kann die Lumineszenz der schmalen Linie einer Bandlücke und somit einem QP zugeordnet werden. Die rote Linie entspricht einer Anpassung nach Gl. (6.18). Die quadratische Extrapolation der in Abb. 6.16 (d) vermessenen Linsenresonanz (blaue Linie) zeigt, dass erst bei einer Temperatur von 142 K (118 K) der QP in Resonanz mit der Resonatorgrundmode R1 (ersten angeregten Mode R2) ist. (c) Die temperaturabhängige Lebensdauer des QP-Zustands, welcher Purcell-Unterdrückung zeigt.

QP und Resonanz findet eine Übereinstimmung jedoch erst bei Temperaturen um 142 K (118 K) für die Grundmode (angeregte Mode) statt, bei welcher die QP-Lumineszenz durch die thermische Aktivierung der Ladungsträger jedoch vollständig einbricht. Eine Purcell-Erhöhung, wie sie für Quantenbauelemente wünschenswert ist, kann somit erst stattfinden, wenn QP und Kavität sich bei niedrigen Temperaturen in spektraler Resonanz befinden. Um dennoch Kavitätseffekte nachweisen zu können, ist die in Abb. 6.17 (d) dargestellte Lebensdauer des QP-Zustands in Abhängigkeit der Temperatur aufgenommen worden. Da die Lebensdauer von QP-Zuständen im InAs/GaAs-Materialsystem ohne Kavitätseffekte bei etwa 1 ns liegt (siehe Kap. 5.4), bei den kavitätsintegrierten Linsen jedoch Werte um 2 ns gemessen werden, kann von einer Unterdrückung der QP-Emission durch die reduzierte optische Modendichte, verursacht durch die Kavität, ausgegangen werden [BRW<sup>+</sup>01]. Die Integration eines QPes in eine Kavität und der Nachweis von cQED-Effekten ist also gelungen.

## 6.5 Zusammenfassung des Kapitels

In diesem Kapitel wurden Strategien zur Erhöhung der Auskoppelleffizienz, basierend auf positionierten Mikrolinsen sowohl analytisch und numerisch berechnet, als auch experimentell demonstriert. Beginnend bei der monolithisch in das Substrat integrierten Mikrolinse wird zunächst das Herstellungsverfahren, basierend auf 3D-EBL, welches vollständig in den KLL-Prozess integrierbar ist, erläutert, und eine mittlere Auskoppelleffizienz von  $\eta_L = (5,6 \pm 3,2) \%$  nachgewiesen. Diese Strukturen bieten zudem den großen Vorteil einer

breitbandigen Lichtauskopplung, wodurch anhand einer Kreuzkorrelation zwischen  $XX$  und  $X$ , sowie dem  $X$  und  $X^-$ , nachgewiesen werden konnte, dass alle Emissionslinien einer Linse von ein und demselben QP stammen. Die gute quantenoptische Qualität der Emission ist zudem mit  $g^{(2)}(0) < 0,01$  und  $V_{\text{HOM}}^{\text{cw}}(0) = (52 \pm 18) \%$  unter nicht-resonanter Anregung demonstriert worden.

In einem weiterführenden Ansatz wird die Lichtauskopplung der Linse durch einen zusätzlichen Bragg-Spiegel unterhalb des QPs unterstützt, für dessen Optimierung numerische FEM-Simulationen durchgeführt wurden. Bei dieser Linsen-Reflektor-Struktur konnten experimentell eine Auskoppel-effizienz von  $\eta_{\text{Linse-DBR}} = (23,3 \pm 3,0) \%$ , ein anregungsleistungsunabhängiges  $g^{(2)}(0) < 0,01$ , sowie eine Visibilität von  $V_{\text{HOM}}^{2\text{ns}} = (80 \pm 7) \%$  unter gepulster quasi-resonanter Anregung nachgewiesen werden.

Den Abschluss des Kapitels bilden kavitätsintegrierte Mikrolinsen, deren Resonatoreigenschaften durch FEM-Simulationen numerisch berechnet und durch die Form und Größe der integrierten Linse spektral an die QP-Emissionswellenlänge angepasst wurden. Anhand der mittels KLL gefertigten Resonatorstrukturen konnte das Resonatorverhalten experimentell in Abhängigkeit der Linsengröße verifiziert und erste Kavitäts-effekte bei einer großen spektralen Verstimmung zwischen QP und Resonator nachgewiesen werden.

## 7 Zusammenfassung und Ausblick

Der Einsatz von Quantenpunkten (QPen) als Emitter in zukünftigen Anwendungen im Bereich der Quantenkommunikation und der Quanteninformation erfordert die Entwicklung von deterministischen Technologien, welche eine Integration von QPen mit definierten optischen Eigenschaften in nanophotonische Bauelemente ermöglichen. In dieser Arbeit wurde ein in-situ Kathodolumineszenzlithographie (KLL) Verfahren entwickelt und validiert, welches die hohe räumliche Auflösung der Kathodolumineszenz (KL) Spektroskopie mit den Strukturierungsmöglichkeiten der Elektronenstrahlolithographie (EBL) verbindet. Dabei wird eine, mit einem elektronenstrahlsensitiven Lack beschichtete QP-Probe auf eine Temperatur von 5 K gebracht und die QP-Lumineszenz mit Hilfe von KL Spektroskopie kartiert. Die niedrige Temperatur ist dabei erforderlich, um die optischen Eigenschaften der QPe hervortreten zu lassen. Durch die Kartierung der Probe können geeignete QPe selektiert und nanophotonische Strukturen, welche an den QPen ausgerichtet sind, mittels EBL strukturiert werden. Dieser Schritt wird ebenfalls bei kryogenen Temperaturen durchgeführt, um eine hohe Positionierungsgenauigkeit zu erreichen. Neben der Strukturierung bei 5 K besteht eine weitere Herausforderung darin, dass während der Kartierung eine hohe Dosis in den Lack eingebracht wird, bei welcher gängige Elektronenstrahlacke bereits überbelichten. Der Fokus der Arbeit lag daher in der Entwicklung einer tieftemperaturfähigen EBL-Technologie für hohe Dosen, der Demonstration der KLL und der Bestimmung ihrer Genauigkeit. Zusätzlich werden, um die Auskoppelleffizienz der Emission aus dem Halbleiter zu erhöhen, Linsenstrukturen in Kombination mit Bragg-Reflektoren und kavitätsintegrierte Mikrolinsen durch das KLL-Verfahren hergestellt. Dieser Herstellungsprozess wird dabei durch analytische und numerische Berechnungen zur Bestimmung des optimalen Linsenlayouts begleitet.

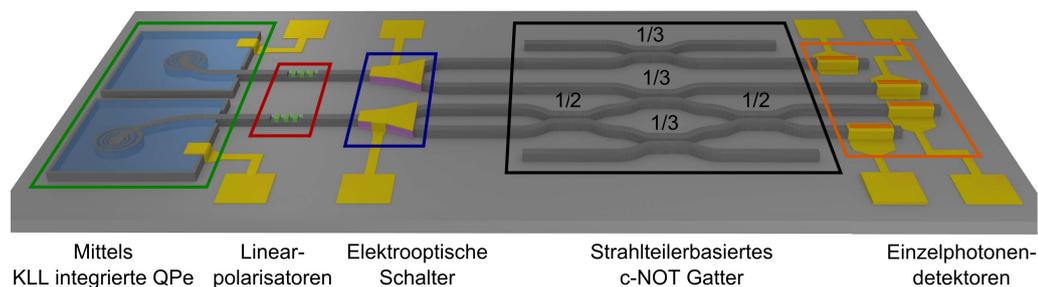
Kernpunkt für die Realisierung des Lithographieverfahrens, welches bei tiefen Temperaturen durchgeführt wird, war die Identifizierung eines geeigneten Lacks, welcher eine für die KLL ausreichend hohe Schwellendosis aufweist und hohe Auflösungen erzielt. Neben Hydrogensilsesquioxan (HSQ) und einem kresolbasierten Lack (AZ-2070), wurde vor allem Polymethylmethacrylat (PMMA) detailliert untersucht. PMMA zeigte dabei die geforderten Eigenschaften einer Schwellendosis um  $10 \text{ mC/cm}^2$  im negativ-Bereich, welche die Schwellendosen der anderen Lacke um mehr als eine Größenordnung übersteigt.

Neben einer erreichten Strukturgröße von 50 nm konnten zudem tiefgehende Einblicke in den temperaturabhängigen Belichtungs- und Invertierungsmechanismus von PMMA gewonnen werden, welche zu einem grundlegenden Verständnis der Kettenspaltung und der Karbonisierung von PMMA beitragen.

Mit Hilfe von PMMA konnte der angestrebte in-situ KLL-Prozess realisiert werden und die Integration von QPen in sub- $\mu\text{m}$  große Mesenstrukturen wurde gezeigt. Diese wurden mittels KL- und Mikrophotolumineszenz ( $\mu\text{-PL}$ ) Spektroskopie untersucht, welche gezeigt haben, dass nur ein einziger QP in den Mesen optisch aktiv ist und keine Degradation der Emissionseigenschaften durch die Mesenintegration stattgefunden hat. Um die Genauigkeit des Fabrikationsprozesses zu evaluieren, wurden mehrere mögliche Fehlerquellen untersucht und eine Positionierungsgenauigkeit von  $\sigma_{\text{KLL}} = 34$  nm ermittelt. Die prozessbedingte spektrale Verschiebung der QP-Emission konnte aus einem statistischen Vergleich vor und nach der Strukturierung zu  $\sigma = 0,32$  nm um die Zielwellenlänge bestimmt werden, welche jedoch im Bereich der Temperaturverstimbarkeit der QPe liegt und somit kompensierbar ist.

Der hier entwickelte Prozess wurde weiterhin um eine 3D-fähige EBL ergänzt, um Gaußförmige Linsenstrukturen mit einzelnen integrierten QPen herzustellen. Begleitend zur Herstellung wurden Simulationen, basierend auf der Methode der finiten Elemente durchgeführt, um die Lichtauskopplung der Strukturen zu maximieren. Hierdurch konnte experimentell (bei einer  $\text{NA} = 0,8$ ) eine Erhöhung der Auskoppelleffizienz von  $\eta_{\text{P}} = 1,22$  % auf  $\eta_{\text{L}} = (5,6 \pm 3,2)$  % erreicht werden. Für eine weitere Erhöhung sorgt ein weiterentwickeltes, ebenfalls numerisch evaluiertes Linsenlayout mit rückseitigem Bragg-Reflektor. Für dieses konnte eine Auskoppelleffizienz ( $\text{NA} = 0,4$ ) von  $\eta_{\text{QD}} = (23,3 \pm 3,0)$  %, sowie ein leistungsunabhängigen  $g^{(2)}(0) < 0,01$  nachgewiesen werden. Unter quasisresonanter Anregung zeigte sich zudem eine Visibilität von  $V_{\text{HOM}}^{2\text{ns}} = (80 \pm 7)$  %, was die gute optische Qualität der Strukturen unterstreicht. Den Abschluss der Arbeit bildet die numerische Berechnung und Herstellung einer Resonatorstruktur, welche aus einer Linse besteht die von zwei Bragg-Reflektoren umschlossen ist. Hier ist das Verhalten der Resonanz in Abhängigkeit der Linsengeometrie verifiziert und eine Wechselwirkung zwischen QP und Resonator im Sinne der Kavitätsquantenelektrodynamik nachgewiesen worden.

Die in dieser Arbeit durchgeführten Experimente haben also gezeigt, dass es durch KLL möglich ist, QPe mit einer hohen Genauigkeit in quantenoptische Bauelemente zur Erhöhung der Auskoppelleffizienz zu integrieren und die ausgezeichnete quantenoptische Qualität dabei keine Degradation erfährt.



**Abbildung 7.1:** Schematische Darstellung eines vollkommen elektrisch betriebenen C-NOT Gatters. Durch standardisierte Verfahren können das auf Wellenleitern basierende C-NOT Gatter, sowie diverse elektrooptische, in den Wellenleiter integrierte Bauelemente (Linearpolarisator, elektrooptische Schalter und Einzelphotonendetektoren) gefertigt werden. Als Quelle von ununterscheidbaren Photonen dienen QPe, welche mittels KLL ausgewählt und an die Wellenleiterstruktur angeschlossen werden.

### Ausblick

Die in dieser Arbeit erlangten Erkenntnisse sind ein wichtiger Bestandteil bei der Entwicklung von deterministischen quantenoptischen Bauelementen, wie sie z.B. für die Realisierung eines Quanten c-NOT Gatters [RLBW02] als elementarer Baustein eines Quantencomputers, erforderlich sind. Die Hauptaufgabe besteht in der vollständigen elektrischen Implementierung aller beteiligten Komponenten, beginnend bei der Erzeugung von einzelnen, ununterscheidbaren Photonen, der Manipulation der Quantenzustände, der eigentlichen Realisierung des Gatters bis hin zum elektrischen Auslesen des Zustands. Ein mögliches Konzept hierzu, basierend auf Wellenleitertechnologie, ist in Abb. 7.1 schematisch dargestellt. Das Gatter selbst und alle benötigten Wellenleiter können zwar mit gängigen Strukturierungstechnologien, wie z.B. Imprint-, UV- oder Elektronenstrahlolithographie, hergestellt werden, die größte Herausforderung besteht jedoch in der elektrischen Erzeugung von einzelnen, ununterscheidbaren Photonen (grüner Bereich). Dies kann jedoch mit QPen realisiert werden, welche in ausgewählten Bereichen durch die in dieser Arbeit vorgestellten KLL-Technologie selektiert und in die Wellenleiterstrukturen integriert werden. Die elektrische Kontaktierung kann dann durch eine Planarisierung mit Benzocyclobuten und einem flächigen oberen Kontakt erfolgen [HSL<sup>+</sup>10a]. Dieser Kontakt kann neben der elektrisch gepulsten Anregung der QPe auch zu ihrer Feinverstimmung mit Hilfe des *quantum confined Stark effect* genutzt werden. Die eingekoppelten Photonen können nun mit Hilfe von in den Wellenleiter integrierten Polarisatoren (roter Bereich in Abb. 7.1) [WSY<sup>+</sup>99] und elektrooptischen Schaltern (blauer Bereich) [CBSL75] den Eingangszustand des strahlteilerbasierten c-NOT Gatters (schwarzer Bereich) [PEP<sup>+</sup>12] erzeugen. Um den Ausgangszustand des Gatters auslesen zu können stehen supraleitende

Nanodraht-Einzelphotonendetektoren (oranger Bereich) [NMH<sup>+</sup>15] zur Verfügung, welche höchste Effizienzen aufweisen. Die durch dieses Bauteil gebildete c-NOT Operation kann nun auf mehrere Gatter ausgeweitet werden, wodurch komplexere Operationen durchgeführt werden können.

# Literaturverzeichnis

- [ALP<sup>+</sup>06] AKOPIAN, N., N. H. LINDNER, E. POEM, Y. BERLATZKY, J. AVRON, D. GERSHONI, B. D. GERARDOT und P. M. PETROFF: *Entangled Photon Pairs from Semiconductor Quantum Dots*. Physical Review Letters, 96(13):130501, 2006.
- [AMK<sup>+</sup>09] ABBARCHI, M., C. MASTRANDREA, T. KURODA, T. MANO, A. VINATTIERI, K. SAKODA und M. GURIOLI: *Poissonian statistics of excitonic complexes in quantum dots*. Journal of Applied Physics, 106(5):053504, 2009.
- [APG99] ANDREANI, L. C., G. PANZARINI und J.-M. GÉRARD: *Strong-coupling regime for quantum boxes in pillar microcavities: Theory*. Phys. Rev. B, 60(19):13276, 1999.
- [Ash96] ASHOORI, R. C.: *Electrons in artificial atoms*. Nature, 379(6564):413, 1996.
- [ASS<sup>+</sup>10] ALBERT, F., S. STOBBE, C. SCHNEIDER, T. HEINDEL, S. REITZENSTEIN, S. HÖFLING, P. LODAHL, L. WORSCHER und A. FORCHEL: *Quantum efficiency and oscillator strength of site-controlled InAs quantum dots*. Appl. Phys. Lett., 96(15):151102, 2010.
- [ATM<sup>+</sup>08] ABBARCHI, M., F. TROIANI, C. MASTRANDREA, G. GOLDONI, T. KURODA, T. MANO, K. SAKODA, N. KOGUCHI, S. SANGUINETTI, A. VINATTIERI und ET AL.: *Spectral diffusion and line broadening in single self-assembled GaAs/AlGaAs quantum dot photoluminescence*. Appl. Phys. Lett., 93(16):162101, 2008.
- [AAU<sup>+</sup>09] ATEs, S., S. M. ULRICH, A. ULHAQ, S. REITZENSTEIN, A. LÖFFLER, S. HÖFLING, A. FORCHEL und P. MICHLER: *Non-resonant dot-cavity coupling and its potential for resonant single-quantum-dot spectroscopy*. Nature Photon, 3(12):724, 2009.

- [BB84] BENNETT, C. H. und G. BRASSARD: *Quantum Cryptography: Public key distribution and coin tossing*. Proceedings of IEEE International Conference on Computers, Systems and Signal Processing, Bangalore, India, 1:175, 1984.
- [BBG<sup>+</sup>02] BARNES, W.L., G. BJÖRK, J.M. GÉRARD, P. JONSSON, J.A.E. WASEY, P.T. WORTHING und V. ZWILLER: *Solid-state single photon sources: light collection strategies*. The European Physical Journal D - Atomic, Molecular and Optical Physics, 18(2):197, 2002.
- [BDCZ98] BRIEGEL, H.-J., W. DÜR, J. CIRAC und P. ZOLLER: *Quantum Repeaters: The Role of Imperfect Local Operations in Quantum Communication*. Physical Review Letters, 81(26):5932, 1998.
- [Ber94] BERENGER, J.-P.: *A perfectly matched layer for the absorption of electromagnetic waves*. Journal of Computational Physics, 114(2):185, 1994.
- [BF02] BAYER, M. und A. FORCHEL: *Temperature dependence of the exciton homogeneous linewidth in In<sub>0.60</sub>Ga<sub>0.40</sub>As self-assembled quantum dots*. Phys. Rev. B, 65(4):041308(R), 2002.
- [BGF<sup>+</sup>98] BAYER, M., T. GUTBROD, A. FORCHEL, V. D. KULAKOVSKII, A. GORBUNOV, M. MICHEL, R. STEFFEN und K. H. WANG: *Exciton complexes in In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As/GaAs quantum dots*. Phys. Rev. B, 58(8):4740, 1998.
- [BGL99] BIMBERG, D., M. GRUNDMANN und N. N. LEDENTSOV: *Quantum Dot Heterostructures*. John Wiley & Sons, Ltd, 1999.
- [Bim06] BIMBERG, D.: *Der Zoo der Quantenpunkte*. Physik Journal, 5(8):43, 2006.
- [BKF<sup>+</sup>99] BAYER, M., A. KUTHER, A. FORCHEL, A. GORBUNOV, V. B. TIMOFEEV, F. SCHÄFER, J. P. REITHMAIER, T. L. REINECKE und S. N. WALCK: *Electron and Hole g Factors and Exchange Interaction from Studies of the Exciton Fine Structure in In<sub>0.60</sub>Ga<sub>0.40</sub>As Quantum Dots*. Physical Review Letters, 82(8):1748, 1999.
- [BKF<sup>+</sup>14] BABINEC, T. M., Y. A. KELAITA, K. A. FISCHER, K. G. LAGOUDAKIS, T. SARMIENTO, A. RUNDQUIST, A. MAJUMDAR und J. VUCKOVIC: *A Light-Matter Interface based on a Single InAs/GaAs Quantum Dot in a Nanometallic Cavity*. arXiv:1406.7050, 06 2014.

- [BOS<sup>+</sup>02] BAYER, M., G. ORTNER, O. STERN, A. KUTHER, A. A. GORBUNOV, A. FORCHEL, P. HAWRYLAK, S. FAFARD, K. HINZER, T. L. REINECKE und ET AL.: *Fine structure of neutral and charged excitons in self-assembled In(Ga)As/(Al)GaAs quantum dots*. Phys. Rev. B, 65(19):195315, 2002.
- [BRPA03] BYLANDER, J., I. ROBERT-PHILIP und I. ABRAM: *Interference and correlation of two independent photons*. The European Physical Journal D, 22(2):295, 2003.
- [BRV12] BUCKLEY, S., K. RIVOIRE und J. VUCKOVIC: *Engineered quantum dot single-photon sources*. Reports on Progress in Physics, 75(12):126503, 2012.
- [BRW<sup>+</sup>01] BAYER, M., T. L. REINECKE, F. WEIDNER, A. LARIONOV, A. McDONALD und A. FORCHEL: *Inhibition and Enhancement of the Spontaneous Emission of Quantum Dots in Structured Microresonators*. Physical Review Letters, 86(14):3168, 2001.
- [BSPY00] BENSON, O., C. SANTORI, M. PELTON und Y. YAMAMOTO: *Regulated and Entangled Photons from a Single Quantum Dot*. Physical Review Letters, 84(11):2513, 2000.
- [BT56] BROWN, R. H. und R. Q. TWISS: *Correlation between Photons in two Coherent Beams of Light*. Nature, 177(4497):27, 1956.
- [CBM<sup>+</sup>10] CLAUDON, J., J. BLEUSE, N. S. MALIK, M. BAZIN, P. JAFFRENNOU, N. GREGERSEN, C. SAUVAN, P. LALANNE und J.-M. GÉRARD: *A highly efficient single-photon source based on a quantum dot in a photonic nanowire*. Nature Photon, 3(2):116, 2010.
- [CBSL75] CAMPBELL, J. C., F. A. BLUM, D. W. SHAW und K. L. LAWLEY: *GaAs electro-optic directional-coupler switch*. Appl. Phys. Lett., 27(4):202, 1975.
- [Cho88] CHOI, J. O.: *Degradation of poly(methylmethacrylate) by deep ultraviolet, x-ray, electron beam, and proton beam irradiations*. J. Vac. Sci. Technol. B, 6(6):2286, 1988.
- [Chr91] CHRISTEN, J.: *Scanning cathodoluminescence microscopy: A unique approach to atomic-scale characterization of heterointerfaces and imaging of semiconductor inhomogeneities*. J. Vac. Sci. Technol. B, 9(4):2358, 1991.

- [CLB07] CORD, B., J. LUTKENHAUS und K. K. BERGGREN: *Optimal temperature for development of poly(methylmethacrylate)*. J. Vac. Sci. Technol. B, 25(6):2013, 2007.
- [CMRJ90] CZYŻEWSKI, Z., D. MACCALLUM, A. ROMIG und D. C. JOY: *Calculations of Mott scattering cross section*. Journal of Applied Physics, 68(7):3066, 1990.
- [Cor07] CORPORATE TRUST: *Studie: Industriespionage*. www.corporate-trust.de - Stand: 24.04.2015, 2007.
- [Cor12] CORPORATE TRUST: *Studie: Industriespionage 2012*. www.corporate-trust.de - Stand: 24.04.2015, 2012.
- [Cor14] CORPORATE TRUST: *Studie: Industriespionage 2014*. www.corporate-trust.de - Stand: 24.04.2015, 2014.
- [DCJ<sup>+</sup>07] DROUIN, D., A. R. COUTURE, X. JOLY, D. AND TASTET, V. AIMEZ und R. GAUVIN: *CASINO V2.42- A Fast and Easy-to-use Modeling Tool for Scanning Electron Microscopy and Microanalysis Users*. Scanning, 29(3):92, 2007.
- [DD10] DONATINI, F. und L. S. DANG: *A single-step electron beam lithography of buried nanostructures using cathodoluminescence imaging and low temperature*. Nanotechnology, 21(37):375303, 2010.
- [DGM<sup>+</sup>13] DE GREVE, K., P. L. MCMAHON, L. YU, J. S. PELC, C. JONES, C. M. NATARAJAN, N. Y. KIM, E. ABE, S. MAIER, C. SCHNEIDER und ET AL.: *Complete tomography of a high-fidelity solid-state entangled spin-photon qubit pair*. Nature Communications, 4(2228), 2013.
- [DHG97] DROUIN, D., P. HOVINGTON und R. GAUVIN: *CASINO: A new monte carlo code in C language for electron beam interactions-part II: Tabulated values of the mott cross section*. Scanning, 19(1):20, 1997.
- [Dix85] DIX, C.: *0.1 μ scale lithography using a conventional electron beam system*. J. Vac. Sci. Technol. B, 3(1):131, 1985.
- [DLCZ01] DUAN, L.-M., M. D. LUKIN, J. I. CIRAC und P. ZOLLER: *Long-distance quantum communication with atomic ensembles and linear optics*. Nature, 414(6862):413, 2001.

- [DLS<sup>+</sup>08] DOUSSE, A., L. LANCO, J. SUFFCZYŃSKI, E. SEMENOVA, A. MIARD, A. LEMAÎTRE, I. SAGNES, C. ROBLIN, J. BLOCH und P. SENELLART: *Controlled Light-Matter Coupling for a Single Quantum Dot Embedded in a Pillar Microcavity Using Far-Field Optical Lithography*. Physical Review Letters, 101(26):267404, 2008.
- [DMP<sup>+</sup>09] DUPUY, E., D. MORRIS, N. PAUC, V. AIMEZ, M. GENDRY und D. DROUIN: *Carrier transport properties in the vicinity of single self-assembled quantum dots determined by low-voltage cathodoluminescence imaging*. Appl. Phys. Lett., 94(2):022113, 2009.
- [DRS<sup>+</sup>11] DAVANÇO, M., M. T. RAKHER, D. SCHUH, A. BADOLATO und K. SRINIVASAN: *A circular dielectric grating for vertical extraction of single quantum dot emission*. Appl. Phys. Lett., 99(4):041102, 2011.
- [DSM<sup>+</sup>13] DING, F., T. STÖFERLE, L. MAI, A. KNOLL und R. F. MAHRT: *Vertical microcavities with high Q and strong lateral mode confinement*. Phys. Rev. B, 87(16):161116(R), 2013.
- [DWY<sup>+</sup>10] DUAN, H., D. WINSTON, J. K. W. YANG, B. M. CORD, V. R. MANFRINATO und K. K. BERGGREN: *Sub-10-nm half-pitch electron-beam lithography by using poly(methyl methacrylate) as a negative resist*. Journal of Vacuum Science & Technology B, 28(6):C6C58, 2010.
- [DXHX08] DUAN, H., E. XIE, L. HAN und Z. XU: *Turning PMMA Nanofibers into Graphene Nanoribbons by In Situ Electron Beam Irradiation*. Advanced Materials, 20(17):3284, 2008.
- [DZZ<sup>+</sup>09] DUAN, H., J. ZHAO, Y. ZHANG, E. XIE und L. HAN: *Preparing patterned carbonaceous nanostructures directly by overexposure of PMMA using electron-beam lithography*. Nanotechnology, 20(13):135306, 2009.
- [Eve71] EVERHART, T. E.: *Determination of Kilovolt Electron Energy Dissipation vs Penetration Distance in Solid Materials*. Journal of Applied Physics, 42(13):5837, 1971.
- [FBB<sup>+</sup>01] FINDEIS, F., M. BAIER, E. BEHAM, A. ZRENNER und G. ABSTREITER: *Photocurrent and photoluminescence of a single self-assembled quantum dot in electric fields*. Appl. Phys. Lett., 78(19):2958, 2001.

- [FIM<sup>+</sup>00] FRY, P. W., I. E. ITSKEVICH, D. J. MOWBRAY, M. S. SKOLNICK, J. J. FINLEY, J. A. BARKER, E. P. O'REILLY, L. R. WILSON, I. A. LARKIN, P. A. MAKSYM und ET AL.: *Inverted Electron-Hole Alignment in InAs-GaAs Self-Assembled Quantum Dots*. Physical Review Letters, 84(4):733, 2000.
- [FIP<sup>+</sup>00] FRY, P. W., I. E. ITSKEVICH, S. R. PARNELL, J. J. FINLEY, L. R. WILSON, K. L. SCHUMACHER, D. J. MOWBRAY, M. S. SKOLNICK, M. AL-KHAFAJI, A. G. CULLIS und ET AL.: *Photocurrent spectroscopy of InAs/GaAs self-assembled quantum dots*. Phys. Rev. B, 62(24):16784, 2000.
- [FSH<sup>+</sup>09] FRIEDLER, I., C. SAUVAN, J. P. HUGONIN, P. LALANNE, J. CLAUDON und J. M. GÉRARD: *Solid-state single photon sources: the nanowire antenna*. Optics Express, 17(4):2095, 2009.
- [FSV<sup>+</sup>04] FINLEY, J. J., M. SABATHIL, P. VOGL, G. ABSTREITER, R. OULTON, A. I. TARTAKOVSKII, D. J. MOWBRAY, M. S. SKOLNICK, S. L. LIEW, A. G. CULLIS und ET AL.: *Quantum-confined Stark shifts of charged exciton complexes in quantum dots*. Phys. Rev. B, 70(20):201308(R), 2004.
- [FTSF03] FRANCHI, S., G. TREVISI, L. SERAVALLI und P. FRIGERI: *Quantum dot nanostructures and molecular beam epitaxy*. Progress in Crystal Growth and Characterization of Materials, 47(2-3):166, 2003.
- [FvdM49] FRANK, F. C. und J. H. VAN DER MERWE: *One-Dimensional Dislocations. I. Static Theory*. Proceedings of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences, 198(1053):205, 1949.
- [FVP<sup>+</sup>10] FAVORSKIY, I., D. VU, E. PEYTAUIT, S. ARSCOTT, D. PAGET und A. C. H. ROWE: *Circularly polarized luminescence microscopy for the imaging of charge and spin diffusion in semiconductors*. Review of Scientific Instruments, 81(10):103902, 2010.
- [GB97] GRUNDMANN, M. und D. BIMBERG: *Theory of random population for quantum dots*. Phys. Rev. B, 55(15):9740, 1997.
- [GBM<sup>+</sup>96] GÉRARD, J. M., D. BARRIER, J. Y. MARZIN, R. KUSZELEWICZ, L. MANIN, E. COSTARD, V. THIERRY-MIEG und T. RIVERA: *Quantum boxes as active probes for photonic microstructures: The pillar microcavity case*. Appl. Phys. Lett., 69(4):449, 1996.

- [GBMMP<sup>+</sup>11] GOMIS-BRESCO, J., G. MUÑOZ-MATUTANO, J. MARTÍNEZ-PASTOR, B. ALÉN, L. SERAVALLI, P. FRIGERI, G. TREVISI und S. FRANCHI: *Random population model to explain the recombination dynamics in single InAs/GaAs quantum dots under selective optical pumping*. New Journal of Physics, 13(2):023022, 2011.
- [GE37] GIAUQUE, W. F. und C. J. EGAN: *Carbon Dioxide. The Heat Capacity and Vapor Pressure of the Solid. The Heat of Sublimation. Thermodynamic and Spectroscopic Values of the Entropy*. The Journal of Chemical Physics, 5(1):45, 1937.
- [GFT<sup>+</sup>12] GAO, W. B., P. FALLAHI, E. TOGAN, J. MIGUEL-SANCHEZ und A. IMA-MOGLU: *Observation of entanglement between a quantum dot spin and a single photon*. Nature, 491(7424):426, 2012.
- [GG03] GAYRAL, B. und J.-M. GÉRARD: *Comment on 'Single-Mode Spontaneous Emission from a Single Quantum Dot in a Three-Dimensional Microcavity'*. Physical Review Letters, 90(22):229701, 2003.
- [GGM<sup>+</sup>85] GOLDSTEIN, L., F. GLAS, J. Y. MARZIN, M. N. CHARASSE und G. LE ROUX: *Growth by molecular beam epitaxy and characterization of InAs/GaAs strained-layer superlattices*. Appl. Phys. Lett., 47(10):1099, 1985.
- [GGS<sup>+</sup>13] GSCHREY, M., F. GERICKE, A. SCHÜSSLER, R. SCHMIDT, J.-H. SCHULZE, T. HEINDEL, S. RODT, A. STRITTMATTER und S. REITZENSTEIN: *In situ electron-beam lithography of deterministic single-quantum-dot mesa-structures using low-temperature cathodoluminescence spectroscopy*. Applied Physics Letters, 102(25):251113, 2013.
- [GH09] GRIGORESCU, A. E. und C. W. HAGEN: *Resists for sub-20-nm electron beam lithography with a focus on HSQ: state of the art*. Nanotechnology, 20(29):292001, 2009.
- [GKM13] GREGERSEN, N., P. KAER und J. MORK: *Modeling and Design of High-Efficiency Single-Photon Sources*. IEEE J. Select. Topics Quantum Electron., 19(5):1, 2013.
- [GL92] GAUVIN, R. und G. L'ESPÉRANCE: *A Monte Carlo code to simulate the effect of fast secondary electrons on  $\kappa_{AB}$  factors and spatial resolution in the TEM*. Journal of Microscopy, 168(2):153, 1992.

- [Gla63] GLAUBER, R.: *The Quantum Theory of Optical Coherence*. Phys. Rev., 130(6):2529, 1963.
- [GMdVA<sup>+</sup>13] GAZZANO, O., S. MICHAELIS DE VASCONCELLOS, C. ARNOLD, A. NOWAK, E. GALOPIN, I. SAGNES, L. LANCO, A. LEMAÎTRE und P. SENELART: *Bright solid-state sources of indistinguishable single photons*. Nature Communications, 4:1425, 2013.
- [Goo85] GOODWIN, R. D.: *Carbon Monoxide Thermophysical Properties from 68 to 1000 K at Pressures to 100 MPa*. Journal of Physical and Chemical Reference Data, 14(4):849, 1985.
- [Goo87] GOODWIN, R. D.: *Methanol Thermodynamic Properties From 176 to 673 K at Pressures to 700 Bar*. Journal of Physical and Chemical Reference Data, 16(4):799, 1987.
- [GPMS98] GUSTAFSSON, A., M.-E. PISTOL, L. MONTELIUS und L. SAMUELSON: *Local probe techniques for luminescence studies of low-dimensional semiconductor structures*. Journal of Applied Physics, 84(4):1715, 1998.
- [Grü57] GRÜN, A. E.: *Lumineszenz-photometrische Messungen der Energieabsorption im Strahlungsfeld von Elektronenquellen Eindimensionaler Fall in Luft*. Zeitschrift für Naturforschung A, 12(2):89, 1957.
- [GSB95] GRUNDMANN, M., O. STIER und D. BIMBERG: *InAs/GaAs pyramidal quantum dots: Strain distribution, optical phonons, and electronic structure*. Phys. Rev. B, 52(16):11969, 1995.
- [GSG<sup>+</sup>98] GÉRARD, J., B. SERMAGE, B. GAYRAL, B. LEGRAND, E. COSTARD und V. THIERRY-MIEG: *Enhanced Spontaneous Emission by Quantum Boxes in a Monolithic Optical Microcavity*. Physical Review Letters, 81(5):1110, 1998.
- [GSK<sup>+</sup>13] GSCHREY, M., M. SEIFRIED, L. KRÜGER, R. SCHMIDT, J.-H. SCHULZE, T. HEINDEL, S. RODT, A. STRITTMATTER und S. REITZENSTEIN: *Enhanced extraction efficiency from deterministic quantum-dot microlenses*. arXiv:1312.6298, 2013.
- [GSK<sup>+</sup>14] GSCHREY, M., R. SCHMIDT, A. KAGANSKIY, S. RODT und S. REITZENSTEIN: *Study of high-resolution electron-beam resists for applications in low-temperature lithography*. J. Vac. Sci. Technol. B, 32(6):061601, 2014.

- [GSS<sup>+</sup>15] GSCHREY, M., R. SCHMIDT, J.-H. SCHULZE, A. STRITTMATTER, S. RODT und S. REITZENSTEIN: *Resolution and alignment accuracy of low-temperature in situ electron beam lithography for nanophotonic device fabrication*. J. Vac. Sci. Technol. B, 33(2):021603, 2015.
- [GT07] GISIN, N. und R. THEW: *Quantum communication*. Nat Photon, 1(3):165, 2007.
- [GTM<sup>+</sup>14] GOLD, P., A. THOMA, S. MAIER, S. REITZENSTEIN, C. SCHNEIDER, S. HÖFLING und M. KAMP: *Two-photon interference from remote quantum dots with inhomogeneously broadened linewidths*. Phys. Rev. B, 89(3):035313, 2014.
- [GTS<sup>+</sup>15] GSCHREY, M., A. THOMA, P. SCHNAUBER, M. SEIFRIED, R. SCHMIDT, B. WOHLFEIL, L. KRÜGER, J.-H. SCHULZE, T. HEINDEL, S. BURGER, F. SCHMIDT, A. STRITTMATTER, S. RODT und S. REITZENSTEIN: *Highly indistinguishable photons from deterministic quantum-dot microlenses utilizing 3D in situ electron-beam lithography*. Nature Communications, zur Publikation angenommen (DOI: 10.1038/ncomms8662), 2015.
- [Hal82] HALL, T. M.: *Ion beam exposure characteristics of resists: Experimental results*. Journal of Applied Physics, 53(6):3997, 1982.
- [HB98] HE, D. und M. N. BASSIM: *Atomic force microscope study of crater formation in ion bombarded polymer*. Journal of Materials Science, 33(14):3525, 1998.
- [HBZ04] HE, L., G. BESTER und A. ZUNGER: *Strain-induced interfacial hole localization in self-assembled quantum dots: Compressive InAs/GaAs versus tensile InAs/InSb*. Phys. Rev. B, 70(23):235316, 2004.
- [HCI<sup>+</sup>07] HO, Y.-L. D., T. CAO, P. S. IVANOV, M. J. CRYAN, I. J. CRADDOCK, C. J. RAILTON und J. G. RARITY: *Three-Dimensional FDTD Simulation of Micro-Pillar Microcavity Geometries Suitable for Efficient Single-Photon Sources*. IEEE Journal of Quantum Electronics, 43(6):462, 2007.
- [HDG97] HOVINGTON, P., D. DROUIN und R. GAUVIN: *CASINO: A new monte carlo code in C language for electron beam interaction -part I: Description of the program*. Scanning, 19(1):1, 1997.

- [HGK03] HENSCHER, W., Y. M. GEORGIEV und H. KURZ: *Study of a high contrast process for hydrogen silsesquioxane as a negative tone electron beam resist*. J. Vac. Sci. Technol. B, 21(5):2018, 2003.
- [HHSC<sup>+</sup>10] HADDEN, J. P., J. P. HARRISON, A. C. STANLEY-CLARKE, L. MARSEGLIA, Y.-L. D. HO, B. R. PATTON, J. L. O'BRIEN und J. G. RARITY: *Strongly enhanced photon collection from diamond defect centers under microfabricated integrated solid immersion lenses*. Appl. Phys. Lett., 97(24):241901, 2010.
- [Hir77] HIRAOKA, H.: *Radiation Chemistry of Poly(methacrylates)*. IBM J. Res. & Dev., 21(2):121, 1977.
- [HKR<sup>+</sup>12] HEINDEL, T., C. A. KESSLER, M. RAU, C. SCHNEIDER, M. FÜRST, F. HARGART, W.-M. SCHULZ, M. EICHFELDER, R. ROSSBACH, S. NAUERER und ET AL.: *Quantum key distribution using quantum dot single-photon emitting diodes in the red and near infrared spectral range*. New Journal of Physics, 14(8):083001, 2012.
- [HOM87] HONG, C. K., Z. Y. OU und L. MANDEL: *Measurement of subpicosecond time intervals between two photons by interference*. Physical Review Letters, 59(18):2044, 1987.
- [HS82] HARADA, K. und S. SUGAWARA: *Temperature effects on positive electron resists irradiated with electron beam and deep-UV light*. J. Appl. Polym. Sci., 27(5):1441, 1982.
- [HSL<sup>+</sup>10a] HEINDEL, T., C. SCHNEIDER, M. LERMER, S. HÖFLING, S. REITZENSTEIN, L. WORSCHER und A. FORCHEL: *Highly efficient electrically triggered quantum dot micropillar single photon source*. Journal of Physics: Conference Series, 245:012005, 2010.
- [HSL<sup>+</sup>10b] HEINDEL, T., C. SCHNEIDER, M. LERMER, S. H. KWON, T. BRAUN, S. REITZENSTEIN, S. HÖFLING, M. KAMP und A. FORCHEL: *Electrically driven quantum dot-micropillar single photon source with 34% overall efficiency*. Appl. Phys. Lett., 96(1):011107, 2010.
- [HVL<sup>+</sup>97] HEITZ, R., M. VEIT, N. LEDENTSOV, A. HOFFMANN, D. BIMBERG, V. USTINOV, P. KOP'EV und ZH. ALFEROV: *Energy relaxation by multiphonon processes in InAs/GaAs quantum dots*. Phys. Rev. B, 56(16):10435, 1997.

- [HWB97] HOOLE, A C F, M E WELLAND und A N BROERS: *Negative PMMA as a high-resolution resist - the limits and possibilities*. Semiconductor Science and Technology, 12(9):1166, 1997.
- [IP97] IVCHENKO, E. L. und GRIGORII E. PIKUS: *Superlattices and other heterostructures: symmetry and optical phenomena*. Springer, 2 Auflage, 1997.
- [IWK<sup>+</sup>09] INTALLURA, P. M., M. B. WARD, O. Z. KARIMOV, Z. L. YUAN, P. SEE, P. ATKINSON, D. A. RITCHIE und A. J. SHIELDS: *Quantum communication using single photons from a semiconductor quantum dot emitting at a telecommunication wavelength*. Journal of Optics A: Pure and Applied Optics, 11(5):054005, 2009.
- [JAM<sup>+</sup>13] JÖNS, K. D., P. ATKINSON, M. MÖLLER, M. HELDMAIER, S. M. ULRICH, O. G. SCHMIDT und P. MICHLER: *Triggered Indistinguishable Single Photons with Narrow Line Widths from Site-Controlled Quantum Dots*. Nano Letters, 13(1):126, 2013.
- [JKBJ01] JOYCE, P. B., T. J. KRZYZEWSKI, G. R. BELL und T. S. JONES: *Surface morphology evolution during the overgrowth of large InAs/GaAs quantum dots*. Appl. Phys. Lett., 79(22):3615, 2001.
- [JL89] JOY, D. C. und S. LUO: *An empirical stopping power relationship for low-energy electrons*. Scanning, 11(4):176, 1989.
- [JRO<sup>+</sup>15] JÖNS, K. D., U. RENGSTL, M. OSTER, F. HARGART, M. HELDMAIER, S. BOUNOUAR, S. M. ULRICH, M. JETTER und P. MICHLER: *Monolithic on-chip integration of semiconductor waveguides, beamsplitters and single-photon sources*. J. Phys. D: Appl. Phys., 48(8):085101, 2015.
- [JW06] JELEZKO, F. und J. WRACHTRUP: *Single defect centres in diamond: A review*. phys. stat. sol. (a), 203(13):3207, 2006.
- [KCG<sup>+</sup>09] KIM, J., W. CHAO, B. GRIEDEL, X. LIANG, M. LEWIS, D. HILKEN und D. OLYNICK: *Understanding the base development mechanism of hydrogen silsesquioxane*. J. Vac. Sci. Technol. B, 27(6):2628, 2009.
- [Kes99] KESSLER, G. C.: *Local Area Network Handbook, An Overview of Cryptographic Methods*. Auerbach Pubn, 1999.
- [KKAN13] KOJIMA, T., K. KOJIMA, T. ASANO und S. NODA: *Accurate alignment of a photonic crystal nanocavity with an embedded quantum dot based*

- on optical microscopic photoluminescence imaging.* Appl. Phys. Lett., 102(1):011110, 2013.
- [KKB<sup>+</sup>09] KARL, M., B. KETTNER, S. BURGER, F. SCHMIDT, H. KALT und M. HETTERICH: *Dependencies of micro-pillar cavity quality factors calculated with finite element methods.* Optics Express, 17(2):1144, 2009.
- [Kle68] KLEIN, C. A.: *Bandgap Dependence and Related Features of Radiation Ionization Energies in Semiconductors.* Journal of Applied Physics, 39(4):2029, 1968.
- [Kov04] KOVAL, Y.: *Mechanism of etching and surface relief development of PM-MA under low-energy ion bombardment.* J. Vac. Sci. Technol. B, 22(2):843, 2004.
- [Kun11] KUNO, M.: *Introductory Nanoscience: Physical and Chemical Concepts - Chapter 9: Density of States*, Band 1. Garland Pub, 1 Auflage, 2011.
- [KVZS13] KIM, J. Y., O. VOZNYI, D. ZHITOMIRSKY und E. H. SARGENT: *25th Anniversary Article: Colloidal Quantum Dot Materials and Devices: A Quarter-Century of Advances.* Advanced Materials, 25(36):4986, 2013.
- [KYB<sup>+</sup>99] KOYAMA, K., M. YOSHITA, M. BABA, T. SUEMOTO und H. AKIYAMA: *High collection efficiency in fluorescence microscopy with a solid immersion lens.* Appl. Phys. Lett., 75(12):1667, 1999.
- [LCE<sup>+</sup>11] LEE, K. G., X. W. CHEN, H. EGHLIDI, P. KUKURA, R. LETTOW, A. RENN, V. SANDOGHDAR und S. GÖTZINGER: *A planar dielectric antenna for directional single-photon emission and near-unity collection efficiency.* Nature Photon, 5(3):166, 2011.
- [LFH<sup>+</sup>97] LOGUE, F. P., D. T. FEWER, S. J. HEWLETT, J. F. HEFFERNAN, C. JORDAN, P. REES, J. F. DONEGAN, E. M. MCCABE, J. HEGARTY, S. TANIGUCHI und ET AL.: *Optical measurement of the ambipolar diffusion length in a ZnCdSe/ZnSe single quantum well.* Journal of Applied Physics, 81(1):536, 1997.
- [LJL<sup>+</sup>10] LADD, T. D., F. JELEZKO, R. LAFLAMME, Y. NAKAMURA, C. MONROE und J. L. O'BRIEN: *Quantum computers.* Nature, 464(7285):45, 2010.
- [LM00] LOUNIS, B. und W. E. MOERNER: *Single photons on demand from a single molecule at room temperature.* Nature, 407(6803):491, 2000.

- [LO05] LOUNIS, B. und M. ORRIT: *Single-photon sources*. Reports on Progress in Physics, 68(5):1129, 2005.
- [LRM99] LEE, E.H, G.R RAO und L.K MANSUR: *LET effect on cross-linking and scission mechanisms of PMMA during irradiation*. Radiation Physics and Chemistry, 55(3):293, 1999.
- [LWKR03] LEGERO, T., T. WILK, A. KUHN und G. REMPE: *Time-resolved two-photon quantum interference*. Applied Physics B: Lasers and Optics, 77(8):797, 2003.
- [LWKR06] LEGERO, T., T. WILK, A. KUHN und G. REMPE: *Characterization of single photons using two-photon interference*. Adv. At. Mol. Opt. Phys., 53:253, 2006.
- [MAL<sup>+</sup>14] MADSEN, K. H., S. ATEŞ, J. LIU, A. JAVADI, S. M. ALBRECHT, I. YEO, S. STOBBE und P. LODAHL: *Efficient out-coupling of high-purity single photons from a coherent quantum dot in a photonic-crystal cavity*. Phys. Rev. B, 90(15):155303, 2014.
- [MC87] MAGEE, J.L. und A. CHATTERJEE: *Radiation Chemistry. Principles and Applications*. VCG Publishers, 1987.
- [MCD<sup>+</sup>84] MILLER, D., D. CHEMLA, T. DAMEN, A. GOSSARD, W. WIEGMANN, T. WOOD und C. BURRUS: *Band-Edge Electroabsorption in Quantum Well Structures: The Quantum-Confined Stark Effect*. Physical Review Letters, 53(22):2173, 1984.
- [MCK03] MILLER-CHOU, B. A. und J. L. KOENIG: *A review of polymer dissolution*. Progress in Polymer Science, 28(8):1223, 2003.
- [MDG15] MCMAHON, P. L. und K. DE GREVE: *Towards Quantum Repeaters with Solid-State Qubits: Spin-Photon Entanglement Generation using Self-Assembled Quantum Dots*. arXiv preprint arXiv:1501.03535, 2015.
- [MDS<sup>+</sup>13a] MAI, L., F. DING, T. STÖFERLE, A. KNOLL, B. JAN OFFREIN und R. F. MAHRT: *Integrated vertical microcavity using a nano-scale deformation for strong lateral confinement*. Appl. Phys. Lett., 103(24):243305, 2013.
- [MDS13b] MOHAMMAD, M. A., S. DEW und M. STEPANOVA: *SML resist processing for high-aspect-ratio and high-sensitivity electron beam lithography*. Nanoscale Research Letters, 8(1):139, 2013.

- [MGF<sup>+</sup>14] MAIER, S., P. GOLD, A. FORCHEL, N. GREGERSEN, J. MØRK, S. HÖFLING, C. SCHNEIDER und M. KAMP: *Bright single photon source based on self-aligned quantum dot-cavity systems*. Optics Express, 22(7):8136, 2014.
- [MHR<sup>+</sup>05] MOSOR, S., J. HENDRICKSON, B. C. RICHARDS, J. SWEET, G. KHITROVA, H. M. GIBBS, T. YOSHIE, A. SCHERER, O. B. SHCHEKIN und D. G. DEPPE: *Scanning a photonic crystal slab nanocavity by condensation of xenon*. Appl. Phys. Lett., 87(14):141105, 2005.
- [Mic13] MICHLER, P.: *Ideale Photonen auf Bestellung*. Physik Journal, 6(12):35, 2013.
- [MK90] MANSFIELD, S. M. und G. S. KINO: *Solid immersion microscope*. Appl. Phys. Lett., 57(24):2615, 1990.
- [MLA<sup>+</sup>06] MULLER, A., D. LU, J. AHN, D. GAZULA, S. QUADERY, S. FREISEM, D. G. DEPPE und C. K. SHIH: *Self-Aligned All-Epitaxial Microcavity for Cavity QED with Quantum Dots*. Nano Lett., 6(12):2920, 2006.
- [MM<sup>+</sup>65] MOTT, N. F., H. S. W. MASSEY et al.: *The theory of atomic collisions*, Band 35. Clarendon Press Oxford, 1965.
- [MMD<sup>+</sup>13] MUNSCH, M., N. S. MALIK, E. DUPUY, A. DELGA, J. BLEUSE, J.-M. GÉRARD, J. CLAUDON, N. GREGERSEN und J. MØRK: *Dielectric GaAs Antenna Ensuring an Efficient Broadband Coupling between an InAs Quantum Dot and a Gaussian Optical Beam*. Physical Review Letters, 110(17):177402, 2013.
- [MMH<sup>+</sup>03] MELLITI, A., M.A. MAAREF, F. HASSEN, M. HJIRI, H. MAAREF, J. TIGNON und B. SERMAGE: *Radiative recombination lifetime of excitons in self-organized InAs/GaAs quantum dots*. Solid State Communications, 128(6-7):213, 2003.
- [MMK<sup>+</sup>12] MIZUOCHI, N., T. MAKINO, H. KATO, D. TAKEUCHI, M. OGURA, H. OKUSHI, M. NOTHAFT, P. NEUMANN, A. GALI, F. JELEZKO und ET AL.: *Electrically driven single-photon source at room temperature in diamond*. Nature Photon, 6(5):299, Apr 2012.
- [MS60] MÖLLENSTEDT, G. und R. SPEIDEL: *Elektronenoptischer Mikroschreiber unter elektronenmikroskopischer Arbeitskontrolle: (Informationsspeicherung auf kleinstem Raum)*. Physik Journal, 16(4):192, 1960.

- [MSA<sup>+</sup>06a] MULLER, A., C.-K. SHIH, J. AHN, D. LU und D. G. DEPPE: *Isolated single quantum dot emitters in all-epitaxial microcavities*. Optics Letters, 31(4):528, 2006.
- [MSA<sup>+</sup>06b] MULLER, A., C.-K. SHIH, J. AHN, D. LU, D. GAZULA und D. G. DEPPE: *High Q (33 000) all-epitaxial microcavity for quantum dot vertical-cavity surface-emitting lasers and quantum light sources*. Appl. Phys. Lett., 88(3):031107, 2006.
- [MWZ<sup>+</sup>14] MANFRINATO, V. R., J. WEN, L. ZHANG, Y. YANG, R. G. HOBBS, B. BAKER, D. SU, D. ZAKHAROV, N. J. ZALUZEC, D. J. MILLER, E. A. STACH und K. K. BERGGREN: *Determining the Resolution Limits of Electron-Beam Lithography: Direct Measurement of the Point-Spread Function*. Nano Letters, 14(8):4406, 2014.
- [MZS<sup>+</sup>13] MANFRINATO, V. R., L. ZHANG, D. SU, H. DUAN, R. G. HOBBS, E. A. STACH und K. K. BERGGREN: *Resolution Limits of Electron-Beam Lithography toward the Atomic Scale*. Nano Letters, 13(4):1555, 2013.
- [Nam98] NAMATSU, H.: *Three-dimensional siloxane resist for the formation of nanopatterns with minimum linewidth fluctuations*. J. Vac. Sci. Technol. B, 16(1):69, 1998.
- [NMB<sup>+</sup>13] NOGUES, G., Q. MEROTTO, G. BACHELIER, E. HYE LEE und J. DONG SONG: *Fabrication and tuning of plasmonic optical nanoantennas around droplet epitaxy quantum dots by cathodoluminescence*. Appl. Phys. Lett., 102(23):231112, 2013.
- [NMH<sup>+</sup>15] NAJAFI, F., J. MOWER, N. C. HARRIS, F. BELLEI, A. DANE, C. LEE, X. HU, P. KHAREL, F. MARSILI, S. ASSEFA und ET AL.: *On-chip detection of non-classical light by scalable integration of single-photon detectors*. Nature Communications, 6:5873, Jan 2015.
- [Pam85] PAMPALONE, T.R.: *Positive photoresist compositions with o-quinone diazide, novolak, and propylene glycol alkyl ether acetate*, 1985. US Patent 4,550,069.
- [Päs01] PÄSSLER, R.: *Temperature dependence of fundamental band gaps in group IV, III-V, and II-VI materials via a two-oscillator model*. Journal of Applied Physics, 89(11):6235, 2001.

- [PBC<sup>+</sup>10] PATEL, R. B., A. J. BENNETT, K. COOPER, P. ATKINSON, C. A. NICOLL, D. A. RITCHIE und A. J. SHIELDS: *Quantum interference of electrically generated single photons from a quantum dot*. Nanotechnology, 21(27):274011, 2010.
- [PBZS07] POMPLUN, J., S. BURGER, L. ZSCHIEDRICH und F. SCHMIDT: *Adaptive finite element method for simulation of optical nano structures*. phys. stat. sol. (b), 244(10):3419, 2007.
- [PCL<sup>+</sup>12] PAN, J.-W., Z.-B. CHEN, C.-Y. LU, H. WEINFURTER, A. ZEILINGER und M. ŻUKOWSKI: *Multiphoton entanglement and interferometry*. Rev. Mod. Phys., 84(2):777, May 2012.
- [PCO<sup>+</sup>14] PRTLJAGA, N., R. J. COLES, J. O'HARA, B. ROYALL, E. CLARKE, A. M. FOX und M. S. SKOLNICK: *Monolithic integration of a quantum emitter with a compact on-chip beam-splitter*. Appl. Phys. Lett., 104(23):231107, 2014.
- [PEP<sup>+</sup>12] POOLEY, M. A., D. J. P. ELLIS, R. B. PATEL, A. J. BENNETT, K. H. A. CHAN, I. FARRER, D. A. RITCHIE und A. J. SHIELDS: *Controlled-NOT gate operating with single photons*. Appl. Phys. Lett., 100(21):211103, 2012.
- [Pfe10] PFEIFFER, H. C.: *Direct write electron beam lithography: a historical overview*. Proc. SPIE, 7823:782316, 2010.
- [PFU<sup>+</sup>04] POPPE, A., A. FEDRIZZI, R. URSIN, H. R. BÖHM, T. LORÜNSER, O. MAURHARDT, M. PEEV, M. SUDA, C. KURTSIEFER, H. WEINFURTER und ET AL.: *Practical quantum key distribution with polarization entangled photons*. Optics Express, 12(16):3865, 2004.
- [PG72] PRYDZ, R. und R. D. GOODWIN: *Experimental melting and vapor pressures of methane*. The Journal of Chemical Thermodynamics, 4(1):127, 1972.
- [PLZ<sup>+</sup>14] PFEIFFER, M., K. LINDFORS, H. ZHANG, B. FENK, F. PHILLIPP, P. ATKINSON, A. RASTELLI, O. G. SCHMIDT, H. GIESSEN und M. LIPPITZ: *Eleven Nanometer Alignment Precision of a Plasmonic Nanoantenna with a Self-Assembled GaAs Quantum Dot*. Nano Lett., 14(1):197, 2014.
- [PPA<sup>+</sup>09] PEEV, M., C. PACHER, R. ALLÉAUME, C. BARREIRO, J. BOUDA, W. BOXLEITNER, T. DEBUSSCHERT, E. DIAMANTI, M. DIANATI, J. F.

- DYNES und ET AL.: *The SECOQC quantum key distribution network in Vienna*. New Journal of Physics, 11(7):075001, 2009.
- [PRB91] PAUL, S., J. B. ROY und P. K. BASU: *Empirical expressions for the alloy composition and temperature dependence of the band gap and intrinsic carrier density in  $Ga_xIn_{1-x}As$* . Journal of Applied Physics, 69(2):827, 1991.
- [Pry98] PRYOR, C.: *Eight-band calculations of strained InAs/GaAs quantum dots compared with one-, four-, and six-band approximations*. Phys. Rev. B, 57(12):7190, 1998.
- [Pur46] PURCELL, E. M.: *Spontaneous emission probabilities at radio frequencies*. Proceedings of the American Physical Society, 69(11-12):681, 1946.
- [RF10] REITZENSTEIN, S. und A. FORCHEL: *Quantum dot micropillars*. J. Phys. D: Appl. Phys., 43(3):033001, 2010.
- [RHU<sup>+</sup>14] RAU, M., T. HEINDEL, S. UNSLEBER, T. BRAUN, J. FISCHER, S. FRICK, S. NAUERTH, C. SCHNEIDER, G. VEST, S. REITZENSTEIN und ET AL.: *Free space quantum key distribution over 500 meters using electrically driven quantum dot single-photon sources - a proof of principle experiment*. New Journal of Physics, 16(4):043003, 2014.
- [Ris87] RISHTON, S. A.: *Point exposure distribution measurements for proximity correction in electron beam lithography on a sub-100 nm scale*. J. Vac. Sci. Technol. B, 5(1):135, 1987.
- [RLBW02] RALPH, T. C., N. K. LANGFORD, T. B. BELL und A. G. WHITE: *Linear optical controlled-NOT gate in the coincidence basis*. Phys. Rev. A, 65(6), Jun 2002.
- [RLR<sup>+</sup>13] REITHMAIER, G., S. LICHTMANNECKER, T. REICHERT, P. HASCH, K. MÜLLER, M. BICHLER, R. GROSS und J. J. FINLEY: *On-chip time resolved detection of quantum dot emission using integrated superconducting single photon detectors*. Sci. Rep., 3:1901, 2013.
- [RSI01] ROYO, P., R. P. STANLEY und M. ILEGEMS: *Planar dielectric microcavity light-emitting diodes: Analytical analysis of the extraction efficiency*. Journal of Applied Physics, 90(1):283, 2001.

- [RSP<sup>+</sup>05] RODT, S., A. SCHLIWA, K. PÖTSCHKE, F. GUFFARTH und D. BIMBERG: *Correlation of structural and few-particle properties of self-organized InA/GaAs quantum dots*. Phys. Rev. B, 71(15):155325, 2005.
- [SAB<sup>+</sup>07] SCHMIDT, O.G., P. AVOURIS, B. BHUSHAN, D. BIMBERG, K. VON KLITZING, H. SAKAKI und R. WIESENDANGER: *Lateral alignment of epitaxial quantum dots*. Springer, 2007.
- [SBP<sup>+</sup>06] SRINIVASAN, K., M. BORSELLI, O. PAINTER, A. STINTZ und S. KRISHNA: *Cavity Q, mode volume, and lasing threshold in small diameter AlGaAs microdisks with embedded quantum dots*. Optics Express, 14(3):1094, 2006.
- [SBPT77] SOUERS, P. C., C. K. BRIGGS, J. W. PYPHER und R. T. TSUGAWA: *Hydrogen vapor pressures from 4 to 30K: A Review*. National Technical Information Service, U.S. Department of Commerce, Seiten UCRL-52226, 1977.
- [Sch09] SCHEEL, S.: *Single-photon sources - an introduction*. Journal of Modern Optics, 56(2-3):141, 2009.
- [SDBS15] SAPIENZA, L., M. DAVANCO, A. BADOLATO und K. SRINIVASAN: *Nanoscale optical positioning of single quantum dots for bright, pure, and on-demand single-photon emission*. arXiv preprint arXiv:1503.07141v1, 2015.
- [SDK<sup>+</sup>02] SCHMIDT, O.G., C. DENEKE, S. KIRAVITTAYA, R. SONGMUANG, H. HEIDEMEYER, Y. NAKAMURA, R. ZAPF-GOTTWICK, C. MULLER und N.Y. JIN-PHILLIPP: *Self-assembled nanoholes, lateral quantum-dot molecules, and rolled-up nanotubes*. IEEE J. Select. Topics Quantum Electron., 8(5):1025, Sep 2002.
- [SFP<sup>+</sup>02] SANTORI, C., D. FATTAL, M. PELTON, G. S. SOLOMON und Y. YAMAMOTO: *Polarization-correlated photon pairs from a single quantum dot*. Phys. Rev. B, 66(4), Jul 2002.
- [SFV<sup>+</sup>02] SANTORI, C., D. FATTAL, J. VUCKOVIC, G. S. SOLOMON und Y. YAMAMOTO: *Indistinguishable photons from a single-photon device*. Nature, 419(6907):594, Oct 2002.
- [SFY10] SANTORI, C., D. FATTAL und Y. YAMAMOTO: *Single-Photon Devices and Applications*. WILEY-VCH Verlag, 2010.

- [SGB99] STIER, O., M. GRUNDMANN und D. BIMBERG: *Electronic and optical properties of strained quantum dots modeled by 8-band k-p theory*. Phys. Rev. B, 59(8):5688, 1999.
- [SHG<sup>+</sup>12] SCHNEIDER, C., A. HUGGENBERGER, M. GSCHREY, P. GOLD, S. RODT, A. FORCHEL, S. REITZENSTEIN, S. HÖFLING und M. KAMP: *In(Ga)As/GaAs site-controlled quantum dots with tailored morphology and high optical quality*. physica status solidi (a), 209(12):2379, 2012.
- [SHS<sup>+</sup>12] STRITTMATTER, A., A. HOLZBECHER, A. SCHLIWA, J.-H. SCHULZE, D. QUANDT, T. D. GERMANN, A. DREISMANN, O. HITZEMANN, E. STOCK, I. A. OSTAPENKO und ET AL.: *Site-controlled quantum dot growth on buried oxide stressor layers*. physica status solidi (a), 209(12):2411, 2012.
- [SJP05] SALVAT, F., A. JABLONSKI und C. J. POWELL: *ELSEPA-Dirac partial-wave calculation of elastic scattering of electrons and positrons by atoms, positive ions and molecules*. Computer Physics Communications, 165(2):157, 2005.
- [SK37] STRANSKI, I. N. und L. KRASTANOW: *Zur Theorie der orientierten Ausscheidung von Ionenkristallen aufeinander*. Monatshefte für Chemie, 71(1):351, 1937.
- [SK38] STRANSKI, I. N. und L. KRASTANOW: *Abhandlungen der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Klasse IIb*. Akademie der Wissenschaften Wien, 146:797, 1938.
- [SKG<sup>+</sup>15] SCHLEHAHN, A., L. KRÜGER, M. GSCHREY, J.-H. SCHULZE, S. RODT, A. STRITTMATTER, T. HEINDEL und S. REITZENSTEIN: *Operating single quantum emitters with a compact Stirling cryocooler*. Review of Scientific Instruments, 86(1):013113, 2015.
- [SKSW13] SUN, S., H. KIM, G. S. SOLOMON und E. WAKS: *Strain tuning of a quantum dot strongly coupled to a photonic crystal cavity*. Appl. Phys. Lett., 103(15):151102, 2013.
- [SKV<sup>+</sup>03] SKAULI, T., P. S. KUO, K. L. VODOPYANOV, T. J. PINGUET, O. LEVI, L. A. EYRES, J. S. HARRIS, M. M. FEJER, B. GERARD, L. BECOUARN und ET AL.: *Improved dispersion relations for GaAs and applications to nonlinear optics*. Journal of Applied Physics, 94(10):6447, 2003.

- [SKV05] SPILLANE, S. M., T. J. KIPPENBERG und K. J. VAHALA: *Ultra-high- $Q$  toroidal microresonators for cavity quantum electrodynamics*. Phys. Rev. A, 71(1):013817, 2005.
- [SOKS91] SNYDER, C., B. ORR, D. KESSLER und L. SANDER: *Effect of strain on surface morphology in highly strained InGaAs films*. Physical Review Letters, 66(23):3032, 1991.
- [SOR<sup>+</sup>92] STAUFFER, J. M., Y. OPPLIGER, P. REGNAULT, L. BARALDI und M. T. GALE: *Electron beam writing of continuous resist profiles for optical applications*. Journal of Vacuum Science & Technology B, 10(6):2526, 1992.
- [SSG<sup>+</sup>06] SEGUIN, R., A. SCHLIWA, T. D. GERMANN, S. RODT, K. POÖTSCHKE, A. STRITTMATTER, U. W. POHL, D. BIMBERG, M. WINKELNKEMPER, T. HAMMERSCHMIDT und ET AL.: *Control of fine-structure splitting and excitonic binding energies in selected individual InAs/GaAs quantum dots*. Appl. Phys. Lett., 89(26):263109, 2006.
- [SSG<sup>+</sup>15] SCHWARTZ, I., E. R. SCHMIDGALL, L. GANTZ, D. COGAN, E. BORDO, Y. DON, M. ZIELINSKI und D. GERSHONI: *Deterministic Writing and Control of the Dark Exciton Spin Using Single Short Optical Pulses*. Physical Review X, 5(1):011009, 2015.
- [SSJF<sup>+</sup>11] SKIBA-SZYMANSKA, J., A. JAMIL, I. FARRER, M. B. WARD, C. A. NICOLL, D. J. P. ELLIS, J. P. GRIFFITHS, D. ANDERSON, G. A. C. JONES, D. A. RITCHIE und A. J. SHIELDS: *Narrow emission linewidths of positioned InAs quantum dots grown on pre-patterned GaAs(100) substrates*. Nanotechnology, 22(6):065302, 2011.
- [SSM<sup>+</sup>07] SANGOUARD, N., C. SIMON, J. MINÁŘ, H. ZBINDEN, H. DE RIEDMATTEN und N. GISIN: *Long-distance entanglement distribution with single-photon sources*. Phys. Rev. A, 76(5):050301, 2007.
- [SSR<sup>+</sup>05] SEGUIN, R., A. SCHLIWA, S. RODT, K. PÖTSCHKE, U. W. POHL und D. BIMBERG: *Size-Dependent Fine-Structure Splitting in Self-Organized InAs / GaAs Quantum Dots*. Physical Review Letters, 95(25):257402, 2005.
- [SSR<sup>+</sup>07] STRAUF, S., N. G. STOLTZ, M. T. RAKHER, L. A. COLDREN, P. M. PETROFF und D. BOUWMEESTER: *High-frequency single-photon source with polarization control*. Nature Photon, 1(12):704, 2007.

- [SSS<sup>+</sup>08] SCHNEIDER, C., M. STRAUSS, T. SÜNNER, A. HUGGENBERGER, D. WIENER, S. REITZENSTEIN, M. KAMP, S. HÖFLING und A. FORCHEL: *Lithographic alignment to site-controlled quantum dots for device integration*. Applied Physics Letters, 92(18):183101, 2008.
- [SSS<sup>+</sup>12] STRITTMATTER, A., A. SCHLIWA, J.-H. SCHULZE, T. D. GERMANN, A. DREISMANN, O. HITZEMANN, E. STOCK, I. A. OSTAPENKO, S. RODT, W. UNRAU, U. W. POHL, A. HOFFMANN, D. BIMBERG und V. HAILER: *Lateral positioning of InGaAs quantum dots using a buried stressor*. Applied Physics Letters, 100(9):093111, 2012.
- [SvdDS08] SIDORKIN, V., E. VAN DER DRIFT und H. SALEMINK: *Influence of hydrogen silsesquioxane resist exposure temperature on ultrahigh resolution electron beam lithography*. J. Vac. Sci. Technol. B, 26(6):2049, 2008.
- [SWB07] SCHLIWA, A., M. WINKELNKEMPER und D. BIMBERG: *Impact of size, shape, and composition on piezoelectric effects and electronic properties of In(Ga)As/GaAs quantum dots*. Phys. Rev. B, 76(20):205324, 2007.
- [SYA<sup>+</sup>06] STEVENSON, R. M., R. J. YOUNG, P. ATKINSON, K. COOPER, D. A. RITCHIE und A. J. SHIELDS: *A semiconductor source of triggered entangled photon pairs*. Nature, 439(7073):179, 2006.
- [SYS<sup>+</sup>06] STEVENSON, R., R. YOUNG, P. SEE, D. GEVAUX, K. COOPER, P. ATKINSON, I. FARRER, D. RITCHIE und A. SHIELDS: *Magnetic-field-induced reduction of the exciton polarization splitting in InAs quantum dots*. Phys. Rev. B, 73(3):033306, 2006.
- [SZ12] SANGOUARD, N. und H. ZBINDEN: *What are single photons good for?* Journal of Modern Optics, 59(17):1458, 2012.
- [Tin95] TINONE, M. C. K.: *Photodecomposition of poly(methylmethacrylate) thin films by monochromatic soft x-ray radiation*. J. Vac. Sci. Technol. A, 13(4):1885, 1995.
- [TKSK06] TAN, W. C., K. KOUGHIA, J. SINGH und S. O. KASAP: *Fundamental Optical Properties of Materials I*. Singh/Optical Properties of Condensed Matter and Applications, 2006.
- [TSM<sup>+</sup>06] TAN, H. H., K. SEARS, S. MOKKAPATI, LAN FU, YONG KIM, P. MCGOWAN, M. BUDA und CHENNUPATI JAGADISH: *Quantum Dots and Nano-*

- wires Grown by Metal&ndash;Organic Chemical Vapor Deposition for Optoelectronic Device Applications*. IEEE Transactions on Energy Conversion, 12(6):1242, 2006.
- [UQS<sup>+</sup>12] UNRAU, W., D. QUANDT, J.-H. SCHULZE, T. HEINDEL, T. D. GERMAN, O. HITZEMANN, A. STRITTMATTER, S. REITZENSTEIN, U. W. POHL und D. BIMBERG: *Electrically driven single photon source based on a site-controlled quantum dot with self-aligned current injection*. Appl. Phys. Lett., 101(21):211119, 2012.
- [VB54] VISVANATHAN, S. und J. F. BATTEY: *Some Problems in the Diffusion of Minority Carriers in a Semiconductor*. Journal of Applied Physics, 25(1):99, 1954.
- [VCP<sup>+</sup>00] VIEU, C., F. CARCENAC, A. PÉPIN, Y. CHEN, M. MEJIAS, A. LEBIB, L. MANIN-FERLAZZO, L. COURAUD und H. LAUNOIS: *Electron beam lithography: resolution limits and applications*. Applied Surface Science, 164(1-4):111, 2000.
- [VW26] VOLMER, M. und A. WEBER: *Nucleus formation in supersaturated systems*. Z. Physik. Chem., 119:277, 1926.
- [War02] WARBURTON, R. J.: *Self-assembled semiconductor quantum dots*. Contemporary Physics, 43(5):351, 2002.
- [WHC<sup>+</sup>14] WEI, Y.-J., Y.-M. HE, M.-C. CHEN, Y.-N. HU, Y. HE, D. WU, C. SCHNEIDER, M. KAMP, S. HÖFLING, C.-Y. LU und ET AL.: *Deterministic and Robust Generation of Single Photons from a Single Quantum Dot with 99.5 % Indistinguishability Using Adiabatic Rapid Passage*. Nano Lett., 14(11):6515, 2014.
- [WIS<sup>+</sup>02] WAKS, E., K. INOUE, C. SANTORI, D. FATTAL, J. VUCKOVIC, G. S. SOLOMON und Y. YAMAMOTO: *Secure communication: Quantum cryptography with a photon turnstile*. Nature, 420(6917):762, 2002.
- [WSY<sup>+</sup>99] WANG, J., S. SCHABLITSKY, Z. YU, W. WU und S. Y. CHOU: *Fabrication of a new broadband waveguide polarizer with a double-layer 190 nm period metal-gratings using nanoimprint lithography*. J. Vac. Sci. Technol. B, 17(6):2957, 1999.

- [Yab87] YABLONOVITCH, E.: *Inhibited Spontaneous Emission in Solid-State Physics and Electronics*. Physical Review Letters, 58(20):2059, 1987.
- [YB07] YANG, J. K. W. und K. K. BERGGREN: *Using high-contrast salty development of hydrogen silsesquioxane for sub-10-nm half-pitch lithography*. J. Vac. Sci. Technol. B, 25(6):2025, 2007.
- [YBL<sup>+</sup>10] YUAN, Z.-S., X.-H. BAO, C.-Y. LU, J. ZHANG, C.-Z. PENG und J.-W. PAN: *Entangled photons and quantum communication*. Physics Reports, 497(1):1, 2010.
- [YCSA08] YAN, M., S. CHOI, K. R. V. SUBRAMANIAN und I. ADESIDA: *The effects of molecular weight on the exposure characteristics of poly(methylmethacrylate) developed at low temperatures*. J. Vac. Sci. Technol. B, 26(6):2306, 2008.
- [YH86] YACOBI, B. G. und D. B. HOLT: *Cathodoluminescence scanning electron microscopy of semiconductors*. Journal of Applied Physics, 59(4):R1, 1986.
- [YHA01] YASIN, S., D. G. HASKO und H. AHMED: *Fabrication of <5 nm width lines in poly(methylmethacrylate) resist using a water:isopropyl alcohol developer and ultrasonically-assisted development*. Appl. Phys. Lett., 78(18):2760, 2001.
- [YSA<sup>+</sup>06] YOUNG, R. J., R. M. STEVENSON, P. ATKINSON, K. COOPER, D. A. RITCHIE und A. J. SHIELDS: *Improved fidelity of triggered entangled photons from single quantum dots*. New Journal of Physics, 8(2):29, 2006.
- [YTC00] YAMAMOTO, Y., F. TASSONE und H. CHAO: *Semiconductor Cavity Quantum Electrodynamics*. Springer Tracts in Modern Physics, 2000.
- [Yua02] YUAN, Z.: *Electrically Driven Single-Photon Source*. Science, 295(5552):102, 2002.
- [ZAvW<sup>+</sup>08] ZWILLER, V., N. AKOPIAN, M. VAN WEERT, M. VAN KOUWEN, U. PERINETTI, L. KOUWENHOVEN, R. ALGRA, J. GÓMEZ RIVAS, E. BAKKERS, G. PATRIARCHE und ET AL.: *Optics with single nanowires*. Comptes Rendus Physique, 9(8):804, 2008.



# A Monte-Carlo Simulation von Elektronentrajektorien: Casino

Zum generellen Verständnis und zur Unterstützung der Bestimmung von Lithographie-Parametern werden in dieser Arbeit Monte-Carlo Simulationen, basierend auf dem Programm Casino<sup>1</sup> [HDG97, DHG97], durchgeführt. Hierzu kann eine Probengeometrie beliebiger Komplexität unter Angabe der jeweiligen Materialzusammensetzung und -dichte vorgegeben und die Elektronentrajektorien, sowie Elektronenenergien simuliert werden (siehe Abb. A.1 (a)). Die Arithmetik des Programms kann in [DCJ<sup>+</sup>07] nachvollzogen werden und geht von einem im Profil Gaußförmigen Primärelektronenstrahl aus, dessen Elektronen nach einer zurückgelegten Strecke  $L$  mit

$$L = -\frac{\log(R)}{\rho N_0 \sum_{i=1}^n \frac{C_i \sigma_{\text{el}}^i}{A_i}} \quad (\text{A.1})$$

Stöße mit dem Material ausführen. Hierbei ist  $R$  eine Zufallszahl zwischen 0 und 1,  $\rho$  die Dichte des Materials in  $\text{g/cm}^3$ ,  $N_0$  die Avogadrokonstante, sowie  $C_i$  der Gewichtsanteil,  $\sigma_{\text{el}}^i$  der Streuquerschnitt in  $\text{nm}^2$  und  $A_i$  die Atommasse der einzelnen Komponenten. Die Ermittlung des Streuquerschnitts [MM<sup>+</sup>65, CMRJ90], sowie des Streuwinkels erfolgen dabei über die Ergebnisse des Programmteils ELSEPA [SJP05]. Die verbleibende Energie des Elektrons nach dem  $i$ -ten Stoß wird über

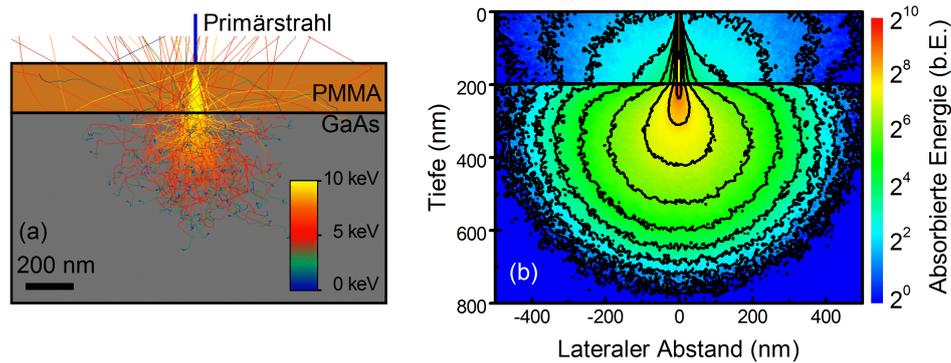
$$E_{i+1} = E_i + \frac{dE}{dS} L \quad (\text{A.2})$$

$$\frac{dE}{dS} = \frac{-7,85 \cdot 10^3 \rho}{E_i} \sum_{j=1}^n \frac{C_j Z_j}{F_j} \ln \left( 1,116 \left( \frac{E_i}{J_j} + k_j \right) \right) \quad (\text{A.3})$$

berechnet [JL89]. Dabei wird mit  $Z_j$  die Ordnungszahl und mit  $J_j$  die im Mittel benötigte Ionisationsenergie der entsprechenden Elemente angegeben. Die Variable  $k_j$  wird weiterhin aus [GL92] für die entsprechenden Ordnungszahlen entnommen. Die Stöße mit dem

---

<sup>1</sup> Frei herunterzuladen unter <http://www.gel.usherbrooke.ca/casino/>



**Abbildung A.1:** (a) Elektronentrajektorien eines 10 kV Primärstrahls, welcher auf ein GaAs-Substrat mit 200 nm PMMA trifft. Die Farben der Trajektorien geben die noch verbleibende Energie des streuenden Elektrons an. (b) In Richtung des Betrachters projizierte, vom Material absorbierte Energie der in (a) dargestellten Monte-Carlo Simulation.

Material werden so lange wiederholt bis eine Elektronenenergie von unter 50 eV erreicht wurde oder die Elektronen als Sekundärelektronen das Material verlassen.

Eine exemplarische Simulation von 200 Elektronentrajektorien mit 10 keV Primärenergie ist in Abb. A.1 (a) für GaAs mit 200 nm PMMA, dargestellt. Farblich codiert ist dabei die Energie der einzelnen gestreuten Elektronen beim Durchgang durch das Material. Die in (a) von 100.000 Elektronen abgegebene Energie als Projektion in Betrachterrichtung ist nach ihrem Ort aufgeschlüsselt in (b) zu sehen. Ein Ausschnitt der Energieverteilung  $\epsilon(r)$  in der Lackschicht im Bereich des einfallenden Elektronenstrahls ist in Abb. 4.13 (c) dargestellt.

Zum Erhalt der vielfach in dieser Arbeit berechneten Schwellendosis wird die aus der Monte-Carlo Simulation erhaltene Energieverteilung  $\epsilon(r)$  (dargestellt z.B. in Abb. A.1 (b)) auf die in den gesamten Lack pro Elektron eingebrachte Gesamtenergie

$$\mathcal{E} = \frac{1}{N} \int_{V_{\text{Lack}}} \epsilon(r) dV \quad (\text{A.4})$$

mit  $N$  als die für die Simulation verwendete Anzahl der Elektronen, umgerechnet. Nun kann über die, während der Lithographie eingebrachte Pixeldosis  $Q_{\text{ein}}$ , die im Lack deponierte Gesamtenergie pro Pixel  $E$  über

$$E = \frac{Q_{\text{ein}}}{e} \mathcal{E} \quad (\text{A.5})$$

ermittelt werden. Geht man davon aus, dass die chemische Veränderung des Lacks eine Mindestenergie von  $E_S$  erfordert, wird nach Gl. (A.5) eine Dosis von

---

$$Q_{\text{ein}}^{\text{S}} = \frac{E_{\text{S}}}{\mathcal{E}} e \quad (\text{A.6})$$

benötigt, woraus sich die benötigte Schwellendosis über den Pixelabstand  $\Delta x$  und  $\Delta y$  zu

$$D_{\text{S}} = \frac{E_{\text{S}}}{\Delta x \Delta y \mathcal{E}} e \quad (\text{A.7})$$

ergibt. Dies gilt jedoch nur unter der Annahme einer ausreichend dünnen Lackschicht gegenüber der Eindringtiefe, sowie einer möglichst homogenen Belichtung des Lacks. Da weiterhin die Energie ab welcher eine ausreichende chemische Modifikation des Lacks eintritt um eine Löslichkeitsveränderung hervorzurufen nicht experimentell bestimmbar ist, kann über die Schwellendosis keine quantitative, sondern nur eine qualitative Aussage getroffen werden und muss anhand einzelner Messungen normiert werden.



## B JCMWSuite: Eine FEM-Umsetzung zur optischen Moden- und Feldberechnung

Zur Berechnung der elektrischen Feldverteilung innerhalb und außerhalb von Resonator- und Linsenstrukturen wird auf das kommerzielle Softwarepaket JCMsuite<sup>1</sup>, zurückgegriffen [KKB<sup>+</sup>09, PBZS07]. Der numerische Algorithmus löst die Feldverteilung des elektrischen ( $\mathbf{E}$ ) und magnetischen ( $\mathbf{H}$ ) Feldes auf Basis der Maxwell-Gleichungen

$$\begin{aligned}\partial_t \epsilon \mathbf{E} &= \nabla \times \mathbf{H} - \mathbf{J} \\ \partial_t \mu \mathbf{H} &= -\nabla \times \mathbf{E} \\ \nabla \cdot \epsilon \mathbf{E} &= \rho \\ \nabla \cdot \mu \mathbf{H} &= 0,\end{aligned}\tag{B.1}$$

mit  $\epsilon$  als Permittivitäts- und  $\mu$  als Permeabilitätstensor, sowie  $\vec{J}$  als elektrische Stromdichte und  $\rho$  als Ladungsdichte. Da jedoch nur die stationären Lösungen von Interesse sind, kann auf den zeitharmonischen Ansatz

$$\begin{aligned}\mathbf{E}(x,y,z,t) &= \tilde{\mathbf{E}}(x,y,z) \exp(-i\omega t) \\ \mathbf{H}(x,y,z,t) &= \tilde{\mathbf{H}}(x,y,z) \exp(-i\omega t)\end{aligned}\tag{B.2}$$

mit konstanter Kreisfrequenz  $\omega$  zurückgegriffen werden, welchem auch die Quellenterme

$$\begin{aligned}\mathbf{J}(x,y,z,t) &= \tilde{\mathbf{j}}(x,y,z) \exp(-i\omega t) \\ \rho(x,y,z,t) &= \tilde{\rho}(x,y,z) \exp(-i\omega t)\end{aligned}\tag{B.3}$$

folgen müssen. Folglich bleibt dann nur noch die zeitharmonische Maxwell-Gleichung

---

<sup>1</sup> [www.jcmwave.com](http://www.jcmwave.com), JCMwave GmbH

$$\begin{aligned}\nabla \times \mu^{-1} \times \tilde{\mathbf{E}} - \omega^2 \epsilon \tilde{\mathbf{E}} &= -i\omega \tilde{\mathbf{j}} \\ \nabla \cdot \epsilon \tilde{\mathbf{E}} &= 0,\end{aligned}\tag{B.4}$$

welche mit Hilfe der Methode der finiten Elemente gelöst werden kann. Dabei wird das Rechenggebiet in immer kleiner werdende Elemente unterteilt (das sogenannte *grid*) auf denen Ansatzfunktionen definiert und numerisch verfeinert werden.

Die für die in dieser Arbeit durchgeführte Optimierung der Probenstruktur notwendigen Berechnungen lassen sich in zwei Klassen unterteilen: Streurechnungen und Resonanzmodenberechnungen. Bei den Streurechnungen wird die Emission eines QPes durch eine Dipol- oder Punktquelle simuliert, wobei z.B. die Punktquelle durch eine Stromdichte

$$\mathbf{J}(\mathbf{r}, t) = \tilde{\mathbf{j}} \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0) \exp(-i\omega t)\tag{B.5}$$

mit  $\mathbf{r}_0$  als Position des Emitters und  $\tilde{\mathbf{j}}$  als konstanter Quellenstärkevektor in 3D beschrieben wird. Hierfür ermittelt JCMwave für konstantes  $\omega$  die elektrische Feldverteilung innerhalb des Rechengebiets, aus welcher dann andere Größen und Felder abgeleitet werden können. Bei der Berechnung von Resonanzmoden wird in der quellenfreien Kavität ein Lösungspaar aus  $\omega$  und  $\tilde{\mathbf{E}}$  gesucht, welches die Maxwellgleichungen (B.1) erfüllt und dessen  $\omega$  für die Bestimmung der Fundamentalmode minimal wird.

Um den numerischen Aufwand für die Berechnung gering zu halten, wird im Fall der Resonanzmodenberechnung die Zylindersymmetrie (mit der Y-Achse bei  $X = 0$  als Rotationsachse) der zu untersuchenden Geometrie genutzt, wodurch die Maxwellgleichungen in Zylinderkoordinaten unabhängig vom Polarwinkel  $\phi$  werden und als 2D Problem gelöst werden können. Diese Methode ist für Streurechnungen leider nicht möglich, da die Definition von Punkt- und Dipolquellen nur in 3D erfolgen kann, was zu einem erheblichen numerischen Mehraufwand für diese Klasse von Problemen führt.

Weiterhin ist für die Berechnungen die Definition des Verhaltens der Mode außerhalb des Rechengebiets notwendig, was über die Festlegung der Randbedingungen der Geometrie erfolgt. Für alle in dieser Arbeit berechneten Strukturen wird dabei auf die Verwendung von transparenten Randbedingungen (mit Ausnahme der Rotationsachse bei zylindersymmetrischen Geometrien) zurückgegriffen, welche ungedämpfte elektrische Felder außerhalb des Rechengebiets beschreiben. Da die ungedämpften Felder außerhalb keine Leistung in das Rechenggebiet zurückreflektieren, kann diese Bedingung durch eine exponentielle Dämpfung in der PML (*perfectly matched layer*) [Ber94], welche das Rechenggebiet umschließt, sichergestellt werden. Für die Feldberechnungen selbst wird jedoch nur das Inne-

re des Rechengebiets und der Einfluss der Umgebung auf dieses berücksichtigt. Aus dem mit der Feldstärkeverteilung und der Kreisfrequenz gelöstem Problem können dann andere physikalische Größen, wie z.B. das Fernfeld oder die Poynting-Vektoren durch definierte Flächen über sogenannte Post-Prozesse ermittelt werden.



## C Probenlayouts

### NP4829

Bereich	Dicke	Material
Deckschicht	5 nm	GaAs
Obere Antidiffusionsbarriere	27 nm	$\text{Al}_{0,41}\text{Ga}_{0,59}\text{As}$
Spacerschicht	147 nm	GaAs
Quantenpunktschicht	-	$\text{In}_{0,50}\text{Ga}_{0,50}\text{As}$
Spacerschicht	152 nm	GaAs
Untere Antidiffusionsbarriere	29 nm	$\text{Al}_{0,62}\text{Ga}_{0,38}\text{As}$
Pufferschicht	506 nm	GaAs
Substrat	500 $\mu\text{m}$	GaAs:Si

**Tabelle C.1:** Probenaufbau der QP-Probe niedriger Dichte mit PL-Struktur für die Herstellung von Mesenstrukturen.

### NP4964

Bereich	Dicke	Material
Schattenmaske	70 nm	Platin
Haftvermittler	5 nm	Titan
Deckschicht	5 nm	GaAs
Obere Antidiffusionsbarriere	20 nm	$\text{Al}_{0,41}\text{Ga}_{0,59}\text{As}$
Spacerschicht	147 nm	GaAs
Quantenfilmschicht	4.5 nm	$\text{In}_{0,18}\text{Ga}_{0,82}\text{As}$
Spacerschicht	141 nm	GaAs
Untere Antidiffusionsbarriere	33 nm	$\text{Al}_{0,40}\text{Ga}_{0,60}\text{As}$
Pufferschicht	305 nm	GaAs
Substrat	500 $\mu\text{m}$	GaAs:Si

**Tabelle C.2:** Probenaufbau der Quantenfilmprobe zur Bestimmung der Lithographiegenauigkeit anhand von Markerstrukturen, welche an submikrometergroßen Aperturen ausgerichtet wurden.

## NP5452

Bereich	Dicke	Material
Deckschicht	220 nm	GaAs
Obere Antidiffusionsbarriere	20 nm	$\text{Al}_{0,41}\text{Ga}_{0,61}\text{As}$
Spacerschicht	147 nm	GaAs
Quantenpunktschicht	-	$\text{In}_{0,63}\text{Ga}_{0,37}\text{As}$
Spacerschicht	159 nm	GaAs
Untere Antidiffusionsbarriere	20 nm	$\text{Al}_{0,62}\text{Ga}_{0,38}\text{As}$
Pufferschicht	529 nm	GaAs
Substrat	500 $\mu\text{m}$	GaAs:Si

**Tabelle C.3:** Probenaufbau der QP-Probe niedriger Dichte mit PL-Struktur für die Herstellung von Linsenstrukturen.

## NP5647

Bereich	Anzahl	Dicke	Material
Deckschicht	1	400 nm	GaAs
Quantenpunktschicht	1	-	$\text{In}_{0,63}\text{Ga}_{0,37}\text{As}$
Spacerschicht	1	72 nm	GaAs
Unterer DBR	23	66 nm	GaAs
	23	78 nm	$\text{Al}_{0,91}\text{Ga}_{0,09}\text{As}$
Pufferschicht	1	305 nm	GaAs
Substrat	1	500 $\mu\text{m}$	GaAs:Si

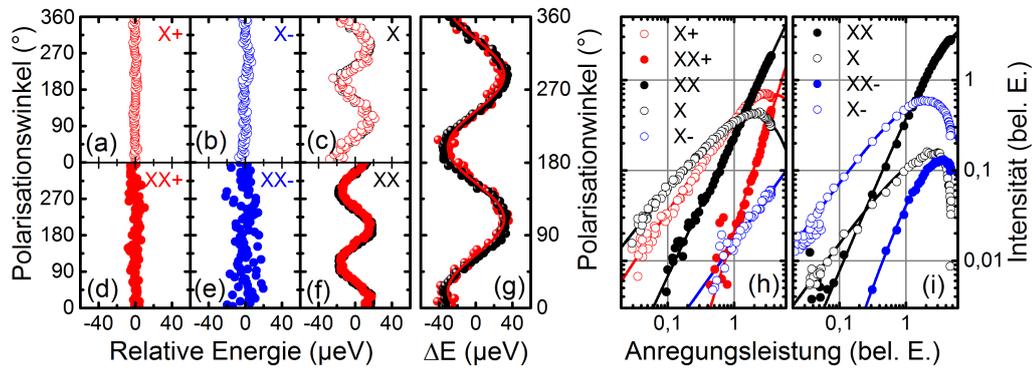
**Tabelle C.4:** Probenaufbau der QP-Probe niedriger Dichte für die Herstellung von Linsen auf DBR-Strukturen, sowie zur Demonstration der erweiterten KLL.

Bereich	Anzahl	Dicke	Material
NP5867			
Oberer DBR	14	66 nm	GaAs
	14	78 nm	$\text{Al}_{0,91}\text{Ga}_{0,09}\text{As}$
Pufferschicht	1	20 nm	GaAs
NP5643			
Obere Kavität	1	134 nm	GaAs
Quantenpunktschicht	1	-	$\text{In}_{0,63}\text{Ga}_{0,37}\text{As}$
Untere Kavität	1	134 nm	GaAs
Unterer DBR	23	78 nm	$\text{Al}_{0,91}\text{Ga}_{0,09}\text{As:Si}$
	23	66 nm	GaAs:Si
Pufferschicht	1	238 nm	GaAs:Si
Substrat	1	500 $\mu\text{m}$	GaAs:Si

**Tabelle C.5:** Probenaufbau der QP-Probe (NP5643) niedriger Dichte für die Herstellung von kavitätsintegrierten Mikrolinsen. Zur Fabrikation der Linienstrukturen wurde 130 nm tief in die obere Kavität geätzt, auf welche anschließend die Probenstruktur NP5867 mit dem oberen DBR aufgewachsen wurde.



## D Ergänzende Daten zur erweiterten Kathodolumineszenzlithographie



**Abbildung D.1:** Ergänzende Daten zu den Messungen der erweiterten Kathodolumineszenzlithographie (siehe Kap. 5.4). (a) bis (f): Relative polarisationsabhängige Verschiebung der detektierten Emissionsenergien der einzelnen, exzitonischen Komplexe und in (g) die Differenz der Verschiebung von Biexziton und Exziton. (a) und (b) zeigen Messungen vor der Integration und (d) und (e) Messungen nach der Integration. In (c) und (f) ist in schwarz die relative polarisationsabhängige Verschiebung vor und in rot die Messung nach der Integration gezeigt. (h) und (i): Leistungsabhängige Intensität vor (h) und nach (i) der Prozessierung (Steigungen siehe Tab. D.1).

Komplex	Steigung vorher	Steigung nachher
X+	1,12	-
X	0,92	1,00
X-	1,03	1,03
XX+	2,35	-
XX	1,57	1,76
XX-	-	2,20

**Tabelle D.1:** Steigung nach Gl. (3.7) der anregungsleistungsabhängigen Intensität der verschiedenen exzitonischen Komplexe in Abb. D.1 (h) und (i).



# Liste der Veröffentlichungen

Es liegen bereits folgende Veröffentlichungen mit Inhalten aus meiner Dissertation vor:

1. *In situ electron-beam lithography of deterministic single-quantum-dot mesa-structures using low-temperature cathodoluminescence spectroscopy*  
M. Gschrey, F. Gericke, A. Schüßler, R. Schmidt, J.-H. Schulze, T. Heindel, S. Rodt, A. Strittmatter und S. Reitzenstein, *Appl. Phys. Lett.* **102**, 251113 (2013) - Eigenanteil: KLL-Prozessentwicklung, Probenstrukturierung und KL Spektroskopie
2. *Enhanced photon-extraction efficiency from deterministic quantum-dot microlenses*  
M. Gschrey, M. Seifried, L. Krüger, R. Schmidt, J.-H. Schulze, T. Heindel, S. Burger, S. Rodt, F. Schmidt, A. Strittmatter und S. Reitzenstein, arXiv:1312.6298 (2013) - Eigenanteil: Numerische Simulationen, 3D-KLL-Prozessentwicklung, Probenstrukturierung und KL Spektroskopie
3. *Fabrication of Deterministic Quantum Light Sources using Cathodoluminescence Lithography*  
M. Gschrey, F. Gericke, R. Schmidt, E. Schlottmann, A. Schüßler, J.-H. Schulze, T. Heindel, S. Rodt, A. Strittmatter und S. Reitzenstein, in *Research in Optical Sciences*, OSA Technical Digest (online), QW4A.5 (2014) - Eigenanteil: KLL-Prozessentwicklung, Probenstrukturierung und KL Spektroskopie
4. *Boosting the photon-extraction efficiency of nanophotonic structures by deterministic microlenses*  
M. Gschrey, M. Seifried, L. Krüger, R. Schmidt, J.-H. Schulze, T. Heindel, S. Burger, S. Rodt, F. Schmidt, A. Strittmatter und S. Reitzenstein, in *CLEO:2014*, OSA Technical Digest (online), FF2K.2 (2014) - Eigenanteil: Numerische Simulationen, 3D-KLL-Prozessentwicklung, Probenstrukturierung und KL Spektroskopie
5. *Study of high-resolution electron-beam resists for applications in low-temperature lithography*  
M. Gschrey, R. Schmidt, A. Kaganskiy, S. Rodt und S. Reitzenstein, *J. Vac. Sci.*

- Technol. B **32**, 061601 (2014) - Eigenanteil: Probenstrukturierung, Auswertung und Modellentwicklung
6. *Resolution and alignment accuracy of low-temperature in situ electron beam lithography for nanophotonic device fabrication*  
M. Gschrey, R. Schmidt, J.-H. Schulze, A. Strittmatter, S. Rodt und S. Reitzenstein, J. Vac. Sci. Technol. B **33**, 021603 (2015) - Eigenanteil: Probenstrukturierung, Datenauswertung und -interpretation
  7. *Highly indistinguishable photons from deterministic quantum-dot microlenses utilizing 3D in-situ electron-beam lithography*  
M. Gschrey, A. Thoma, P. Schnauber, M. Seifried, R. Schmidt, B. Wohlfeil, L. Krüger, J.-H. Schulze, T. Heindel, S. Burger, F. Schmidt, A. Strittmatter, S. Rodt und S. Reitzenstein, Nat. Commun. **6**, 7662 (2015) - Eigenanteil: Bauteilentwicklung, 3D-KLL-Prozessentwicklung, Probenstrukturierung, Vorcharakterisierung
  8. *Operating single quantum emitters with a compact Stirling cryocooler*  
A. Schlehahn, L. Krüger, M. Gschrey, J.-H. Schulze, S. Rodt, A. Strittmatter, T. Heindel und S. Reitzenstein, Rev. Sci. Instrum. **86**, 013113 (2015) - Eigenanteil: Probenstrukturierung
  9. *Advanced in-situ electron-beam lithography for deterministic nanophotonic device processing*  
A. Kaganskiy, M. Gschrey, A. Schlehahn, R. Schmidt, J.-H. Schulze, T. Heindel, A. Strittmatter, S. Rodt und S. Reitzenstein, Rev. Sci. Instrum. **86**, 073903 (2015) - Eigenanteil: Wissenschaftliche Anleitung, Unterstützung der Prozessentwicklung, Auswertung und Interpretation
  10. *Single-Photon emission at a rate of 143 MHz from a deterministic quantumdot microlens triggered by a mode-locked VECSEL*  
A. Schlehahn, M. Gaafar, M. Vaupel, M. Gschrey, P. Schnauber, J.-H. Schulze, S. Rodt, A. Strittmatter, W. Stolz, A. Rahimi-Iman, T. Heindel, M. Koche und S. Reitzenstein, Appl. Phys. Lett. **107**, 041105 (2015) - Eigenanteil: Probenstrukturierung
  11. *Exploring Dephasing of a Solid-State Quantum Emitter via Time- and Temperature-Dependent Hong-Ou-Mandel Experiments*  
A. Thoma, P. Schnauber, M. Gschrey, M. Seifried, J. Wolters, J.-H. Schulze, A. Strittmatter, S. Rodt, A. Carmele, A. Knorr, T. Heindel und S. Reitzenstein, arXiv: 1507.05900 (2015) - Eigenanteil: Probenstrukturierung

# Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich ganz herzlich bei all jenen bedanken, welche zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben:

- *Prof. Dr. Stephan Reitzenstein*, der es mir ermöglicht hat, dieses sehr spannende Themengebiet kennenzulernen und zu erforschen. Ich möchte mich bei ihm für das entgegengebrachte Vertrauen, sein großes Interesse und die freundliche und offene Arbeitsatmosphäre bedanken.
- *Prof. Dr. Jürgen Christen* und *Prof. Dr. Michael Lehmann* für die Übernahme des Zweitgutachtens und den Vorsitz der Prüfungskommission.
- Mein besonderer Dank geht an *Dr. Sven Rodt*, der meine Arbeit stets exzellent betreute und mir mit Rat und Tat zur Seite gestanden hat. Durch seine gelassene Art, sein stets offenes Ohr und sein enormes Fachwissen war es mir immer ein Vergnügen mit ihm zusammenzuarbeiten.
- Ebenfalls besonderer Dank geht an *Ronny Schmidt* für seinen unermüdlichen Einsatz im Reinraum. Es hat mir stets sehr viel Freude bereitet, gemeinsam neue Ideen umzusetzen.
- *Jan-Hindrik Schulze* und *David Quandt* für das exzellente Probenwachstum. Bei ihnen und bei *Prof. Dr. Udo Pohl*, sowie bei *PD Dr. André Strittmatter* möchte ich mich für die unermüdliche Beantwortung von Fragen bedanken.
- Meiner Anlage, dafür dass sie nach 30 Jahren immer noch so treu ihren Dienst verrichtet, wie am ersten Tag.
- Meinen Masterstudenten *Anja Schüßler*, *Marc Seifried*, *Arsenty Kaganskiy*, *Peter Schnauber* und *Tobias Heuser*, sowie meinen Bachelorstudenten *Tuan Minh Do*, *Madeleine Nuck* und *Andreas Dietrich*. Die Arbeit in einem so fähigen Team war mir ein Vergnügen.

- *Dr. Tobias Heindel, Alexander Thoma, Fabian Gericke, Elisabeth Schlottmann, Luzy Krüger, Pierce Munnelly und Alexander Schlehahn* für die detaillierte spektroskopische Untersuchung der hergestellten Proben.
- Dem *Zuse-Institut Berlin, JCMwave GmbH*, sowie allen Mitarbeitern, welche an der Durchführung der numerischen Simulationen beteiligt waren.
- Allen, die meine Arbeit korrekturgelesen haben: *Prof. Dr. Stephan Reitzenstein, Dr. Sven Rodt, Dr. Tobias Heindel, Ronny Schmidt, Alexander Thoma, Peter Schnauber und Arseniy Kaganskiy*. Vielen Dank für die Anregungen und Verbesserungsvorschläge.
- *Dr. Erik Stock, Dr. Anna Musial, Dr. Janik Wolter, Ines Rudolph, Esra Tauscher, Caspar Hopfmann, Max Strauß, Steffen Holzinger, Sören Kreinberg und Matthias Karow*, sowie allen anderen Arbeitskollegen für die freundschaftliche und lockere Arbeitsatmosphäre.

Ganz besonders möchte ich mich jedoch bei meiner Familie bedanken. Allen voran meinen Eltern, Christa und Alois. Danke, dass ihr mich auf diesem Weg fortwährend unterstützt und immer an mich geglaubt habt. Danke, Nina, dass du mit mir und meiner Arbeit so viel Geduld hattest und danke für die wunderschöne, gemeinsame Zeit. Danke, liebe Heike und Daniela mit Familien, für die schönen Momente und die Ablenkung in der Freizeit. Danke, Ilse, Karin, Laura, Uli und Frank. Die Zeit bei euch war immer wie Urlaub für mich. Danke, meine Freunde aus Würzburg, für die vielen, gemeinsamen Sonntage.