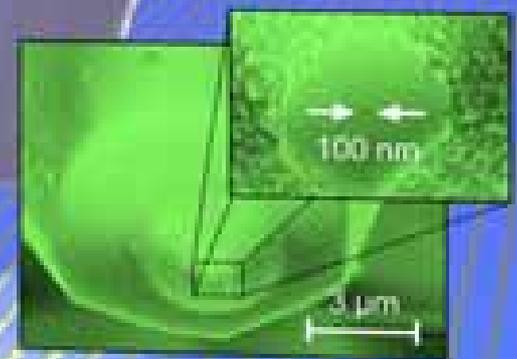
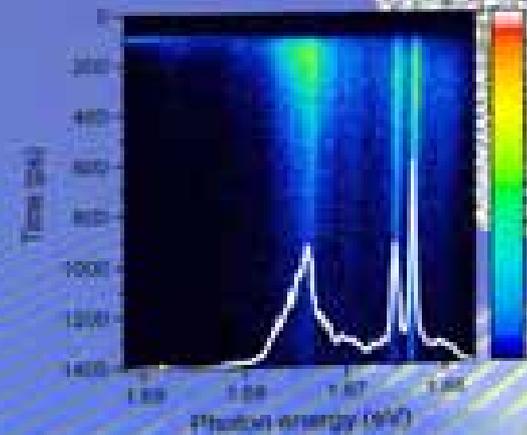
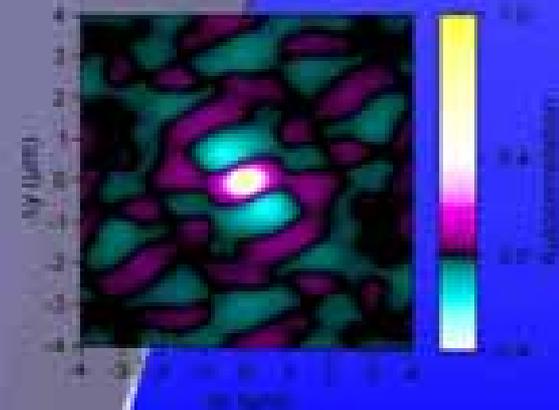
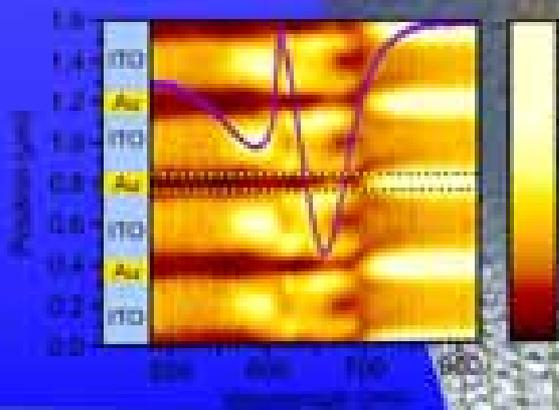


Optische Rasternahfeldmikroskopie und -spektroskopie an Halbleiternanostrukturen und Plasmonischen Kristallen



Optische Rasternahfeldmikroskopie und -spektroskopie an Halbleiternanostrukturen und Plasmonischen Kristallen

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

genehmigte

DISSERTATION

von

Diplom-Physiker Heinz Ulrich Pirmin Neuberth
aus Bühl

Tag der mündlichen Prüfung: 12.11.2004
Referent: Prof. Dr. Martin Wegener
Korreferent: Prof. Dr. Thomas Schimmel

Bibliografische Information Der Deutschen Bibliothek

Die Deutsche Bibliothek verzeichnet diese Publikation in der Deutschen Nationalbibliografie; detaillierte bibliografische Daten sind im Internet über <http://dnb.ddb.de> abrufbar.

1. Aufl. - Göttingen : Cuvillier, 2004

Zugl.: Karlsruhe, (TH) Univ., Diss., 2004

ISBN 3-86537-285-6

⊕ CUVILLIER VERLAG, Göttingen 2004

Nonnenstieg 8, 37075 Göttingen

Telefon: 0551-54724-0

Telefax: 0551-54724-21

www.cuvillier.de

Alle Rechte vorbehalten. Ohne ausdrückliche Genehmigung des Verlages ist es nicht gestattet, das Buch oder Teile daraus auf fotomechanischem Weg (Fotokopie, Mikrokopie) zu vervielfältigen.

1. Auflage, 2004

Gedruckt auf säurefreiem Papier

ISBN 3-86537-285-6

Teile dieser Arbeit wurden bereits veröffentlicht:

In Fachzeitschriften:

- U. Neuberth, L. Walter, G. von Freymann, B. Dal Don, H. Kalt, M. Wegener, G. Khitrova, and H. M. Gibbs, *Combining a scanning near-field optical microscope with a picosecond streak camera: Statistical analysis of exciton kinetics in GaAs single-quantum wells*, Appl. Phys. Lett. **80**, 3340 (2002)
- U. Neuberth, L. Walter, G. von Freymann, Th. Schimmel, M. Wegener, G. Khitrova, and H. M. Gibbs, *Spatial autocorrelation analysis of nanophotoluminescence images of single GaAs quantum wells*, Appl. Phys. Lett. **81**, 1881 (2002)

Auf Konferenzen:

- U. Neuberth, M. Deubel, G. von Freymann, M. Wegener, G. Khitrova und H. M. Gibbs, *Räumliche Autokorrelationsanalyse von Nanophotolumineszenzlandkarten*, DPG Jahrestagung Regensburg 2002, Vortrag HL 15.2, Verhandlungen der Deutschen Physikalischen Gesellschaft
- U. Neuberth, G. von Freymann, B. Dal Don, H. Kalt, M. Wegener, G. Khitrova und H. M. Gibbs, *Zeitabhängige Untersuchung einzelner Photolumineszenzlinien ungeordneter GaAs-Quantenfilme*, DPG Jahrestagung Regensburg 2002, Vortrag HL 24.4, Verhandlungen der Deutschen Physikalischen Gesellschaft
- U. Neuberth, M. Deubel, G. von Freymann, M. Wegener, G. Khitrova, and H. M. Gibbs, *Anisotropic exciton transport in single GaAs quantum wells studied by averaged two-dimensional spatial autocorrelation analysis*, 26th International Conference on the Physics of Semiconductors ICPS 2002, Edinburgh, Scotland, UK, Vortrag R4.4
- U. Neuberth, G. von Freymann, M. Wegener, S. Nau und W. Stolz, *Autokorrelations-Spektroskopie von Exzitonen in GaInAs/GaAs-Einzel-Quantenfilmen*, DPG Jahrestagung Dresden 2003, Vortrag HL 35.4, Verhandlungen der Deutschen Physikalischen Gesellschaft
- U. Neuberth, G. von Freymann, M. Wegener, S. Nau, and W. Stolz, *Autocorrelation spectroscopy on single GaInAs/GaAs quantum wells*, Phys. Stat. Sol. B **238**, 498 (2003)
- N. Rau, U. Neuberth, S. Linden, M. Wegener, A. Christ, J. Kuhl, S. Pereira und K. Busch, *Nahfeldtransmissionsspektroskopie an 1-D metallischen Photonischen Kristallen*, DPG Jahrestagung Regensburg 2004, Vortrag HL 8.4, Verhandlungen der Deutschen Physikalischen Gesellschaft
- U. Neuberth, N. Rau, M. Wegener, S. Linden, S. Pereira, K. Busch, A. Christ, and J. Kuhl, *One-dimensional metallic photonic crystal slabs: Near-field optical spectroscopy*, International Symposium on Photonic and Electromagnetic Crystal Structures V PECS-V 2004, Kyoto, Japan, Poster TU-P6
- Ulrich Neuberth, Nicole Rau, Martin Wegener, Stefan Linden, Suresh Pereira, Kurt Busch, Andre Christ, and Jürgen Kuhl, *Near-field transmission spectroscopy of one-dimensional metallic photonic crystal slabs*, International Quantum Electronics Conference CLEO/IQEC 2004, San Francisco, California, USA, Vortrag IThB2

Zusätzlich entstanden während der Promotion die folgenden Veröffentlichungen zu anderen Themen:

In Fachzeitschriften:

- G. von Freymann, U. Neuberth, M. Deubel, M. Wegener, G. Khitrova, and H. M. Gibbs, *Level repulsion in nanophotoluminescence spectra from single GaAs quantum wells*, Phys. Rev. B **65**, 205327 (2002)

Auf Konferenzen:

- G. von Freymann, U. Neuberth, M. Wegener, G. Kithrova und H. M. Gibbs, *Optische Nahfeld-Autokorrelationspektroskopie an GaAs Einzelquantenfilmen*, DPG Jahrestagung Hamburg 2001, Vortrag HL 5.1, Verhandlungen der Deutschen Physikalischen Gesellschaft
- R. Dianoux, B. Dal Don, G. von Freymann, U. Neuberth, E. Kurtz, C. Klingshirn, M. Wegener und H. Kalt, *Kombinierte orts- und zeitaufgelöste Photolumineszenzmessungen mit SNOM und Strekkamera an CdSe/ZnSe Quanteninseln*, DPG Jahrestagung Hamburg 2001, Vortrag HL 16.12, Verhandlungen der Deutschen Physikalischen Gesellschaft
- G. von Freymann, U. Neuberth, and M. Wegener, *Autocorrelation optical near-field spectroscopy of single GaAs quantum wells*, Quantum Electronics and Laser Science Conference QELS 2001, Baltimore, USA, OSA Technical Digest Series (Optical Society of America, Washington, D.C., 2001), S. 37
- G. von Freymann, U. Neuberth, M. Deubel, M. Wegener, G. Khitrova und H. M. Gibbs, *Niveauabstoßung in Nano-Photolumineszenz-Spektren einzelner GaAs Quantenfilme?*, DPG Jahrestagung Regensburg 2002, Vortrag HL 14.2, Verhandlungen der Deutschen Physikalischen Gesellschaft
- G. von Freymann, U. Neuberth, M. Deubel, M. Wegener, G. Khitrova, and H. M. Gibbs, *Level repulsion in nano-photoluminescence spectra from single GaAs quantum wells?*, 26th International Conference on the Physics of Semiconductors ICPS 2002, Edinburgh, Scotland, UK, Poster H134
- B. Dal Don, R. Dianoux, S. Wachter, E. Kurtz, G. von Freymann, U. Neuberth, C. Klingshirn, M. Wegener, and H. Kalt, *Investigations on phonon-assisted relaxation mechanisms in CdSe/ZnSe quantum islands using time-resolved near-field spectroscopy*, Phys. Stat. Sol. A **190**, 533 (2002)
- B. Dal Don, R. Dianoux, S. Wachter, M. Schmidt, E. Kurtz, G. von Freymann, U. Neuberth, C. Klingshirn, M. Wegener, and H. Kalt, *Influence of the quantum island distribution on relaxation of localized excitons in CdSe/ZnSe heterostructures*, Phys. Stat. Sol. B **229**, 463 (2002)

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Grundlagen	5
2.1	Optisches Fern- und Nahfeld	5
2.2	Exzitonen in rauen HL-Quantenfilmen	8
2.2.1	Exzitonen in Halbleitern	8
2.2.2	Bewegung in zwei Dimensionen	10
2.2.3	Unordnung in Quantenfilmen	11
2.3	Photonische Kristalle und Plasmonische Kristalle	14
2.3.1	Photonische Kristalle	15
2.3.2	Wellenleiter und Einkopplung	16
2.3.3	Plasmonen und Oberflächenplasmonen	19
3	Experimenteller Aufbau	25
3.1	Nahfeldsonden	25
3.1.1	Ätzverfahren	26
3.1.2	Apertursonden	29
3.2	Abstandskontrolle	31
3.3	Beleuchtung und Detektion	34
3.4	Aufbau	36
4	Photolumineszenzuntersuchungen an GaAs-Quantenfilmen	41
4.1	Probenaufbau	41
4.2	Zeitaufgelöste Messungen mit der Schmierbildkamera	43
4.2.1	Experiment	43
4.2.2	Diskussion der Ergebnisse	46
4.3	Autokorrelationsmikroskopie an GaAs-Quantenfilmen	49

4.3.1	Räumliche Autokorrelationsanalyse	50
4.3.2	Simulation der PL-Landkarten mit einem einfachen Transportmodell	54
4.4	Zusammenfassung	57
5	Energieniveaustatistik an GaInAs-Quantenfilmen	59
5.1	Probenaufbau	61
5.2	Spektrale Autokorrelationsanalyse	62
5.2.1	Autokorrelationsspektroskopie	63
5.2.2	Diskussion der Ergebnisse	64
5.3	”Blinken“ von Photolumineszenzlinien	68
5.4	Zusammenfassung	72
6	Eindimensionale Plasmonische Kristalle	73
6.1	Herstellung	73
6.2	Probenaufbau und Charakterisierung	75
6.3	Optische Nahfeldspektroskopie und -mikroskopie	79
6.4	Vergleich mit Simulationen	85
6.5	Zusammenfassung	89
7	Zusammenfassung und Ausblick	91
A	Automatische Auswertung der zeitaufgelösten Messungen	95
B	Abkürzungen	97
	Literaturverzeichnis	99
	Danksagung	109

Kapitel 1

Einleitung

Die Nanophotonik ist eine der Schlüsseltechnologien des 21. Jahrhunderts. Ihre Aufgabe ist die Entwicklung von Materialien mit maßgeschneiderten optischen Eigenschaften. Eines der ehrgeizigsten Ziele dieses Forschungsgebietes dürfte vielleicht die Entwicklung eines optischen Computers sein, über dessen Leistungsfähigkeit heutzutage nur spekuliert werden kann. Wesentlich greifbarer sind Anwendungen bei der Datenübertragung, die heute bereits zu einem beträchtlichen Teil über Lichtsignale erfolgt. Dass die Nanophotonik nicht nur eine abstrakte Zukunftsvision ist, sieht man daran, dass bereits heute schon zahlreiche Anwendungen existieren, die man zu diesem Gebiet zählen kann: Sei es die neuere Entwicklung von Quantenpunktlasern, bei denen die optischen Eigenschaften von Halbleiternanostrukturen gezielt eingesetzt werden, oder Antireflexbeschichtungen, wie sie schon seit Jahren für Brillengläser und viele andere optische Instrumente verwendet wurden, lange bevor der Ausdruck "Photonischer Kristall" geprägt wurde. Ein anderes Beispiel sind farbige Kirchenfenster, die schon vor Jahrhunderten durch Zugabe kleiner Goldmengen zum Glas hergestellt wurden, ohne dass Begriffe wie Nanophotonik oder Plasmonik dafür gebraucht wurden. Aber erst das fundamentale Verständnis der plasmonischen Anregungen, die dem Glas die Farbe verleihen, ermöglichte deren gezielte Anwendung in anderen Bereichen, wie beispielsweise der oberflächenverstärkten Raman-Streuung oder den in dieser Arbeit untersuchten Plasmonischen Kristallen.

Die Nanophotonik befasst sich ganz allgemein mit den Eigenschaften des Lichts auf einer Größenskala, die kleiner als die Lichtwellenlänge ist. Dabei spielt die Ankopplung des Lichts an elementare Anregungen eine Rolle, die sowohl von elektronischer als auch photonischer Natur sein können. Bei den relevanten Strukturgrößen spielen nicht mehr nur propagierende Wellen eine Rolle, wie es in der Fernfeldoptik der Fall ist. Vielmehr müssen auch die evaneszenten Moden des elektromagnetischen Feldes berücksichtigt werden, die dabei von großer, wenn nicht sogar überragender, Bedeutung sind.

Durch die gezielte Strukturierung und die damit verbundene Beeinflussung des Lichts im mikroskopischen Bereich lassen sich Materialien erzeugen, die im makroskopischen Bereich völlig neue Eigenschaften aufweisen, welche bei homogenen Materialien undenkbar wären. Ein Beispiel dafür sind Metamaterialien, die häufig im Zusammenhang mit der Erzeugung einer negativen Brechzahl für Licht diskutiert werden und in letzter Zeit für Furore sorgten [1]. Die damit verbundenen völlig neuen Anwendungsmöglichkeiten und die Aussicht, diese vielleicht bald für sichtbares Licht herstellen zu können, sorgen für ein großes Interesse. Ein weiteres sehr promi-

ntes Beispiel sind Photonische Kristalle, bei denen durch gezielte periodische Anordnung von dielektrischen Materialien eine photonische Bandlücke entsteht, ähnlich der elektronischen Bandlücke in Halbleitern. Die Erwartungen an die Photonischen Kristalle sind damit denkbar hoch in Anbetracht des enormen Erfolgs der Halbleitertechnologie.

Die optischen Eigenschaften elementarer Anregungen von nanoskaligen Strukturen äußern sich nicht nur in der räumlichen Verteilung des elektromagnetischen Feldes auf nanoskopischer Ebene, sondern auch in der energetischen Verteilung. Es ist also eine Kombination aus hochauflösender Mikroskopie und Spektroskopie erforderlich, um ein möglichst vollständiges Bild dieser Eigenschaften zu erhalten. Ein geeignetes Instrument zur Erlangung einer hohen räumlichen Auflösung stellt ein optisches Rasternahfeldmikroskop (SNOM – scanning near-field optical microscope) dar. Durch die Kombination mit einem hochempfindlichen Spektrometer lässt sich dabei gleichzeitig auch die energetische Verteilung des Lichts an jedem Punkt der Probe untersuchen. Eine besondere Herausforderung stellen Nahfeldmessungen bei tiefen Temperaturen dar. Obwohl für eine sinnvolle Anwendung im Alltag fast nur Technologien interessant sind, die auch bei Raumtemperatur betrieben werden können, ist es für das grundlegende Verständnis und die Entwicklung solcher Technologie oft unumgänglich, das Verhalten bei tiefen Temperaturen zu studieren. Um Nahfelduntersuchungen unter solchen Bedingungen durchzuführen, müssen deshalb die Probe und die Sonde in ein Isolationsvakuum gebracht werden. Nicht ohne Grund sind wir stolz darauf, dies in einem vergleichsweise sehr kompakten Aufbau in unserer Arbeitsgruppe realisiert zu haben und das in einer Form, die eine routinemäßige Arbeit ermöglicht, die im Bereich der Nahfeldmikroskopie immernoch eine Seltenheit darstellt. Dies schlägt sich in der Fülle und Vielfalt der in dieser Arbeit gezeigten Ergebnisse nieder.

Nanoskalige Strukturen entstehen nicht nur durch gezielte Strukturierung und sind auch nicht immer erwünscht. Bei der Herstellung von Halbleiterstrukturen in der Mikroelektronik ist es essentiell, dass die kleinen Strukturen der Schaltkreise möglichst perfekt sind. Aber trotz höchster Reinheit der erzeugten Halbleiterheterostrukturen lassen sich ungewollte Störungen der Periodizität nicht vermeiden. Diese Störungen, die beispielsweise durch Legierungsfluktuationen aber auch durch statistische Dickenfluktuationen entstehen, was bei der Herstellung von Halbleiterfilmen unvermeidlich ist, äußern sich in Form eines Unordnungspotentials für die Ladungsträger. Da man diese Unordnung auf einer nanoskaligen Ebene nicht vermeiden kann, ist es von großem Interesse, ihre Auswirkungen zu kennen, so dass diese vielleicht sogar nutzbringend eingesetzt werden können. Ein großer Teil dieser Arbeit (Kapitel 4 und 5) besteht aus der Untersuchung der exzitonischen Photolumineszenz in rauen Halbleiterquantenfilmen. Die nanoskalige Rauigkeit dieser Strukturen führt dabei zur Bildung eines Unordnungspotentials für Exzitonen. Um das Verhalten der Exzitonen in so einem Unordnungspotential besser zu verstehen ist es wichtig, sowohl die räumliche als auch die spektrale und temporale Populationsverteilung der Exzitonenzustände zu untersuchen. Da sich Effekte aufgrund von Unordnung von Natur aus schlecht an einzelnen Messungen diskutieren lassen, sind statistische Auswertungsmethoden notwendig, die hier sowohl bei der Untersuchung der zeitlichen Entwicklung als auch der räumlichen und spektralen Verteilung der Photolumineszenz zur Anwendung kommen. Als sehr hilfreiches Mittel erweist sich dabei die Autokorrelationsfunktion, die hier sowohl in der Autokorrelationsmikroskopie als auch in der Autokorrelationspektroskopie zum Einsatz kommt, um die Daten auf eine überschaubare Größe zu reduzieren.

Anders liegt der Fall bei der Untersuchung der Plasmonischen Kristalle in Kapitel 6. Aufgrund

der geordneten Struktur können die Messungen auf eine Gitterperiode beschränkt werden und auf sehr direkte Weise dargestellt werden. Das Interesse an diesen Strukturen entspringt aus dem Wechselspiel zweier sehr unterschiedlicher Resonanzen: Einer photonischen Resonanz, die spektral sehr schmal und stark delokalisiert ist, und einer elektronischen Resonanz, die spektral sehr breit und an den Metallstrukturen lokalisiert ist. Hier ist ein komplexes Verhalten sowohl der räumlichen als auch der energetischen Intensitätsverteilung zu erwarten. Bisherige Nahfelduntersuchungen an Metallstrukturen beschränken sich meist auf die Untersuchung weniger ausgewählter Wellenlängen. Dies kommt daher, dass aufgrund der evaneszenten Natur der Nahfelder oft hohe Intensitäten benötigt werden, um vernünftige Resultate in den Messungen zu erzielen. Daher werden typischerweise zur Anregung spektral schmalen Laserlinien verwendet. Wie bei der Untersuchung der Plasmonischen Kristalle in Kapitel 6 zu sehen sein wird, würde dies eine starke Einschränkung bei der Untersuchung der komplexen spektralen und mikroskopischen Eigenschaften dieser Strukturen darstellen. Daher wurde für diese Arbeit eine Glühlampe als breitbandige Lichtquelle verwendet, die es erlaubt, das gesamte spektrale Verhalten an jedem Ort in einem Schritt aufzunehmen. Vergleichbare Messungen werden nur selten in der Literatur beschrieben, da die spektrale Intensität solcher Lichtquellen um viele Größenordnungen kleiner ist als die eines Lasers. Daher existieren bis heute nur wenige Arbeiten, bei denen Messungen von vollständigen Transmissionsspektren mit der lateralen Auflösung eines SNOMs realisiert wurden.

Die Arbeit ist folgendermaßen gegliedert: In Kapitel 2 werden einige Grundlagen zur Untersuchungsmethode, den untersuchten rauen Halbleiterquantenfilmen und den Plasmonischen Kristallen näher erläutert. Details zum experimentellen Aufbau werden in Kapitel 3 gezeigt. Dabei wird auf die Herstellung der Sonden, den kontrollierten Umgang mit diesen sowie auf die Messung eines optischen Signals eingegangen und gezeigt, wie diese zu einer Einheit zusammengesetzt sind. Kapitel 4 und 5 beschäftigen sich mit der Untersuchung der optischen Eigenschaften von Exzitonen in ungeordneten rauen Halbleiterquantenfilmen. Kapitel 6 widmet sich der Untersuchung der Photonischen Wellenfunktion von eindimensionalen Plasmonischen Kristallen. Zum Schluss bietet Kapitel 7 eine kurze Zusammenfassung der Arbeit und einen Ausblick auf mögliche künftige Projekte.

Kapitel 2

Grundlagen

In diesem Kapitel sollen die Grundlagen für die hier vorgestellte Arbeit nähergebracht werden. Da die Arbeit recht vielfältig ist, sowohl was die Untersuchungsmethoden als auch die untersuchten Proben betrifft, wird in den einzelnen Unterkapiteln versucht, einen Überblick über das jeweilige Thema zu geben, ohne zu sehr auf Details einzugehen.

Zunächst sollen die Begriffe Fernfeld und Nahfeld geklärt werden und damit auch die Notwendigkeit der Nahfeldoptik, um hohe optische Auflösungen zu erreichen. Danach soll eine Basis geschaffen werden, um die in Kapitel 4 beschriebenen Experimente besser zu verstehen. Zum Schluss werden noch einige Aspekte der in Kapitel 6 untersuchten Plasmonischen Kristalle betrachtet.

2.1 Optisches Fern- und Nahfeld

Die optische Rasternahfeldmikroskopie ist inzwischen zu einem wichtigen und durchaus verbreiteten Instrument zur optischen Untersuchung von oberflächennahen Strukturen geworden. Trotzdem ist sie im Vergleich zu anderen Rastersondentechniken eher unbekannt und bevor man jemandem erklären kann, was man denn mit so einem Instrument messen möchte, muss meist erst geklärt werden, was der Begriff Nahfeld bedeutet bzw. was denn die Auflösung der konventionellen Mikroskopie begrenzt.

Fernfeldoptik

Will man das Auflösungsvermögen eines abbildenden Systems bestimmen, stößt man schon bei der Definition des Wortes Auflösungsvermögen auf das erste Hindernis. Abbé [2] beschreibt z.B. die **kohärente** Beleuchtung eines Doppelspaltes und gibt an, dass das erste Minimum des Beugungsbildes noch auf die Linse treffen muss, um das abgebildete Gitter noch als solches erkennen zu können. Dies führt zum Abbé-Kriterium mit der Auflösungsgrenze

$$g = \frac{\lambda}{NA}. \quad (2.1)$$