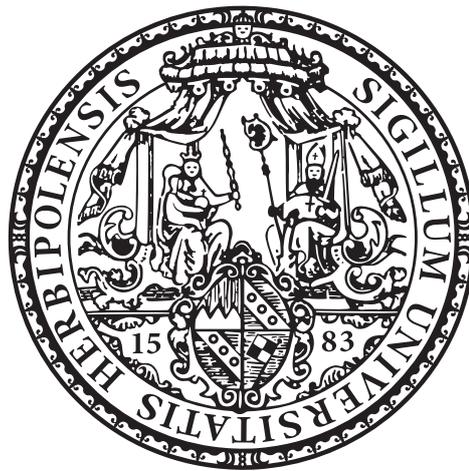


Implementierung und Charakterisierung von Einzelphotonenquellen in zweidimensionalen Übergangsmetall-Dichalkogeniden und deren Kopplung an optische Resonatoren

Dissertation zur Erlangung des
naturwissenschaftlichen Doktorgrades der
Julius-Maximilians-Universität Würzburg



vorgelegt von

Oliver Iff

aus Würzburg

Würzburg 2022



Eingereicht am:

bei der Fakultät für Physik und Astronomie

1. Gutachter: Prof. Dr. Christian Schneider
2. Gutachter: Prof. Dr. Bert Hecht
3. Gutachter:
der Dissertation

Vorsitzender: Prof. Dr. Karl Brunner

1. Prüfer: Prof. Dr. Christian Schneider
2. Prüfer: Prof. Dr. Bert Hecht
3. Prüfer: Prof. Dr. Giorgio Sangiovanni
im Promotionskolloquium

Tag des Promotionskolloquiums: 22.07.2022

Doktorurkunde ausgehändigt am:

Inhaltsverzeichnis

Zusammenfassung	1
Summary	5
1 Einleitung	9
2 Grundlagen	13
2.1 Grundlagen der Übergangsmetall-Dichalkogenide	13
2.1.1 Kristallstruktur	14
2.1.2 Optoelektronische Eigenschaften	15
2.1.3 Einzelphotonenquellen in Monolagen	24
2.2 Plasmonik	29
2.2.1 Grundlagen	30
2.2.2 Einfluss lokalisierter Plasmonen auf Quantenemitter	33
2.3 Grundlagen zirkularer Bragg-Gitter	35
2.4 Photonenstatistik und Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung	38
3 Experimentelle Techniken	41
3.1 Exfolierung und Transfer von Monolagen	41
3.2 Mikrophotolumineszenzspektroskopie	45
3.3 Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung und Lebenszeit	48
4 Probenprozessierung	51
4.1 Zirkulare Bragg-Gitter-Membranen basierend auf InGaP	51
4.2 Zirkulare Bragg-Gitter-Membranen basierend auf AlGaAs	54
4.3 Nanometerpräzise Materialabscheidung mittels Elektronenstrahl	56
5 Optische Grundcharakterisierung von WSe₂-Monolagen	59
5.1 Grundlagen der freien Exzitonen	60
5.2 Einzelphotonenquellen	63

5.3	Zusammenfassung	67
6	Einfluss von piezoelektrischer Verspannung auf Quantenemitter in WSe₂-Monolagen	69
6.1	Einleitung	70
6.2	Probenaufbau und piezoelektrisches Prinzip	71
6.3	Optische Charakterisierung und Einfluss der Piezo-Verspannung	73
6.4	Diskussion des Verspannungsfeldes	76
6.5	Zusammenfassung	78
7	Kopplung von Einzelphotonenquellen in WSe₂-Monolagen an Metallstrukturen	81
7.1	Verstärkung der spontanen Emission an Silbrenanostrukturen	82
7.1.1	Probenaufbau und optische Charakterisierung	83
7.1.2	Diskussion des Einzelphotonencharakters und der Lebensdauer	86
7.1.3	Simulation der Probenstruktur	90
7.1.4	Zusammenfassung	93
7.2	Kopplung verspannungsinduzierter Quantenemitter an Goldnanotürmchen	95
7.2.1	Probenstruktur und -herstellung	95
7.2.2	Optische Charakterisierung und Einfluss der Verspannung	97
7.2.3	Einfluss der Nanotürmchen auf die Polarisierung der Quantenemitter	100
7.2.4	Simulation der Nanotürmchen	101
7.2.5	Zusammenfassung	103
8	Kopplung einer WSe₂-Monolage an frei hängende, zirkulare Bragg-Gitter	105
8.1	Einleitung	106
8.2	Probenstruktur	106
8.3	Optische Charakterisierung mittels Quantenpunkten und Transfer	108
8.4	Kopplung einer WSe ₂ -Monolage an ein zirkulares Bragg-Gitter	110
8.5	Zusammenfassung	115
9	Kopplung von Einzelphotonenquellen in einer WSe₂-Monolage an zirkulare Bragg-Gitter	117
9.1	Einleitung	118
9.2	Design und Simulation der zirkularen Bragg-Gitter	119

9.3	Variation der Kavitätsparameter der zirkularen Bragg-Gitter	123
9.4	Einfluss der Kavität auf eine WSe ₂ -Monolage	125
9.5	Lebenszeitverkürzung von Einzelphotonenquellen durch schwache Kopplung	128
9.6	Zusammenfassung	130
Danksagung		137
A Anhang		139
A.1	Finite-Difference Time-Domain-Simulation	139
A.2	Unterätzen der frei hängenden Membranen	141
A.3	Piezoelektrische Parameter	142
A.4	Rasterkraftmikroskopmessungen einer Monolagenfalte	143
A.5	Einfluss der Geometrie auf das Vorzeichen der Energieänderung	144
A.6	Simulation des elektrischen Feldes einer frei hängenden Membran . . .	147
A.7	Auswertung der freien Emission einer WSe ₂ -Monolage auf einem zirkularen Bragg-Gitter	148
A.8	Simulierte Abstrahlcharakteristik eines zirkularen Bragg-Gitters für verschiedene Dipolpositionen	148
A.9	Simulation der Reflektivität eines zirkularen Bragg-Gitters	149
A.10	Leistungsserien von Quantenemittern auf einem zirkularen Bragg-Gitter	151
Literaturverzeichnis		153

Zusammenfassung

Schon heute bilden Einzelphotonenquellen einen wichtigen Baustein in der Photonik und Quanteninformation. Der Fokus der Forschung liegt entsprechend auf dem Finden und Charakterisieren dafür geeigneter Materialsysteme. Konkret beschäftigt sich die vorliegende Arbeit vorwiegend mit dem Übergangsmetall-Dichalkogenid (TMDC¹) Wolframdiselenid und seinen Eigenschaften. Diese Wahl ist durch den direkte Zugang zu Einzelphotonenquellen begründet, die sich in dessen Monolagen ausbilden können. Diese Lichtquellen können über eine Modulation der Verspannung der Monolage gezielt aktiviert werden. Durch die, verglichen mit ihrem Volumen, riesige Kontaktfläche lassen sich Monolagen zudem mit Hilfe des Substrats, auf das sie transferiert wurden, wesentlich beeinflussen. Im Rahmen dieser Arbeit wurden Monolagen von WSe₂ in unterschiedlichen Bauteilen wie zirkulare Bragg-Gittern oder vorstrukturierten, metallischen Oberflächen implementiert und die Photolumineszenz des TMDCs untersucht. Entsprechend konnte in dieser Arbeit gezeigt werden, dass sich in einer WSe₂-Monolage bei Raumtemperatur freie Exzitonen mit einer Energie von 1,67 eV (750 nm) bilden. Mit Abnahme der Temperatur entstehen weitere Emissionen wie das Trion und typische, breitbandige Defektzustände bei niedrigeren Energien. In einer Monolage ließen sich zudem bei 4 K und niedrigen Anregungsleistungen zufällig verteilte Quantenemitter detektieren, die mit Linienbreiten von wenigen Hundert Elektronenvolt eine ganze Größenordnung schmäler als die zuvor erwähnten Defektzustände ausfallen. Diese Emitter liegen üblicherweise im Bereich von 1,55 eV - 1,71 eV (720 nm - 800 nm). Zusätzlich belegen Autokorrelationsmessungen zweiter Ordnung mit Werten von $g^{(2)}(0) < 0,5$ zweifelsfrei den Einzelphotonencharakter. Die Dipole besitzen eine lineare Polarisation, deren Ausrichtung zufällig verteilt war.

Befindet sich eine Monolage auf einem Piezoelement, so überträgt sich dessen Verspannung beim Anlegen eines elektrischen Feldes direkt auf das TMDC. Hierüber wiederum kommt es zu einer Änderung des Einschlusspotentials der Quantenemitter, die Kontrolle über deren Energie erlaubt. Im Rahmen dieser Arbeit führte dieser

¹engl.: transition metal dichalcogenide

Aufbau zu einer linear reversiblen Ab- oder Zunahme der Emissionsenergie von über 10 meV bei E-Feldern von 20 keV/cm. Wichtig hierbei ist, dass die sonstigen optischen Eigenschaften wie etwa die Intensität, Polarisation oder Linienbreite erhalten blieben. Der Einzelphotonencharakter eines Emitters erfuhr ebenso keine Änderung, wodurch die Kombination der Monolage mit einem Piezo eine direkte Durchstimbarkeit des Emitters mit einer Rate von 6 $\mu\text{eV}/\text{V}$ erlaubt.

Neben der Energie ist auch die Kontrolle über die Lebenszeit oder der Polarisation der Lichtquellen erstrebenswert. Hierfür wurden Monolagen auf eine Metalloberfläche transferiert, um die Interaktion der Quantenemitter mit den Oberflächenplasmon-Polaritonen des Metalls zu ermöglichen. Auf der Oberfläche platzierte Nanopartikel förderten durch Verspannung die Entstehung von Einzelphotonenquellen. Die optische Zustandsdichte wurde durch die hohen Felder der in den Partikeln lokalisierten Plasmonen erhöht, was sich wiederum mit dem Purcell-Effekt in einer verkürzten Lebensdauer widerspiegelt. Dies wird durch FDTD²-Simulationen verschiedener Partikelgeometrien gestützt, die eine Verstärkung der Emitteremission vorhersagen. Entsprechend konnten zwei unterschiedlich schnelle Gruppen von Lebenszeiten festgestellt werden. Die langsame Gruppe liegt in dem für ungekoppelte Quantenemitter üblichen Bereich von etwa 5 ns. Demgegenüber zeigten alle Emitter der schnellen Gruppe Lebensdauern, die mit weniger als 500 ps um eine ganze Größenordnung kürzer ausfallen. Wurde die Monolage weiterhin über rechteckigen Goldnanotürmchen (< 200 nm Kantenlänge) gelegt, so ergibt sich eine Korrelation zwischen der Polarisationsrichtung der Emitter und der Orientierung der Rechtecke. Die Polarisation folgt der Ausrichtung der Nanostruktur, an der der jeweilige Emitter entstanden, wie es von FDTD-Simulationen erwartet wurde.

Für die Kopplung der Quantenemitter bieten optische Kavitäten eine Alternative zu plasmonischen Strukturen, die unter anderem mit ohmschen Verlusten behaftet sind. Im Rahmen dieser Arbeit kam das zirkulare Bragg-Gitter zum Einsatz, das aus konzentrischen Gräben in einer 100 nm bis 300 nm dünnen Membran bestand. Durch diese Struktur kann die Emission eines im Zentrum platzierten Dipols effizienter eingesammelt sowie die Zerfallsrate mittels des Purcell-Effekts beschleunigt werden. Dies zeigte sich bei einer frei hängenden Membran, bei der die Intensität der Photolumineszenz im Zentrum des Bragg-Gitters um mehr als den Faktor 3 erhöht wurde. Zudem können die Membranen selbst auch transferiert werden. In einem anderen Verfahren wurde eine Membran fest mit einem Zielsubstrat verklebt, in dem

²engl.: finite-difference time-domain

ein Goldspiegel integriert war. Zusätzlich wurde in die Mitte des Bragg-Gitters ein dielektrisches Nanotürmchen mit einer Höhe von etwa 200 nm gesetzt. Das Türmchen stellt für eine darauf transferierte Monolage ein Verspannungszentrum dar. Somit können dort Quantenemitter entstehen, die dann wiederum sehr gut an die Kavität koppeln können. Aus einer Statistik von 18 Quantenemittern, die im Bereich der Bragg-Gitter gemessen wurden, wird ersichtlich, dass die Lebenszeit umso kürzer wurde, je näher der Emitter am Kavitätszentrum liegt. So besaßen solche im Zentrum eine durchschnittliche Lebenszeit von $(1,0 \pm 0,3)$ ns, wohingegen solche außerhalb auf $(5,2 \pm 1,9)$ ns kamen. Hieraus ergibt sich ein geschätzter Purcell-Faktor von 5.

Diese Arbeit belegt somit die Möglichkeit, Einzelphotonenquellen basierend auf WSe_2 -Monolagen auf verschiedenste Weise modulieren zu können. Dank ihrer zweidimensionalen Geometrie lassen sie sich einfach in bestehende Strukturen integrieren oder auch in der Zukunft mit weiteren 2D-Materialien kombinieren.

Summary

Single photon sources are an important building block in today's photonics and quantum information. This is the reason why a big focus lies on the exploration of new, suitable material systems. Specifically, the work in hand mainly discusses the transition metal dichalcogenide (TMDC) tungsten diselenide and its properties. The reason for this is the easy access to single photon sources, which can be found in WSe₂ monolayers. These can deterministically be activated by utilizing strain. As the interface between a transferred monolayer and its underlying substrate is huge compared to its volume, the substrate itself always has a big impact on the TMDC. In scope of this work, WSe₂ monolayers were transferred on several devices like circular Bragg gratings or structured metal surfaces in order to investigate the optical response of the TMDC. As shown in this thesis, the photoluminescence of a WSe₂ monolayer at room temperature is dominated by the free exciton at 1.67 eV (750 nm). With decreasing temperature, the formation of additional features begins, such as the trion and typical defect related states. At 4 K, an exfoliated monolayer exhibits quantum emitters, which have linewidths down to a few hundred electronvolt, distinctively smaller than the aforementioned defect related states. The energy of these emitters usually range from 1.55 eV - 1.71 eV (720 nm - 800 nm) and are well described by a two-level system. Additionally, second-order autocorrelation measurements confirm the single photon character clearly ($g^{(2)}(0) < 0.5$). The optical quality of the sources usually varies throughout a monolayer. In general, they are linearly polarized, with the exact orientation and energy being random.

One way to take control over these properties is to place it on a piezoelectric actuator. By applying an electric field, the strain of the piezo is directly transferred to the monolayer. This again changes the energy of the quantum emitter. A reversible change of more than 10 meV has been observed in this work, when applying a field of 20 kV/cm. Importantly, the other optical properties like intensity, polarization or linewidths stay nearly constant. This technique allows to reliably tune the energy of an emitter with a rate of 6 μ eV/V. Furthermore, the purity of the single photon

character does not change.

Besides the tuning of the energy, the control over the lifetimes and the polarisation of any emitter is also highly desirable. To achieve this in this work, a monolayer was transferred onto a metallic substrate, which again allows the coupling between randomly appearing quantum emitters and the plasmon polaritons of the metal. By utilizing a rough surface, randomly formed nano structures on top of it act as strain seeds for quantum emitters. The optical density of states gets greatly enhanced by the high electric fields, which are generated by the localized plasmons in the nano particles. This leads to a reduction in the lifetimes of the according states due to the Purcell effect, which is supported by several FDTD simulations of different nano structure geometries. Measurements show the existence of two groups of lifetimes. On the one hand, the slower one is in the range of 5 ns, typical for uncoupled quantum emitters. On the other hand, the faster group displays lifetimes shorter than 500 ps. Combining the emitters with rectangular gold nano pillars (< 200 nm edge length) confirms a correlation between the emitter's polarization and the orientation of the rectangles. The polarization follows the long axis of a given rectangular pillar, as suggested by FDTD simulations.

Optical cavities present a good alternative to the plasmonic approach, which can suffer from ohmic losses. Here, coupling of a monolayer to a circular Bragg grating was chosen. It consisted of several concentric rings etched into a 100 nm - 300 nm dielectric membrane. This enables an efficient collection of the outgoing light, increasing the overall efficiency of the device and a shortening of the lifetimes of the involved emitters described by the Purcell effect. For example, combining a monolayer with a free hanging membrane – which can also be transferred by itself – increased the photoluminescence from its center by a factor of up to 3. In another process, a membrane was glued onto a substrate with an integrated gold mirror. Additionally, a dielectric nano pillar (about 200 nm height) was placed directly into the center of the structure. It acts as a strain center for the monolayer, which was located on top of it. This increases the likelihood of quantum emitters in the center, the ideal place for coupling to the cavity. Measuring 18 individual emitters in the region of a Bragg grating showed a decrease in the lifetimes the closer the emitter is to the center of the cavity. Quantitatively, the fast photon sources exhibit an average lifetime of (1.0 ± 0.3) ns, whereas the ones far off the grating display (5.2 ± 1.9) ns. This leads to an estimated Purcell factor of about 5.

This work therefore proves the concept of modulating single photon sources based on

WSe₂ monolayers in many different ways. Thanks to their two-dimensional nature, monolayers of TMDCs can easily be integrated in existing devices and combined with other 2D materials in the future.

1 Einleitung

Die Entdeckung neuartiger Materialien hat den Verlauf der Menschheitsgeschichte schon oft massiv beeinflusst. Tatsächlich ist die Bedeutung für den technologischen Fortschritt einer Kultur so groß, dass ganze Zeitalter nach den dominierenden Werkstoffen wie etwa Bronze oder Eisen benannt sind. Die heutigen Wolkenkratzer und viele weitere Bauwerke der Moderne wären ohne Stahl undenkbar. Ebenso ist der Einsatz von Kunststoffen in unserem alltäglichen Leben nicht mehr wegzudenken. Kombiniert man diese Entwicklung nun mit den neusten Erkenntnissen der physikalischen Grundlagenforschung, so öffnen sich ganz neue Wege, die Umwelt nach den eigenen Wünschen zu gestalten. Das bisher beeindruckendste Beispiel hierfür ist zweifelsfrei die Beschreibung von Halbleitern im Rahmen der Festkörperphysik und deren Bedeutung für die digitale Revolution der vergangenen Jahrzehnte. Der wichtigste Baustein dabei ist der Transistor, der zur Steuerung von Strömen eingesetzt wird und in integrierten Schaltungen den Weg zu den heute allgegenwärtigen Mikrochips ebnete. Unerlässlich für die Umsetzung war jedoch die einsetzende Miniaturisierung und kostengünstige Herstellung basierend auf dem Halbleiter Silizium. Dessen Siegeszug läutete das Siliziumzeitalter ein, das die Informationstechnologie und den Alltag seitdem in ungeahntem Ausmaß bestimmt. Allerdings ist fraglich, wie lange diese Entwicklung noch anhalten kann, da bestehende Konzepte zunehmend an das Limit der Miniaturisierung stoßen. Der stetig steigende Energiehunger bei der Herstellung sowie das ungehemmte Wachstum der benötigten Infrastruktur [And15, Lu18] erzwingen die Verwendung anderer Werkstoffe und die Umsetzung alternativer Ansätze, weswegen die Suche nach neuen Materialsystemen unerlässlich ist.

So wurde zum Beispiel mit der Entdeckung von Graphen 2004 durch Novoselov und Geim das Tor zur Erforschung zweidimensionaler Materialien aufgestoßen [Nov04, Nov05]. Deren Arbeiten belegen den großen Einfluss, den die reduzierte Dimensionalität, verglichen mit dem Volumenmaterial Graphit, auf die Physik einer Monolage Graphen besitzt. Da Letzteres allerdings keine direkte Bandlücke aufweist [Cas09], gestaltet sich sein Einsatz als Halbleiter schwierig. Motiviert durch diese Entwicklung

begann die Suche nach weiteren Materialien, die in ihrer 2D-Form neue Eigenschaften bieten können. Die bislang größte Gruppe stellen die halbleiterartigen Übergangsmetall-Dichalkogenide (TMDCs¹) dar, die aus vielen, durch schwache Van-der-Waals-Kräfte gebundenen Monolagen bestehen. Mit der ersten veröffentlichten optischen Messungen einer Molybdänsulfid-Monolage im Jahr 2010 [Mak10] zeigte sich eine direkte optische Bandlücke, woraufhin in vielen weiteren TMDCs das gleiche Verhalten beobachtet werden konnte. Dies ermöglicht zum Beispiel den Einsatz in Transistoren [Rad11, Yin12] oder Dioden [Wit15], wodurch aber nur ein Bruchteil der neuen Möglichkeiten ausgenutzt wird. Beflügelt wurde diese Entwicklung durch die unkomplizierte Präparation einer Monolage mittels der mechanischen Exfolierung, bei der TMDCs bis auf einzelne Monolagen ausgedünnt werden. Ebenso ist deren einfache Integration in bestehende Strukturen ein wichtiger Grund, warum das Feld der 2D-Materialien in den letzten Jahren rasant gewachsen ist. TMDCs verfügen dank der schweren Übergangsmetall-Atome über eine ausgeprägte Spin-Bahn-Kopplung, die zusammen mit der in Monolagen gebrochenen Inversionssymmetrie zu einer Aufspaltung der Valenz- und Leitungsbänder führt. Darüber hinaus besitzen TMDCs den neuen Tal-Freiheitsgrad, bei dem die energetisch entarteten K-Punkte mit unterschiedlichen Spins besetzt sind. Dadurch können die TMDCs in der Spintronik [Kol16], Polaritonik [Lun16b] oder der Valleytronik² [Sch16] verwendet werden. Die zweidimensionale Struktur ermöglicht die direkte Kombination verschiedener Monolagen nach dem Baukastenprinzip. Unterschiedliche TMDCs und weitere 2D-Materialien wie Graphen oder Bornitrid lassen sich beliebig zu neuen Heterostrukturen stapeln. Diese Strukturen wiederum können den eigenen Wünschen nach geätzt und mit Kontakten versehen werden [Yu14, Cui15, Epp18], wobei die Verkapselung mit Bornitrid zu einer signifikanten Steigerung der optischen Qualität führen kann [Cad17]. Dies eröffnet unter anderem Zugang zu exzitonischen Anregungen [Koś13, Wit15] und Moiré-Potentialen [Kan13, Jin18, Zhu18, Zha18, Ale19]. Bei Letzteren entstehen durch das Überlagern zweier Monolagen neue periodische Übergitter, die vom Drehwinkel zwischen den Lagen abhängen.

Neben diesen Anwendungen zeigte sich auch, dass vor allem in WSe₂-Monolagen viele Einzelphotonenquellen zu finden sind [He15, Kum15, Ton15, Sri15, Kop15], die für den Einsatz in der Quantenphotonik in Frage kommen. Solche Lichtquellen stellen einen wichtigen Baustein in der Quantenkommunikation dar [Kim99, Kok07, Pan12,

¹engl.: transition metal dichalcogenides

²engl.: Tal+Elektronik, angelehnt an Spintronik

Kre14, Wan16], die unter anderem eine abhörsichere Übertragung von Informationen basierend auf einzelnen Quantenbits ermöglicht [Ben84]. Essentiell hierfür ist, dass einzelne Photonen mit hoher Zuverlässigkeit hinsichtlich ihrer Polarisation generiert werden und miteinander interferieren können. Die Entwicklung effizienter und zuverlässiger Einzelphotonenquellen bildet somit eine wichtige Säule für die technologische Entwicklung der nahen Zukunft. Entsprechende Lichtquellen wurden bereits auf Basis verschiedener Festkörpersysteme wie Quantenpunkten [Low96, Xin96, Mic00, Pen00] oder Diamantfehlstellen [Kur00] realisiert. Diese Umsetzungen zählen zwar zu den technisch ausgereiftesten Lösungen [He17, Bal08, Van09], stellen aber hinsichtlich ihrer Skalierbarkeit und ihres Herstellungsprozesses noch ungelöste Anforderungen und bleiben bisher auf wenige Forschungsgruppen weltweit beschränkt. Demgegenüber bieten TMDC-basierte Einzelphotonenquellen dank ihrer kostengünstigen Herstellung und der einfachen Integration in bereits erprobte optoelektronische Bauteile eine geringe Einstiegsschwelle. Das Einsatzgebiet liegt je nach gewählten Material im nahen Infrarotbereich (600 - 800 nm). Bemerkenswerterweise können die Einzelphotonenquellen gezielt auf wenige Hundert Nanometer beschränkt generiert werden. Hierfür werden die Verspannung der Monolage durch Nanostrukturen [PB17, Luo18] oder auch induzierte Defektstellen [Kle19] ausgenutzt, die beide zu einem lokalen Potentialeinschluss von geladenen Teilchen führen. Durch die geringe Dicke einer Monolage von nur wenigen Ångström besitzt die Umgebung großen Einfluss auf die Charakteristiken der Emitter. So lassen sich unter anderem Licht-Materie-Wechselwirkungen mit plasmonischen Strukturen [Cai17, Cai18] und photonischen Kavitäten verwirklichen. Einige dieser Ansätze werden in dieser Arbeit verfolgt, um die Eigenschaften der Einzelphotonenquelle den eigenen Wünschen nach anpassen zu können.

In den folgenden Kapiteln werden zunächst die wichtigsten theoretischen Grundlagen dargelegt, die zum Verständnis der gezeigten Experimente benötigt werden. Der Schwerpunkt liegt dabei auf der Physik der WSe₂-Monolagen und deren Besonderheiten gegenüber herkömmlichen Halbleitern. Weiterhin werden die Plasmonik und die Theorie hinter zirkularen Bragg-Gittern erörtert, die beide als optische Resonatoren Anwendung finden. Danach bieten Kapitel 3 und 4 einen ausführlichen Einblick in die verwendeten Messaufbauten sowie Herstellungsprozesse. Letztere stellen dabei das Ergebnis vieler Iterationen dar, die am Ende in einer Kombination aus einer Monolage, optischen Kavität und nachträglich platzierten Nanostrukturen resultieren. Kapitel 5 beschreibt die grundlegenden optischen Eigenschaften einer WSe₂-Monolage unter verschiedenen Bedingungen und liefert einen guten Einblick in deren Charakteristika.

Alle weiteren Kapitel befassen sich mit der konkreten Anpassung der Eigenschaften von Einzelphotonenquellen in WSe_2 mittels Piezoelementen, metallischen Nanostrukturen oder zirkularen Bragg-Gittern. Damit trägt diese Arbeit einen Teil dazu bei, möglicherweise ein neues Zeitalter einzuläuten – das der 2D-Materialien.

2 Theoretische Grundlagen

Zu Beginn sollen die zum Verständnis der vorliegenden Arbeit benötigten physikalischen Grundlagen kurz erläutert werden. Den Anfang macht hierbei die tiefere Beschreibung der Gruppe der Übergangsmetall-Dichalkogenide, die wesentlicher Gegenstand der aufgeführten Experimente ist. Besonderer Fokus liegt dabei auf den exzitonischen Teilchenkomplexen, die in Monolagen solcher Materialien entstehen und deren optoelektronischen Eigenschaften dominieren. Verglichen mit dem Volumenmaterial jedoch müssen an der theoretischen Beschreibung der Exzitonen wegen der geringen Dimensionalität allerdings Änderungen vorgenommen werden. Ebenso wird auf die neue Klasse der Einzelphotonenquellen in 2D-Materialien eingegangen.

Anschließend kommen die Grundlagen der Plasmonik an die Reihe, die im Zusammenhang mit metallischen Oberflächen und Nanopartikeln auftreten. Die Kombination solcher Strukturen mit Monolagen führt zu einer erwünschten Modulation der optischen Eigenschaften, die gezielt ausgenutzt werden kann. Neben der plasmonischen Kopplung wird abschließend das zirkulare Bragg-Gitter näher erörtert. Diese Art der Kavität ermöglicht eine einfach umsetzbare Kopplung an die Monolage. Insbesondere ist die breitbandige Natur der Kavitätsmode und deren Abstrahlcharakteristik von großem Nutzen.

2.1 Grundlagen der Übergangsmetall-Dichalkogenide

In dieser Arbeit werden der Aufbau sowie die optischen Eigenschaften von Übergangsmetall-Dichalkogeniden (TMDCs¹) untersucht, die in den letzten Jahren wieder entdeckt wurden. TMDCs waren bereits in der zweiten Hälfte des 20. Jahrhunderts Gegenstand der Forschung, damals allerdings nur in ihrer dreidimensionalen Form oder als dünne Filme [Pet54, Fri66, Wil69, Jam71, Mur72]. Insbesondere durch die Erforschung von Graphen, das eine einzelne Monolage von Graphit darstellt und völlig neue physikalische Eigenschaften besitzt [Nov04, Nov05], wurden die

¹engl.: transition metal dichalcogenides

Anstrengungen in diese Richtung erhöht. Ausschlaggebend hierfür war die Entwicklung der in Kapitel 3.1 näher erörterten, mechanischen Exfolierung, durch die sich Van-der-Waals-Materialien bis auf eine einzelne Schicht – eine Monolage – ausdünnen lassen. Das Prinzip beruht auf der Tatsache, dass solche Stoffe aus vielen Schichten der zugrunde liegenden Kristallstruktur bestehen. Die einzelnen Lagen selbst zeichnen sich durch starke kovalente Bindungen aus, wohingegen sie untereinander nur durch vergleichsweise schwache Van-der-Waals-Kräfte aneinander gehalten werden.

2.1.1 Kristallstruktur

Der Begriff Übergangsmetall-Dichalkogenide deckt eine Vielzahl unterschiedlicher Materialien ab, die sich aus Übergangsmetallen sowie Chalkogenen (O, S, Se oder Te) zusammensetzen. Von besonderem Interesse hierbei sind die TMDCs wie zum Beispiel MoS_2 , MoSe_2 , WS_2 oder WSe_2 , die in kristalliner Form vorkommen [Wil69]. Stöchiometrisch folgen diese der Formel MX_2 , wobei M für ein Übergangsmetall und X für ein Chalkogen steht, wie in Abb. 2.1a) dargestellt. Das Volumenmaterial besteht aus vielen einzelnen Schichten, die in sich kovalent gebunden sind. Konkret ist eine Lage Metallatome beidseitig von je einer Chalkogenschicht eingebettet und insgesamt etwa 0,65 nm dünn [Wil69]. Jedes Metallatom ist dabei in der 2H-Anordnung von sechs Chalkogenatomen in einer trigonal prismatischen Geometrie umgeben [Chh13]. Trotz ihrer geringen Dicke ist eine solche Monolage (ML) mechanisch sehr stabil und flexibel [Ber11], wodurch sie für den in Kapitel 3.1 dargelegten Transferprozess geeignet ist und mehrere Schichten erfolgreich aufeinander gestapelt werden können [Ceb14]. Die Bindung zwischen einzelnen Monolagen ist allerdings nur durch Van-der-Waals-Kräfte gegeben, die mit etwa 0,2 eV eine ganze Größenordnung kleiner als die kovalenten Bindungen (2,0 eV) ausfallen [Ryd03]. Dies ermöglicht den Einsatz der mechanischen Exfolierung, um MLen beliebiger Van-der-Waals-Materialien zu generieren. Alternativ hierzu können sie mittels CVD²- [Lee12, Chh13, Lv15], ALD³ [Tan14, Mat17] oder auch MBE⁴ [Uge14, Zha14b]-Verfahren gewachsen werden – allerdings mit einem wesentlich höheren technischen Aufwand. Betrachtet man eine ML von oben, so wird das in Abb.2.1b) gezeigte hexagonale Bienenwabemuster ersichtlich, wobei an der Position des X in Wirklichkeit zwei Chalkogenatome übereinander abgebildet

²engl.: chemical vapor deposition

³engl.: atomic layer deposition

⁴engl.: molecular beam epitaxy

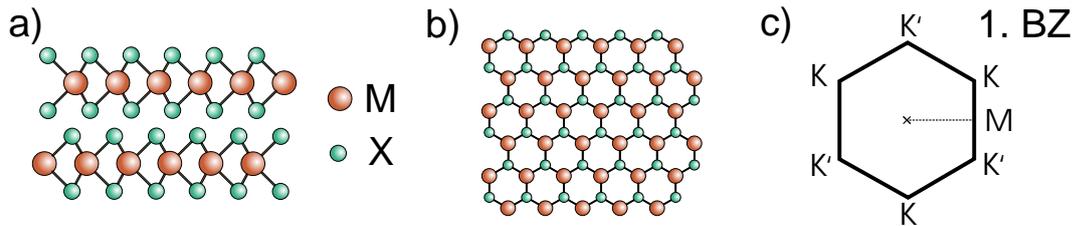


Abbildung 2.1: a) Seitenansicht zweier TMDC-Monolagen, die sich aus einem Übergangsmetall M und einem Dichalkogenid X zusammensetzen. Während innerhalb einer Lage kovalente Bindungen herrschen, existieren zwischen ihnen nur schwache Van-der-Waals-Kräfte. b) Draufsicht einer Monolage. Das hexagonale Honigwabennmuster wird klar ersichtlich. c) Darstellung der ersten Brillouin-Zone, die wie die Gitterstruktur im Realraum hexagonal ist. Eingezeichnet sind die wichtigen Hochsymmetriepunkte Γ , M und K/K' .

sind. Aus dieser Realraumgeometrie folgt eine ebenso hexagonale Struktur der ersten Brillouin-Zone in Abb.2.1c) mit den Hochsymmetriepunkten Γ , M und K/K' . Insbesondere Letztere spielen für Monolagen eine wichtige Rolle.

2.1.2 Optoelektronische Eigenschaften

Übergangsmetall-Dichalkogenide zeichnen sich durch ihre interessante Bandstruktur, die sich mit abnehmender Dimension signifikant ändert, und die vielfältigen, möglichen exzitonischen Anregungen aus. Zum Verständnis werden im kommenden Abschnitt zunächst die wichtigsten Grundlagen der Bandstruktur von Halbleitern knapp dargelegt. Danach folgt die Erörterung der Exzitonen, die die optoelektronischen Eigenschaften der TMDCs bestimmen. Besonderer Fokus liegt dabei darauf, wie sich diese Konzepte im Hinblick auf TMDCs anwenden lassen, sowie die daraus resultierenden Abweichungen und Konsequenzen. Abschließend stehen lokalisierte Exzitonen, die als Einzelphotonenquellen fungieren, und deren Besonderheiten in WSe_2 hinsichtlich der reduzierten Dimensionalität im Mittelpunkt.

2.1.2.1 Bandstruktur

Die Physik von kristallinen Festkörpern wird primär durch deren hohe Periodizität bestimmt, was sich in der elektronischen Bandstruktur manifestiert. Daraus lassen sich die wesentlichen Charakteristika, wie elektrische Leitfähigkeit, thermisches und insbesondere optisches Verhalten, ableiten [Kit13]. Die Bandstruktur stellt die Dispersionsrelation $E(\mathbf{k})$ der Elektronen eines gegebenen Festkörpers dar, wobei bedingt

durch die periodische Potentiallandschaft der Atomrümpfe des Gitters die Gleichung von der für freie Elektronen im Vakuum

$$E(\mathbf{k}) = \frac{(\hbar\mathbf{k})^2}{2m}, \quad (2.1)$$

abweicht. Hieraus ergeben sich Bänder, die nur von den Elektronen mit bestimmtem Wellenvektor \mathbf{k} besetzt werden dürfen und Bereiche, die wiederum energetisch verboten sind (Bandlücken). Entsprechend der Fermi-Verteilung wird die Bandstruktur bis zur Fermi-Energie aufgefüllt. Abhängig davon, ob die Fermi-Energie in keiner, einer kleinen oder einer großen Bandlücke (E_{BL}) liegt, teilt man Festkörper entsprechend in Metalle ($E_{BL} = 0\text{ eV}$), Halbleiter ($E_{BL} \leq 3\text{ eV}$) oder Isolatoren ($E_{BL} > 3\text{ eV}$) ein [Ash76]. Diese Einteilung leitet sich daraus ab, wie viel Energie benötigt wird, um Elektronen innerhalb der Bandstruktur in höhere, unbesetzte Zustände anzuregen. In Metallen stehen diese Zustände direkt zur Verfügung, wohingegen bei vorhandener Bandlücke eine Mindestenergie erforderlich ist, die E_{BL} entspricht. In Halbleitern hingegen ist die Bandlücke in der Regel klein genug, sodass die thermische Energie $k_B T$ mit der Boltzmann-Konstanten k_B ausreicht, einige Elektronen über die Bandlücke zu heben und so eine grundsätzliche Leitfähigkeit bei Raumtemperatur gegeben ist. Typischerweise wird diese Energie in optischen Experimenten durch Photonen der Energie beziehungsweise Frequenz ν oder Wellenlänge λ

$$E_{\text{Photon}} = h\nu = \frac{hc}{\lambda} \geq E_{BL}, \quad (2.2)$$

bereit gestellt. Aus der obigen Ausführung und Abb. 2.2a) wird ersichtlich, dass dem Übergang vom höchsten besetzten Band (Valenzband = VB) in das niedrigste unbesetzte Band (Leitungsband = LB) besondere Bedeutung zukommt. Liegen das VB-Maximum und das LB-Minimum an der selben Stelle im k -Raum, so spricht man von einer direkten Bandlücke; andernfalls von einer indirekten, bei deren Übergang zum Beispiel Phononen beteiligt sein müssen, um die Impulsdifferenz ausgleichen zu können. Die Bandstruktur von Halbleiter-TMDCs wie MoX_2 und WX_2 wird im Volumenmaterial hauptsächlich von einigen wenigen Atomorbitalen bestimmt. So bestehen die Valenz- und Leitungsbänder am Γ -Punkt vorrangig aus einer Kombination der antibindenden p_z -Orbitale des Chalkogenatoms und den d -Orbitalen des Metalls, wobei erstere stark von der dielektrischen Umgebung beeinflusst werden [Spl10]. An den K-Punkten hingegen stammen alle relevanten Bänder aus den d_{z^2} und hybridisierten $d_{x^2-y^2} \pm id_{xy}$ Metallorbitalen [Sti16], die im Gegensatz zu

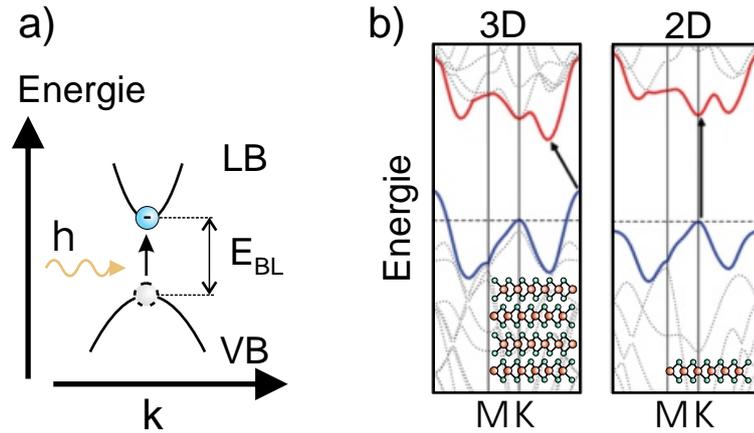


Abbildung 2.2: a) Anregung eines Elektrons an einer direkten Bandlücke: ein Photon mit der Energie $h\nu \geq E_{BL}$ hebt ein Elektron vom Valenz-(VB) ins Leitungsband (LB). b) Änderung der Bandstruktur von Volumenmaterial zu einer Monolage am Beispiel MoS₂ aus [Spl10]. In der ML existiert ein direkter Übergang am K-Punkt, der somit optisch zugänglich ist.

den p_z -Orbitalen des Chalkogens vorwiegend im Zentrum einer Monolage lokalisiert sind. Im Volumenmaterial bildet sich in Abb. 2.2b) [Spl10] die Bandlücke zwischen dem Γ -Punkt des VBs und im LB zwischen Γ und K aus, woraus eine optisch nicht aktive, indirekte Bandlücke resultiert. Wird die Anzahl der Schichten nun verringert, so nimmt der Einfluss der benachbarten Chalkogenatome aufeinander stetig ab, was wiederum zu einer Vergrößerung der indirekten Bandlücke führt. Für eine Monolage schließlich stellen die K-Punkte sowohl im VB als auch im LB die Bandextrema dar, weshalb eine Monolage nun eine direkte Bandlücke besitzt. Dies macht TMDCs für eine Fülle neuer optischer Experimente zugänglich. Die Änderung der Bandstruktur mit abnehmender Dimensionalität wurde zunächst 2007 [Li07] mittels DFT⁵ theoretisch vorhergesagt und später zum ersten Mal experimentell bestätigt [Mak10]. Zur genaueren physikalischen Beschreibung der Bänder bietet sich die von Graphen abgeleitete [Cas09], Dirac-ähnliche Hamilton-Funktion $H_{\tau}^{(0)}(\mathbf{k})$ an, die zwei Bänder (LB und VB) mit einer Bandlücke E_{BL} beschreibt [Ber18]:

$$H_{\tau}^{(0)}(\mathbf{k}) = \frac{E_{BL}}{2}\sigma_z + at(\tau q_x\sigma_x + q_y\sigma_y), \quad (2.3)$$

⁵engl.: density functional theory

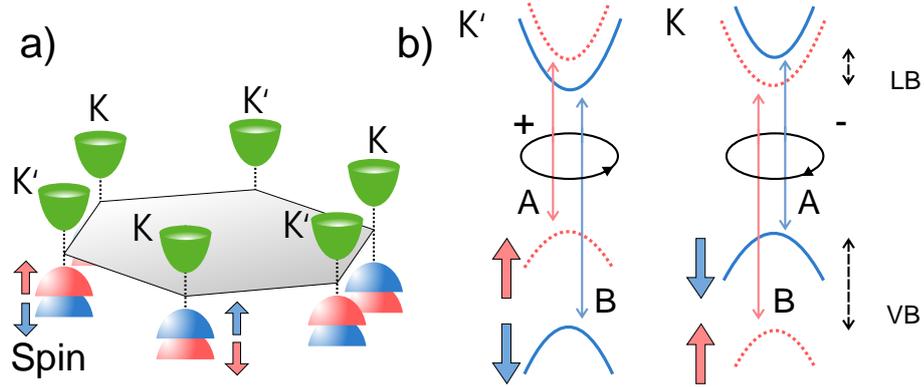


Abbildung 2.3: a) Schematische Bandstruktur der ersten Brillouin-Zone: An den sechs K-Punkten besitzen die Bänder aufgrund der Spin-Bahn-Kopplung jeweils eine bestimmte Spinrichtung. Zudem unterscheidet sich das Vorzeichen der Spins zwischen benachbarten K-Punkten (K/K'). b) Detaillierte Bandstruktur von WSe₂: Sowohl im VB als auch im LB existiert eine Aufspaltung (Δ_{VB} beziehungsweise Δ_{LB}). Dies führt zu festen optischen Übergangsregeln, die für jedes K -Tal unterschiedlich ausfallen. Somit lassen sich Elektronen in einem Tal nur mit der passenden zirkulären Polarisation σ^+/σ^- anregen. Die Spin-Bahn-Aufspaltung des VBs resultiert in den optischen Übergängen A und B.

wobei a die Gitterkonstante, t das Nächste-Nachbar⁶-Transferintegral, $\sigma_{i=x,y,z}$ die Pauli-Matrizen und die Variable $\tau = \pm 1$ den Index der beiden Täler K und K' darstellen. Zudem ist die Schreibweise der Differenz des Wellenvektors $\mathbf{q} = \mathbf{k} - \mathbf{K}$ gewählt. Zusätzlich muss noch die ausgeprägte Spin-Bahn-Kopplung der schweren Metallatome, die aus der in einer Monolage gebrochenen Inversionssymmetrie resultiert, berücksichtigt werden. Mit den hybridisierten Orbitalen $|d_{x^2-y^2}\rangle \pm i\tau |d_{xy}\rangle \equiv |\Phi^\tau\rangle$ ergibt sich in erster Näherung [Ber18]:

$$H_\tau(\mathbf{k}) = H_\tau^{(0)}(\mathbf{k}) - \tau \Delta_{VB} |\Phi^\tau\rangle \langle \Phi^\tau| S_z, \quad (2.4)$$

mit der Spin-Bahn-Aufspaltung des Valenzbandes $\Delta_{VB} \approx 0,2 \text{ eV} - 0,5 \text{ eV}$. Um die Zeitumkehrsymmetrie zu erhalten ($S_z \rightarrow -S_z, \tau \rightarrow -\tau$), müssen in den entarteten Bändern der beiden Täler K und K' jeweils entgegengesetzte Spins sitzen [Xia12]. Die entsprechende Bandstruktur mit der Spin-Bahn-Aufspaltung des Valenzbandes und den zugehörigen Spinrichtungen sind in Abb. 2.3a) dargestellt. An den sechs Ecken des hexagonalen Gitters befinden sich abwechselnd entartete K und K' -Täler, die

⁶ohne Berücksichtigung weiterer Nachbarn

entgegengesetzte Spinverteilungen besitzen. So kommt es dank der Aufspaltung des VBs zu zwei direkten Übergängen A und B , die sich um Δ_{VB} unterscheiden. Diese und die optischen Auswahlregeln [Xia12] für WSe_2 sind in Abb. 2.3b) eingezeichnet, wobei die Regeln durch das Produkt der Wellenfunktionen der beteiligten Zustände sowie das Impulsmatrixelement festgelegt werden [Ber18]. Sie sagen mitunter aus, dass sich die Übergänge jedes Tals durch zirkuläres Licht σ^+/σ^- einer jeweils anderen Richtung anregen lassen [Zen15, Mak12], wodurch in Kombination mit der fixen Spinverteilung Zugang zum neuen Freiheitsgrad des Tals ermöglicht wird.

Neuere Arbeiten zur Bandstruktur ergaben neben der offensichtlichen Aufspaltung des Valenzbandes auch eine wesentlich kleinere Δ_{LB} für das Leitungsband [Liu13, Koś13, Kor14] (siehe Abb. 2.3b). Dies ist insbesondere für die wolframbasierten TMDCs WX_2 von großer Bedeutung, da in diesen Materialien der energetisch niedrigste Übergang dunkel und somit nur durch Relaxation von Teilchen aus höheren Zuständen zugänglich ist. Darüber hinaus führt dies zu einer Abschwächung der Photolumineszenz (PL) bei tiefen Temperaturen [Zha15b], da zuerst der dunkle Zustand besetzt wird. Dieses Verhalten steht im Kontrast zu anderen TMDCs wie der Molybdänklasse MoX_2 , bei denen der kleinste Übergang optisch aktiv ist und eine Zunahme der PL bei tieferen Temperaturen zur Folge hat.

2.1.2.2 Exzitonen in zwei Dimensionen

Wird ein Elektron vom VB ins LB angehoben, bleibt an dessen Stelle ein positiv geladenes Loch zurück, dem ebenso wie dem Elektron eine effektive Masse m_h ⁷ zugeschrieben werden kann (Abb. 2.4a). Zwischen diesen beiden Teilchen kann es nun zu einer attraktiven Coulomb-Wechselwirkung kommen, sodass sich beide als ein neues Quasiteilchen – das Exziton (X) – beschreiben lassen. Dieses gebundene Elektron-Loch-Paar kann sich, wie in Abb. 2.4b) für eine Monolage skizziert, durch den Festkörper bewegen (Mott-Wannier-Exziton [Wan37]), ohne dass es zu einem effektiven Ladungstransport kommt. Bedingt durch die attraktive Wechselwirkung liegt der Energiezustand des Exzitons innerhalb der Bandlücke, da ein Teil der Energie in die Bindungsenergie E_B umgewandelt wird. Daraus ergibt sich der einfache Zusammenhang für die systemabhängige Exzitonenergie

$$E_X = E_{BL} - E_B. \quad (2.5)$$

⁷h=hole; engl. Loch

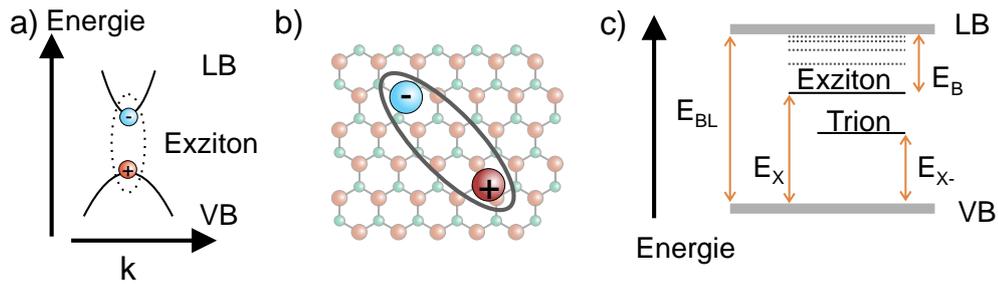


Abbildung 2.4: a) Nach der Anregung eines Elektrons vom VB ins LB kann die entstandene Fehlstelle als positiv geladenes Loch behandelt werden, das über Coulomb-Wechselwirkung mit dem Elektron ein Exziton bildet. b) Schematische Darstellung eines Exzitons in einer Monolage. c) Energiediagramm eines Exzitons mit der Energie E_X . Aufgrund der Bindungsenergie E_B liegt der Grundzustand des Exzitons innerhalb der Bandlücke E_{BL} , ebenso wie die zugehörigen höheren Zustände. Das Trion liegt als Dreiteilchenzustand nochmals niedriger.

Beim strahlenden Zerfall eines Exzitons wird üblicherweise ein Photon mit genau dieser Energie E_X ausgesandt, weshalb sie auch optische Bandlücke genannt wird und in der Photolumineszenzspektroskopie eine wichtige Rolle spielt. Neben den Exzitonen gibt es noch weitere Quasiteilchen, die auf ähnliche Weise entstehen können. Wenn ein Exziton einen zusätzlichen Ladungsträger (Loch oder Elektron) bindet, spricht man von positiv beziehungsweise negativ geladenen Trionen (X^+/X^-). Wird noch ein weiterer Ladungsträger gebunden, so erhält man ein Biexziton, das seinem Namen entsprechend aus zwei Exzitonen, sprich je zwei Elektronen und Löchern besteht. Das Exziton lässt sich im Rahmen des Bohrschen Atommodells des freien Wasserstoffatoms, das sich ebenso aus einer positiven (Proton) und einer negativen Ladung (Elektron) zusammensetzt, beschreiben und analog behandeln. Grundlegende Unterschiede ergeben sich aus den wesentlich geringeren beteiligten Massen des Exzitons sowie dem direkten Einfluss der dielektrischen Umgebung innerhalb eines Festkörpers. So schirmen die dort vorhandenen Ladungsträger einen Teil der Coulomb-Wechselwirkung ab (dielektrische Abschirmung). Beide Faktoren verringern die Bindungsenergie im Vergleich zum Wasserstoffatom erheblich, die sich für den abgeschirmten Grundzustand wie folgt ergibt [Bim99]:

$$E_B = \frac{\mu}{2\hbar^2} \left(\frac{e^2}{4\pi\epsilon_r\epsilon_0} \right)^2. \quad (2.6)$$

Hierbei ist $\mu = \frac{m_e m_h}{m_e + m_h}$ die reduzierte, effektive Masse des Zwei-Körperproblems für das Elektron (m_e) und Loch (m_h), e die Elementarladung und ϵ_0 die Dielektrizitätskonstante des Vakuums. Die dielektrische Abschirmung fließt in die materialabhängige Dielektrizitätskonstante ϵ_r ein. Entsprechend lässt sich auch der Bohrradius a_B , die Kennzahl für die räumliche Ausbreitung eines Exzitons, definieren [Bim99]:

$$a_B = \frac{4\pi\epsilon_0\epsilon_r\hbar^2}{\mu e^2}. \quad (2.7)$$

Neben dem Grundzustand (1s) gibt es dem Atommodell folgend weitere, höhere energetische Zustände (2s, 2p, etc.), deren Abstände zum Leitungsbandminimum hin immer geringer werden (Abb. 2.4c). Die zuvor genannten Gleichungen 2.6 und 2.7 gelten grundsätzlich für Volumenmaterial, sprich für den 3-dimensionalen Fall. So sind Anpassungen für niedrigere Dimensionen, wie es bei 2D-Materialien der Fall ist, nötig. Die reduzierte Dimensionalität der Monolagen besitzt einen enormen Einfluss auf deren Physik. Deshalb dürfen Einflüsse der direkten Umgebung einer ML nicht mehr ignoriert und müssen bei weitergehenden Untersuchungen berücksichtigt werden. Dies zeigt sich bereits bei der einfachsten Anregung – ein Exziton – und der Beschreibung seiner Energieniveaus durch das Wasserstoffmodell (Gl. 2.6). Dieses reicht nicht mehr aus, um die experimentellen Daten abzubilden [Che14]. Ursächlich hierfür ist die veränderte Abschirmung der elektrischen Felder durch die dielektrische Umgebung der Monolage. So müssen im zweidimensionalen Fall die Dielektrizitätsfunktionen der darunter und darüber liegenden Schichten mitberücksichtigt werden. Die Darstellung in Abb. 2.5a) und b) verdeutlicht dies, da die elektrischen Feldlinien nun auch außerhalb der Monolage ϵ_{ML} in der Umgebung von zwei Dielektrika ϵ_1 und ϵ_2 liegen. Zur allgemeinen Beschreibung zweier Ladungen q_1 und q_2 im Abstand r in der Mitte einer Schicht der Dicke d lässt sich das zugehörige Potential W im reziproken Raum als $W(k) = 2\pi q_1 q_2 / (k\epsilon(k))$ ausdrücken [Ber18]. Die Dielektrizitätsfunktion $\epsilon(k)$ lautet

$$\epsilon(k) = \epsilon_{ML} \frac{1 - L_1 L_2 e^{-2kd}}{(1 - L_1 e^{-kd})(1 - L_2 e^{-kd})}, \quad (2.8)$$

mit $L_{n=1,2} = (\epsilon_n - \epsilon_{ML}) / (\epsilon_n + \epsilon_{ML})$. Hieran lassen sich die zwei Extremfälle für $\epsilon(k \rightarrow \infty) = \epsilon_{ML}$ und $\epsilon_{ML}(k \rightarrow 0) = (\epsilon_1 + \epsilon_2)/2$ erkennen. Ersterer drückt die kurzreichweitige, homogene Verteilung aus, letzterer hingegen die langreichweitige, gemittelte Dielektrizitätskonstante. Zudem ergibt sich Gl. 2.8 für den 3D Fall $\epsilon_n = \epsilon_{ML}$ trivialerweise zu $\epsilon(k) = \epsilon_{ML}$. Für sehr große Unterschiede in $\epsilon_n - \epsilon_{ML}$ und für

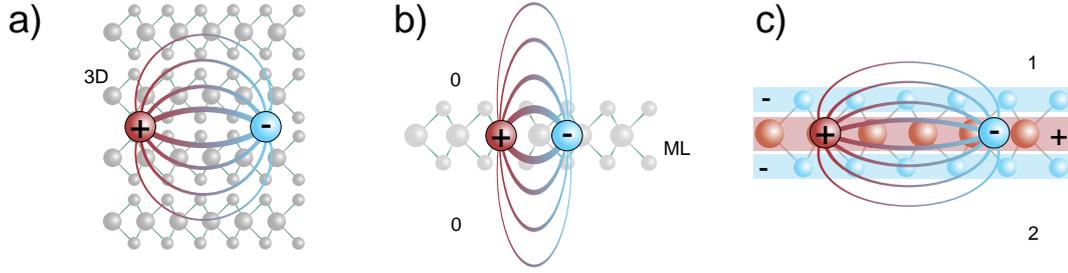


Abbildung 2.5: Einfluss der dielektrischen Umgebung auf Exzitonen: a) Im homogenen Volumenmaterial breiten sich die Feldlinien des Exzitons gleichmäßig aus. b) Im 2D-Fall einer Monolage in Luft (ϵ_0) führt die verringerte Abschirmung der Feldlinien in Luft zu einer erhöhten Bindungsenergie bzw. einem kleineren Bohrradius. c) Berücksichtigung der inneren Struktur einer Monolage, die von verschiedenen Materialien ϵ_1 und ϵ_2 umgeben ist. Die Metall- und Chalkogenidatome weisen eine unterschiedliche Polarisierbarkeit auf, die Einfluss auf die konkrete Abschirmung der Feldlinien besitzt [Van18].

$kd \ll 1$ hingegen nehmen die Dielektrizitätsfunktion sowie die Potentialfunktion die von Rytova [Ryt67] und Keldysh [Kel79] bekannten Formen an:

$$\epsilon(k) \approx \frac{\epsilon_1 + \epsilon_2}{2} + \frac{\epsilon_{ML}kd}{2} = \frac{\epsilon_1 + \epsilon_2}{2}(1 + r_0k), \quad (2.9)$$

$$W(r) \approx \frac{\pi q_1 q_2}{d\epsilon_{ML}} \left[H_0\left(\frac{r}{r_0}\right) - Y_0\left(\frac{r}{r_0}\right) \right], \quad (2.10)$$

wobei die Länge der 2D-Abschirmung vom Material sowie seiner Umgebung $r_0 = \epsilon_{ML}d/(\epsilon_1 + \epsilon_2)$ abhängt und H_0 und Y_0 die Struve- bzw. Bessel-Funktion nullter Ordnung darstellen. Typische Größenordnungen der hier benutzten Parameter für eine ML im Vakuum ($\epsilon_{1,2} = 1$) lauten $\epsilon_{ML} \approx 14$ und $d \approx 6 \text{ \AA}$, was zu $r_0 \approx 40 \text{ \AA}$ führt [Ber13]. Üblicherweise wird das E-Feld außerhalb der Monolage weit weniger stark abgeschirmt, weshalb die Coulomb-Wechselwirkung zwischen geladenen Teilchen wesentlich verstärkt wird. Der Formalismus liefert zwar realitätsnahe Ergebnisse, zeigt aber bei komplexeren Effekten, wie etwa Mehrteilchenphänomen, Dotierung [Che15] oder auf sehr kurzen Längenskalen ($\approx 1 \text{ \AA}$) Defizite [Lat15], die Gegenstand aktueller Forschung sind. Eine Verbesserung etwa ist die Berücksichtigung der inneren Struktur einer Monolage [Van18] mit den einzelnen Atomschichten, wie in Abb. 2.5c) dargestellt. Die Metall- und Chalkogenidatome besitzen eine unterschiedliche Polarisierbarkeit, die zu einer Abschirmung der Feldlinien nach außen durch die Chalkogenide führt. Aufgrund der verringerten Abschirmung und den daraus folgenden

starken Coulomb-Wechselwirkungen bestimmen hauptsächlich Exzitonen und darauf basierende Komplexe die optische Antwort der TMDCs. Hierfür lässt sich mit Hilfe des Bethe-Salpeter-Formalismus die exzitonische Zwei-Teilchen-Interaktion berechnen, wobei alle frequenzabhängigen, abgeschirmten Coulomb-Wechselwirkungen und eine nicht abgeschirmte Austauschwechselwirkung aufsummiert werden [Ber15]. Der Formalismus kann unter Annahme einiger Annäherungen zu einer Wannier-Gleichung reduziert werden [Dre56, Ber18]:

$$\left(\hat{H}_{eff} - E_{BL}\right)\Phi_{nl}(\mathbf{r}) = \left[-\frac{\hbar^2}{2\mu}\nabla_{\mathbf{r}}^2 + W(r) - E_{BL}\right]\Phi_{nl}(\mathbf{r}) = E_{nl}\Phi_{nl}(\mathbf{r}), \quad (2.11)$$

mit der reduzierten Masse μ , der Bandlücke E_{BL} des Quasiteilchens, der negativen Bindungsenergie E_{nl} eines Exzitons mit den Quantenzahlen n, l , und dem Abschirmungspotential aus Gl. 2.10. Basierend hierauf wurden Bindungsenergien von etwa 0,5 eV [Ber13, Ber14, Zha14a] errechnet, die ebenso in Experimenten unter Berücksichtigung etwaiger Substrateffekte bestätigt werden konnten [Che14, He14, Uge14]. Der hieraus resultierende Bohrradius (Gl. 2.7) liegt im Bereich von 1 nm [Sti16] für den 1s Zustand des Exzitons, was wiederum Ausdruck der starken Lokalisierung ist. Eine weitere Konsequenz hieraus ergibt die Möglichkeit, durch die Wahl der richtigen Umgebung direkt Einfluss auf die Qualität der Emission nehmen zu können. So hat sich gezeigt, dass die Verkapselung einer Monolage in nur wenigen Schichten dickem, hexagonalem Bornitrid (hBN) sowohl die Oberfläche passivieren als auch die Linienbreiten massiv reduzieren kann [Cad17].

In dieser Arbeit werden ausschließlich WSe₂-Monolagen benutzt, weswegen nun kurz auf deren exzitonischen Charakteristiken im Speziellen eingegangen wird. Zugehörige experimentelle Daten werden in Kapitel 5 näher erörtert. Bei Raumtemperatur sind in Photolumineszenzmessungen nur die stark gebundenen Exzitonen bei einer Energie von etwa 1,65 eV (750 nm) zu erkennen [Ton13], deren Intensität mit sinkender Temperatur abnimmt und deren Emissionsenergie aufgrund der kleiner werdenden Gitterkonstante auf etwa 1,75 eV (710 nm) zunimmt. Zusätzlich sind auch Trionkomplexe über den gesamten Temperaturbereich messbar, die eine Bindungsenergie von etwa 30 meV (≈ 15 nm) besitzen. Allerdings zeigen sich insbesondere für WSe₂ bei Tieftemperaturen (4K) noch wesentlich mehr Emissionsquellen [Wan14, Hua16]. So belegen neue Studien eine Vielzahl unterschiedlicher Komplexe, die sowohl hellen als auch dunklen Zuständen, Exzitonen und Trionen oder Übergängen zwischen verschiedenen Tälern [Liu19b, Mol19, Liu20] zugeordnet werden können. Möglich

wurde dies durch den Einsatz von hBN und neuen experimentellen Techniken, wodurch sich viele, weniger stark ausgeprägte Effekte erst erfassen und auflösen lassen. Dies eröffnet neue Wege, verschiedenste physikalische Phänomene zu studieren. Zudem gibt es noch die komplette Gruppe der Einzelphotonenquellen in TMDCs (wieder vorrangig WSe₂), die im kommenden Abschnitt diskutiert wird.

Abschließend bleibt an dieser Stelle noch zu erwähnen, dass neben den genannten Eigenschaften das neue Feld der 2D-Heterostrukturen durch die Fähigkeit eröffnet wird, unterschiedliche Monolagen verschiedener TMDCs beliebig kombinieren zu können. So existieren Interband-Exzitonen, die sich über mehrere Monolagen erstrecken können [Riv15, Gon14], oder komplett neue Potentiale, die durch Moiré-Muster entstehen [Zha18, Sey19, Tra19].

2.1.3 Einzelphotonenquellen in Monolagen

Neben der Fülle an Möglichkeiten, die die freien Exzitonen wie oben genannt bieten, gibt es noch eine weitere Kategorie optischer Anregungen in den Monolagen. Seit ihrer Entdeckung 2015 [He15, Kum15, Ton15, Sri15, Kop15] sind Einzelphotonenquellen (SPEs⁸), die auf lokalisierten Exzitonen in 2D-Materialien basieren, Gegenstand anhaltender Forschungsbemühungen. Auch die vorliegende Arbeit fokussiert sich hauptsächlich auf die Erforschung und Implementierung dieser Quantenemitter in diverse quantenelektrodynamische Bauteile, um deren optische Eigenschaften ausnutzen und verbessern zu können. Das Feld befindet sich bis heute in rasantem Wachstum, weswegen nur ein Bruchteil der Erkenntnisse hier aufgeführt werden kann. Für einen guten Überblick über das vielschichtige Gebiet empfiehlt sich die Lektüre diverser Zusammenfassungen [Tot19, Hu18]. An dieser Stelle jedoch sollen die möglichen Ursprünge sowie deren physikalische Eigenschaften, insbesondere in WSe₂, im Vordergrund stehen. In Kapitel 5 werden zudem experimentelle Ergebnisse zu SPEs in WSe₂ vorgestellt.

2.1.3.1 Ursprung

Im Gegensatz zu ihrem Vorkommen als Volumenmaterial stellen alle 2D-Materialien als Monolage eine riesige, in der Ebene ausgebreitete Kontaktfläche zu ihrer Umgebung dar. Entsprechend logisch erscheint es, dass die Qualität, Beschaffenheit und Reinheit der Oberfläche insgesamt eine essentielle Rolle in der Bestimmung der

⁸engl.: single photon emitters

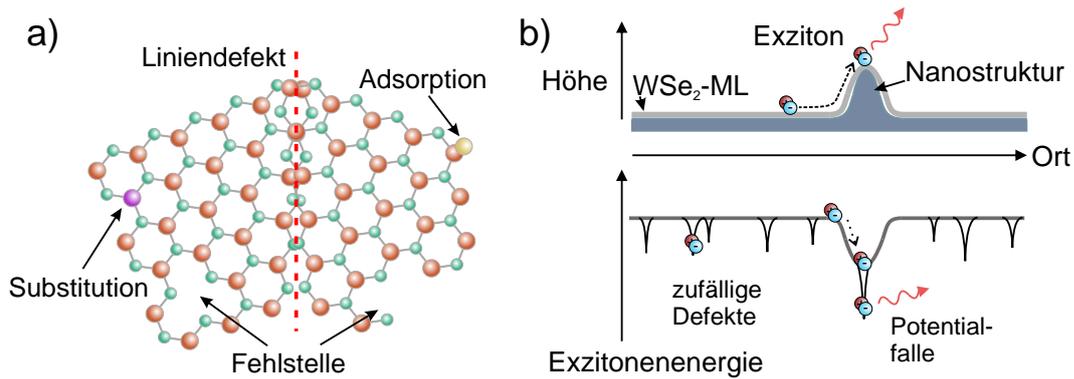


Abbildung 2.6: a) Potentielle, natürliche Ursachen für Defekte in einer Monolage. Diese treten hauptsächlich an Rändern oder strukturellen Fehlern auf. b) Schematisches Bild zur gezielten Aktivierung von Defektpotentialen. Durch die verspannungsinduzierte Modulation einer ML mittels einer Nanostruktur bildet sich eine lokal tiefere Potentialfalle, in die Exzitonen diffundieren können. Aufgrund des stark lokalisierten Einschusses rekombinieren sie dort unter Aussendung eines einzelnen Photons.

optoelektronischen Eigenschaften derer spielt. Mit der Untersuchung von WSe_2 bei Tieftemperaturen (4 K) wurde erstmals Emission in der Photolumineszenz gemessen, die lokalisierten Zuständen zugeordnet werden konnte [Jon13, Ton13]. Diese Emission liegt üblicherweise 10 meV - 200 meV niedriger als die des freien Exzitons (1,75 eV) und stellt sich als vergleichsweise breites, ungleichmäßiges Spektrum dar. Mit steigender Temperatur verschwindet die PL ab etwa 50 K bereits vollkommen, was Ausdruck einer Vielzahl lokalisierter, aber energetisch flacher Einschlüsse ist. Gelegentlich jedoch sind auch einzelne, gut isolierte Spektrallinien messbar, die als SPEs identifiziert werden konnten [He15, Kum15, Ton15, Sri15, Kop15]. Anfangs wurden diese neuartigen Quantenemitter vor allem mit den Kanten und künstlich erzeugten, makroskopischen Fehlern in der Monolage in Verbindung gebracht. Dies legt den Schluss nahe, dass als Ursprung solcher SPEs atomare Defekt- und Fehlstellen in der Geometrie der ML wie in Abb. 2.6a) verantwortlich sind. First-Principle-Berechnungen [Hal15, Jia18] zeigen auf, dass Selenid-Fehlstellen für das Entstehen von lokalisierten Zuständen in Frage kommen. Dem widersprechen allerdings Experimente, in denen deren konkreter Einfluss untersucht wurde [Moo18]. Sauerstoffbrücken wurden ebenso als potentieller Kandidat theoretisch betrachtet [Zhe19]. Demgegenüber stehen STM-Untersuchungen von WSe_2 -MLen, die Wolfram-Fehlstellen als Hauptursache sehen [Zha17]. Eine klare Verknüpfung zwischen den atomaren Fehlstellen und den Emittern fehlt somit weiterhin [Tot19]. Daneben existieren auch noch theoretische Überlegungen, die

gänzlich ohne konkrete Fehlstellen auskommen und stattdessen auf ein zufälliges Störungspotential setzen, das in der Lage wäre, die Entstehung der SPEs zu erklären [Aya18]. Der tatsächliche Ursprung der SPEs in TMDCs bleibt somit weiterhin unklar und ein wichtiges Forschungsgebiet, das interessante Einblicke in die Physik der TMDCs verspricht.

Der Modulation des lokalen Potentials kommt eine wichtige Bedeutung zu. So ist der Einfluss von Nanostrukturen, die gezielt auf eine Substratoberfläche aufgebracht wurden, auf die Photolumineszenz einer ML belegt [PB17, Ker16, She17, Kum15, Ye17, Bra16a, Luo18]. Der Grund hierfür liegt in den induzierten Verspannungen der Monolage, die sich an den Nanostrukturen ausbilden. Die konkreten Abmessungen oder Formen spielen dabei nur eine untergeordnete Rolle, solange sie im Bereich von unter etwa 300 nm bleiben. In Kapitel 7 findet diese Technik der verspannungsinduzierten SPEs ebenso Anwendung. Die physikalische Idee dahinter lautet, dass verspannte Stellen eine Änderung der lokalen Bandstruktur bewirken. Hierdurch werden Einschlusspotentiale, die bereits in der ML vorhanden waren, aktiviert und können von Elektronen besetzt werden (siehe Abb. 2.6). Dies erklärt auch, warum die SPEs besonders an Kanten und Bruchstellen zufällig zu finden sind, aber durch eine entsprechende Strukturierung deterministisch generiert werden können. Zudem liefert dieses relativ einfache, phänomenologische Bild den Grund, weshalb mit einer hohen SPE-Dichte stets eine Unterdrückung der Emission der freien Exzitonen einhergeht: Der Großteil der Elektronen wird regelrecht in die Defektstellen kanalisiert und rekombiniert dort, statt als freies Exziton zu zerfallen.

Neben WSe₂ sind mittlerweile viele weitere 2D-Materialien der TMDCs und darüber hinaus bekannt, die SPEs aufweisen. Eine kleine Übersicht ist in Tabelle 2.1 gegeben [Tot19]. Ein vielversprechender Kandidat ist dabei hexagonales Bornitrid [Tra16], das bereits erfolgreich zur Passivierung anderer 2D-Materialien benutzt wird und bei Raumtemperatur leuchtende SPEs bietet.

2.1.3.2 Physik der Einzelphotonenquellen

Zur physikalischen Beschreibung der Quantenemitter in 2D-Materialien bietet sich ein Blick auf das vereinfachte Energiediagramm eines lokalisierten Emitters in Abb. 2.7a) an. Üblicherweise werden mit einem Laser entweder direkt oder nicht-resonant darüber liegende Energieniveaus angeregt, die über nicht-strahlende Kanäle in den lokalisierten Zustand zerfallen. Die so entstandenen Exzitonen rekombinieren spontan unter Aussendung (= spontane Emission) eines Photons. Der Einzelphotonencharakter

Material	Einsatzbereich	Temperatur
WSe ₂ [He15, Kum15, Ton15, Sri15, Kop15]	~ 720 – 800 nm	4 K
MoSe ₂ [Bra16b, Cha16]	770 nm	4 K
MoS ₂ [Kle19]	~ 670 – 710 nm	10 K
GaSe (Multilagen) [Ton17]	600 nm	4 K
WS ₂ [PB17]	640 nm	4 K
WO ₃ (Multilagen) [Tra17a]	~ 620 – 800 nm	300 K
hBN [Tra16]	UV-NIR	300 K

Tabelle 2.1: Vergleich der SPEs verschiedener 2D-Materialien hinsichtlich deren Emissionswellenlänge und Arbeitstemperatur [Tot19].

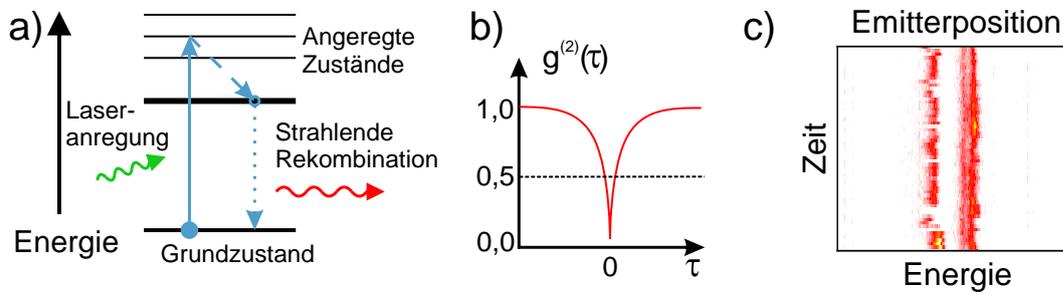


Abbildung 2.7: a) Energiediagramm eines lokalisierten Emitters: Mittels eines Anregungslasers wird ein Elektron aus dem Grundzustand in einen angeregten Zustand überführt. Von dort relaxiert es in den niedrigsten, angeregten Zustand und rekombiniert anschließend unter Aussendung eines Photons zurück in den Grundzustand. b) Die Autokorrelationsmessung zweiter Ordnung $g^{(2)}(\tau)$ ergibt für SPEs bei $\tau = 0$ einen Wert nahe 0. Das bedeutet, dass zu diesem Zeitpunkt nur mit einer geringen Wahrscheinlichkeit ein zweites Photon detektiert wird. c) Schematische Darstellung eines Konturplots der Energie eines Emitters, der zeitliche Fluktuationen besitzt. Es zeigt sich das für TMDC-SPEs typische Verhalten des spektralen Wanderns über die Zeit sowie des Blinkens. Diese Effekte treten üblicherweise auf Zeitskalen von wenigen Sekunden bis mehreren Minuten auf.

eines Emitters wird über die Messung der Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung $g^{(2)}(\tau)$ durchgeführt, die die Wahrscheinlichkeit angibt, zur selben Zeit $\tau = 0$ zwei Photonen zu detektieren (vgl. Kap. 2.4). Liegt der Wert wie in Abb. 2.7b) unter 0,5 (idealerweise bei 0) geht man von einer Einzelphotonenquelle aus, was in den ursprünglichen Veröffentlichungen [He15, Kum15, Ton15, Sri15, Kop15, Cha15] bereits

gezeigt wurde und ein Basisexperiment darstellt. Typische Linienbreiten liegen je nach Qualität des Emitters im Bereich 0,05-1,00 meV und somit entsprechend unter der minimalen, homogenen Breite der 2D-Exzitonen in TMDCs [Moo15]. Generell besitzt die Güte des Herstellungsprozesses (Exfolierung und Wachstum) der Monolage einen großen Einfluss auf die Stabilität der Emitter, da Dopingeffekte sowie die Defektdichte (sowohl intrinsisch wie auch gezielt in der Nachbehandlung) Auswirkungen auf die Ladungsträgerkonzentration in der Nähe des Emitters haben. Dies wiederum spiegelt sich in dessen elektrischer Umgebung und somit in der Energie des SPEs wider, wie es sich zum Beispiel in zeitlichen, spektralen Fluktuationen und Blinkverhalten in Abb. 2.7c) manifestiert [He15, Sri15, Ton15, Kum15]. Dies ist tatsächlich ein Hindernis, das den Einsatz in Bauteilen erschwert und entsprechend überwunden werden muss. Ein Lösungsansatz hierfür ist die Verwendung eines passenden Substrats, das zur Stabilisierung der Ladungsträgerumgebung führen kann [Iff17]. Weiterhin weisen die Emitter eine ausgeprägte lineare Polarisierung auf, die wahrscheinlich auf den Einfluss der lokal stark anisotropen Verspannung sowie deren Dipolcharakter zurückzuführen ist [Ker16, She17]. Weitere Messungen belegen zudem durch Anlegen eines externen Magnetfeldes, dass ein Großteil der Emitter eine Zeeman-Aufspaltung mit außerordentlich großen g-Faktoren⁹ von bis zu 10 besitzt [Cha15, He15]. Da dies allerdings nicht alle SPEs aufweisen, ist auch hier davon auszugehen, dass es auf den individuellen Emitter ankommt.

Unabhängig davon lassen sich die Anregungen durch Exzitonen beschreiben, die sich wiederum durch die wasserstoffähnlichen Hamilton-Funktion ausdrücken lassen [Nov12]:

$$\hat{H} = -\frac{\hbar^2}{2m_h} \nabla_h^2 - \frac{\hbar^2}{2m_e} \nabla_e^2 + V - \frac{e^2}{\epsilon|r_e - r_h|}, \quad (2.12)$$

mit den Elektron- (e) und Lochmassen (h), dem Potential V und der Coulomb-Wechselwirkung im letzten Term. Dieser kann für hinreichend stark lokalisierte Strukturen aufgrund der Abschirmung der Umgebung vernachlässigt werden, wodurch sich die Beschreibung zu der eines Teilchens in einem Potentialtopf reduziert. Dies ist insbesondere für eine Monolage mit Defekten und Falten gegeben, an deren Stellen sich lokale Potentialminima ausbilden können. Entsprechend existieren nur diskrete Energieniveaus, die besetzt werden können. Eine wichtige Eigenschaft eines solchen

⁹gyromagnetischer Faktor, auch Landé-Faktor

Systems, das sich in einem einfachen Bild aus einem Grund- und einem angeregten Zustand zusammen setzt, stellt die strahlende Zerfallsrate γ_{Fl} eines nicht saturierten, ungekoppelten Emitters [Nov12]

$$\gamma_{Fl} = \gamma_{Anr} \cdot \eta_i = \gamma_{Anr} \frac{\gamma_0}{\gamma_0 + \gamma_V}, \quad (2.13)$$

mit der Quanteneffizienz η_i , der Anregungsrate γ_{Anr} sowie den nicht-strahlenden Verlusten γ_V dar. Sie setzt die Rate, mit der ein Zustand angeregt wird, mit der Wahrscheinlichkeit (=Effizienz) in Verbindung, dass dieser auch wieder strahlend zerfällt. Ein idealer Quantenemitter besitzt $\eta_i = 1$, da dann jede Anregung auch zu einem Photon führt. In der Realität führt jedoch die Existenz von γ_V , wie etwa dunkle Zerfallskanäle und Absorption, üblicherweise zu einer Reduktion. Hinsichtlich konkreten Anwendungen gilt es nun, γ_{Fl} zu maximieren, um helle und effiziente Lichtquellen produzieren zu können. In Gl. 2.13 ermöglichen dies die zwei Parameter der Anregung und Quanteneffizienz.

Ersterer lässt sich zum Beispiel mittels plasmonischer Strukturen erhöhen, letzterer hingegen im Rahmen der schwachen Kopplung an eine photonische Mode durch den Purcell-Effekt [Tam13] F_P steigern, der durch das Verhältnis

$$F_P = \frac{\gamma_{Kop}}{\gamma_0} \propto Q(\lambda^3/V_{eff}), \quad (2.14)$$

der gekoppelten Zerfallsrate γ_{Kop} zur ungekoppelten gegeben ist. Der Purcell-Faktor ist direkt proportional zum Qualitätsfaktor Q der verstärkenden Kavität, sowie indirekt zum effektiven Modenvolumen V_{eff} . Der Effekt basiert auf dem Prinzip, dass die lokale Zustandsdichte in der Umgebung des Emitters erhöht wird. Konkret wird dies zum Beispiel durch plasmonische Verstärkung oder optische Kavitäten umgesetzt, wie es in dieser Arbeit auch in den Kapiteln 7, 8 und 9 für SPEs in WSe₂ angewandt wird.

2.2 Plasmonik

Der Begriff der *Plasmonik* beschreibt heute einen Bereich der Festkörperphysik, der sich vorwiegend mit den optoelektronischen Eigenschaften von Metallen und deren Schnittstelle zu Dielektrika auf kleinen Skalen beschäftigt. Im Vergleich zu rein optischen Anwendungen kann hierbei das intrinsische Auflösungslimit beim Einsatz von Photonen umgangen werden, da die Begrenzung elektrischer Felder auf wenige Nanometer möglich ist [Tak97, Gra10]. Dies wiederum eröffnet eine

weite Spanne an neuen Optionen, wie etwa Laser und Verstärker [De 11, Ma13], optische Metamaterialien [Hes12], biochemische Sensoren [Ank08] sowie Antennen zum Übermitteln und Empfangen von Licht [Gia11]. Im besonderen Blickpunkt hierfür stehen Oberflächenplasmonen, die dank ihrer Licht-Materie-Wechselwirkung von fundamentalem Interesse und Gegenstand aktueller Forschung sind. So wurden bereits verschiedene Szenarien der Kopplung derer an diverse Quantenemitter wie etwa Quantenpunkte [Cha06, Aki07] und Stickstofffehlstellen [Kol09] demonstriert, wodurch effiziente Einzelphotonenquellen [Koe09, Che10, Gan12, De 12] oder auch Transistoren [Cha07, Kol11, Fra12] umgesetzt werden konnten.

In diesem Kapitel werden die physikalischen Grundlagen, die für die Beschreibung von Plasmonen nötig sind, erörtert. Angefangen bei dem Drude-Lorentzmodell wird das Plasmon als solches definiert. Danach stehen die lokalisierten Oberflächenplasmon-Polaritonen im Vordergrund, die eine wichtige Rolle an den Schnittstellen zu anderen Dielektrika wie etwa 2D-Materialien spielen. Der Grund hierfür sind die hohen Feldstärken, die an Metallpartikeln von nur wenigen Nanometern Größe entstehen können. Zuletzt wird noch die Kopplung der Plasmonen an Quantenemitter und der resultierende Einfluss auf deren Quanteneffizienz mit Blick auf Einzelphotonenquellen in WSe₂-Monolagen näher beleuchtet. Zu diesem Thema gibt es eine Vielzahl an hochwertiger Literatur und Lehrbüchern. Sofern nicht anders erwähnt, sind Formeln und Konzepte in den folgenden Kapiteln aus [Bha09] sowie [Nov12] entnommen.

2.2.1 Grundlagen

Wie sich ein Material grundsätzlich unter Einfluss eines äußeren elektrischen Feldes verhält, wird durch seine Dielektrizitätsfunktion ϵ beschrieben. Diese ist üblicherweise frequenzabhängig $\epsilon = \epsilon(\omega)$ und wird in ihrer komplexen Form

$$\epsilon = \epsilon' + i\epsilon'' \quad (2.15)$$

angegeben. Zudem gilt für den komplexen Brechungsindex $\mathbf{n} = n + i\kappa = \sqrt{\epsilon}$. Der reelle Teil n ist verantwortlich für die Dispersion in einem gegebenen Medium, wohingegen der imaginäre Teil κ dessen Absorption und Reflektion darstellt.

Im Weiteren steht der Einfluss elektrischer Felder auf Edelmetalle, wie sie in dieser Arbeit verwendet wurden (Silber und Gold), im Fokus. Deren optische Eigenschaften lassen sich durch $\epsilon(\omega)$ beschreiben und zeichnen sich durch ihr freies Elektronengas (= Plasma) mit der Dichte N und effektiven Masse m_e aus. Die Elektronen können

sich nahezu losgelöst von ihren positiv geladenen Kernen bewegen und somit einem äußeren, elektrischen Feld $\mathbf{E}(t) = \mathbf{E}_0 e^{-i\omega t}$ der Intensität \mathbf{E}_0 und Frequenz ω folgen. Die entsprechende Auslenkung um \mathbf{r} führt zu einem Dipolmoment $\mathbf{p} = e\mathbf{r}$, die sich kollektiv für das komplette Gas als Polarisation $\mathbf{P} = N\mathbf{p}$ ausdrücken lässt. Die Polarisation wiederum steht mit der Flussdichte \mathbf{D} über

$$\mathbf{D}(\omega) = \epsilon_0 \epsilon(\omega) \mathbf{E}(\omega) = \epsilon_0 \mathbf{E}(\omega) + \mathbf{P}(\omega) \quad (2.16)$$

in Zusammenhang. Durch Stöße erfahren die Elektronen in ihrer Bewegung eine Dämpfung $\gamma = \nu_F/l$ mit der Fermi-Geschwindigkeit ν_F sowie der mittleren freien Weglänge l . Dies lässt sich nach dem Drude-Sommerfeld-Modell [Som33] durch das Lösen der Bewegungsgleichung

$$m_e \ddot{\mathbf{r}} + m_e \gamma \dot{\mathbf{r}} = e \mathbf{E}_0 e^{-i\omega t} \quad (2.17)$$

mittels des Ansatzes $\mathbf{r}(t) = \mathbf{r}_0 e^{-\omega t}$ beschreiben. In diesem Ausdruck kommt keine Rückstellkraft vor, da es sich um freie Elektronen handelt. Die entsprechende Lösung der Differentialgleichung führt zu

$$\epsilon_{Drude}(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\gamma\omega} = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + \gamma^2} + i \frac{\gamma\omega_p^2}{\omega(\omega^2 + \gamma^2)} \quad (2.18)$$

mit der Plasmafrequenz $\omega_p = \sqrt{Ne^2/(m_e\epsilon_0)}$. Die kollektive Elektronenanregung in einem Metall wird *Plasmon* genannt. Der Dämpfungsterm γ kommt hauptsächlich durch die Streuung an Fehlstellen und mit Phononen zustande. Weiterhin ist der Imaginärteil von ϵ für Metalle im sichtbaren Bereich ungleich Null, was sich in der exponentiellen Abnahme des elektrischen Feldes mit zunehmender Eindringtiefe äußert. Der Realteil hingegen fällt in diesem Bereich üblicherweise negativ aus, was sich in der ausgeprägten Reflexion von Licht an der Metalloberfläche zeigt.

Außerdem sei noch darauf hingewiesen, dass die Behandlung innerhalb des Drude-Sommerfeld-Modells nur für niederfrequente Bereiche korrekt ist (für Gold z.B. >550 nm). Bei höheren Frequenzen müssen Interbandübergänge miteinbezogen werden, die im Modell der gebundenen Elektronen berücksichtigt sind. Da in dieser Arbeit primär Photonen im Bereich von 700 nm relevant sind, wird hierauf an dieser Stelle nicht weiter eingegangen.

Neben der Betrachtung im Drude-Modell, dem ein freies Elektronengas im gesamten Metall zugrunde liegt, kommt der Schnittstelle zwischen Metall und seiner

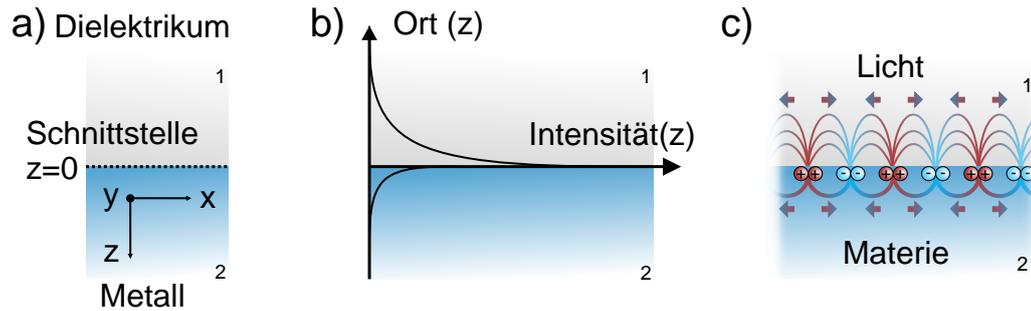


Abbildung 2.8: a) Koordinatensystem und Orientierung der Geometrie zur Beschreibung eines Oberflächenplasmons. Dieses bildet sich an der Grenzschicht in der x - y -Ebene bei $z = 0$ zwischen einem Dielektrikum ϵ_1 und dem Metall ϵ_2 aus. b) Intensität des elektrischen Feldes eines Oberflächenplasmons in der z -Richtung an einem beliebigen Punkt in der Ebene. Außerhalb der Schnittstellenebene kommt es zu einem exponentiellen Abklingen, da das Plasmon nur auf eine einzige Ebene beschränkt ist. c) Schematische Darstellung eines SPPs zu einem beliebigen Zeitpunkt. Der Licht-Materie-Charakter wird deutlich, der durch die elektromagnetische Welle im Dielektrikum und den Elektronen im Metall zu Stande kommt.

direkten Umgebung eine besondere Bedeutung zu. Dort bilden sich sogenannte Oberflächenplasmon-Polaritonen (SPP¹⁰) aus, die je nach vorliegender Geometrie über viele Mikrometer oder auch nur wenige Nanometer ausgedehnt sein können. Wie der Name schon vermuten lässt, bilden sich diese Anregungen nur an der Oberfläche von Metallen hin zu einem anderen Medium aus. Der Polaritonanteil hingegen deutet auf die Licht-Materie-Wechselwirkung hin, die eine zentrale Rolle spielt. Die lässt sich mit einer Geometrie wie in Abb. 2.8a) veranschaulichen: Die Schnittstelle zwischen den beiden Materialien mit $\epsilon_1(\omega)$ und $\epsilon_2(\omega)$ liegt in der x - y -Ebene bei $z = 0$, die Ausbreitung des SPPs erfolgt in x -Richtung. Tatsächlich ist das SPP nur auf die Schnittstelle zwischen Metall und dem anderen Medium beziehungsweise ein entsprechendes Nanopartikel lokalisiert. Dies hat zur Folge, dass das Feld außerhalb der Ebene exponentiell abklingen muss (Abb. 2.8b) und das E-Feld in beiden Halbräumen nur x und z -Komponenten enthalten kann. Das Resultat ist eine Welle, die sich in zwei unterschiedlichen Materialien ausbreitet und eine Kombination aus Licht- und Materiewelle darstellt (siehe Abb. 2.8c). Dies verdeutlicht noch einmal den Polaritoncharakter der SPPs, der in Kombination mit zum Beispiel 2D-Materialien

¹⁰engl.: surface plasmon polariton

ausgenutzt werden kann, um Einfluss auf die Monolagen zu nehmen. So durchdringen die starken elektrischen Felder an der Metalloberfläche die Monolage und können entsprechend deren optischen Eigenschaften modifizieren.

2.2.2 Einfluss lokalisierter Plasmonen auf Quantenemitter

Neben den Oberflächenplasmonen, die an der Schnittstelle eines Metall-Dielektrikums propagieren können, sind insbesondere lokalisierte Oberflächenplasmonen (LSPs¹¹), die sich in Nanostrukturen kleiner 100 nm ausbilden, von großer Bedeutung. Hierbei handelt es sich weniger um eine Welle, als viel mehr um eine einheitliche Auslenkung aller beteiligten Elektronen zur gleichen Zeit. Ursächlich dafür ist, dass die Eindringtiefe eines äußeren E-Feldes nun in der Größenordnung des Nanopartikels selbst liegt und den gesamten Partikel polarisiert. Dies führt zu einem zeitlich oszillierenden Dipol (siehe Abb. 2.9), der im Resonanzfall in der Lage ist, das eingehende elektrische Feld um den Faktor $\gg 10$ zu verstärken. Solche Metallstrukturen dienen gewissermaßen als Nanoantennen, die je nach Geometrie die Eigenschaften eingehender E-Felder auf sehr kleinem Raum modulieren können. Die charakteristische Länge L einer klassischen, länglichen Antenne korrespondiert in diesen Größenordnungen nicht mehr direkt mit der Wellenlänge λ des einfallenden (und ausgestrahlten) Lichts. Stattdessen muss eine geometrieabhängige, effektive Wellenlänge λ_{eff} betrachtet werden, die durch die lokalisierten Plasmonen zustande kommt und wesentlich kürzer als die des ursprünglichen Lichts ausfällt [Nov07]. Einen qualitativen Zusammenhang zwischen der Plasmawellenlänge λ_p und der Länge der Antenne lässt sich aus dem Fabry-Pérot-Modell gewinnen [Bar08, Tam11]. Hierbei wird in erster Näherung davon ausgegangen, dass die Enden der Antenne wie Spiegel wirken, sodass sich nur stehende Elektronenwellen in der Nanostruktur ausbilden. Dies führt direkt zu der Abhängigkeit $L \propto \lambda_p$, wonach längere Antennen zu einer Rotverschiebung der Plasmawellenlänge führen. In Kapitel 7 wird dieser grundlegende Zusammenhang anhand verschiedener Nanopartikelgeometrien wie etwa Rechtecken verdeutlicht.

Die Verstärkung elektrischer Felder nahe der Oberfläche von Metallpartikeln ist von besonderer Relevanz für Quantenemitter, die selbst auf Größenordnungen von wenigen Nanometern liegen. Durch die geringe Größe ist es oft schwierig, eine effiziente Kopplung zu erreichen. Typischerweise lässt sich ein Quantenemitter als Dipol \mathbf{p} am Ort \mathbf{r}_0 beschreiben. Hierbei kann die lokale Zustandsdichte ρ (LDOS¹²), die ein

¹¹engl.: localized surface plasmons

¹²engl.: local density of electromagnetic states

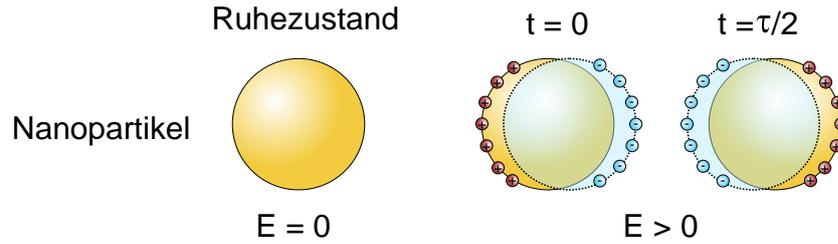


Abbildung 2.9: Einfluss eines äußeren elektrischen Feldes auf ein plasmonisches Nanopartikel. Für $E = 0$ (links) ist der Partikel neutral, wohingegen sich bei vorhandenem Feld die Ladungen trennen. Er kann dann als Dipol beschrieben werden, der über einen Zeitraum mit der Periodendauer τ oszilliert.

Maß dafür darstellt, welche elektromagnetischen Moden in einem gegebenen System vorhanden sind, wie folgt formuliert werden:

$$\rho_p(\mathbf{r}_0, \omega) = \frac{\omega^2}{\pi^2 c^3} P / P^0, \quad (2.19)$$

wobei die LDOS in Relation der abgestrahlten Leistung P zur klassischen Dipolformel $P^0 = |\mathbf{p}|^2 \omega^4 / (12\pi\epsilon_0 c^3)$ ausgedrückt wird. Diese kann durch ein LSP moduliert werden und zu einer Zunahme der spontanen Emission im Falle eines Quantenemitters führen, sofern dessen Dipolachse entsprechend ausgerichtet ist.

Diese Verstärkung lässt sich für LSPs [Tam13] mittels des Purcell-Faktors F_P aus Gl. 2.14 ausdrücken, der durch das Verhältnis der Zerfallsraten γ eines Emitters ohne und mit Kavität gegeben ist. Bedingt durch die ohmschen Verluste innerhalb des Metalls besitzen LSPs einen vergleichsweise geringen Q-Faktor. Die Zerfallsrate jedoch stellt nur einen Teil der gesamten Fluoreszenzrate γ_{Fl} eines nicht saturierten Emitters ohne Kavität mit der Quanteneffizienz η_i , der Anregungsrate γ_{Anr} sowie den nicht-strahlenden Verlusten γ_V dar (vgl. Gl. 2.13). Konkret führt eine Nanoantenne über die hohen elektrischen Felder beziehungsweise den Purcell-Effekt zu einer Zunahme von γ_{Anr} und γ_0 . Gleichzeitig steigt auch γ_V durch die bereits erwähnten ohmschen Verluste. Für Emitter, die $\eta_i = 1$ besitzen, kann deren Effizienz nicht weiter erhöht werden und spiegelt direkt die Erhöhung durch γ_{Anr} wider. Für $\eta_i \ll 1$ wird hingegen sowohl die Anregung als auch die strahlende Rekombination verstärkt und somit die gesamte Emissionsrate wesentlich gesteigert.

2.3 Grundlagen zirkularer Bragg-Gitter

Eine weitere Alternative zum Einsatz der zuvor genannten Plasmonik stellen zirkulare Bragg-Gitter (CBGs¹³) dar [Mah10, Dav11], deren Aufbau in Abb. 2.10a) schematisch gezeigt wird. Grundsätzlich besteht ein CBG aus einer dünnen Membran der Dicke d , die in der Ebene mit konzentrischen Gräben der Tiefe t , der Breite w und deren Periodizität Λ durchzogen ist. Folglich entspricht die Breite der Stege $s = \Lambda - w$. In der Mitte der Struktur befindet sich üblicherweise eine größere Scheibe mit dem Radius R . Entsprechend lautet auch ein Name für diese Strukturen 'Bullseye'. Solche Gitter besitzen die interessante Eigenschaft, Licht senkrecht zur Ebene, sprich aus der Ebene heraus, innerhalb eines relativ kleinen Winkels gaußförmig zu bündeln. Das resultierende Fernfeld ist in Abb. 2.10b) dargestellt. Daraus ergab sich anfangs vor allem die Verwendung in Oberflächenlasern [Bau01] oder als Auskoppler an eine Faser beziehungsweise ein Objektiv oberhalb des Gitters [Tai02]. Die Möglichkeit, einen Quantenemitter direkt in das Zentrum des CBGs zu setzen, prädestiniert sie für den Einsatz mit Einzelphotonenquellen [Dav11, Ate12, Sap15, Liu19b]. Dabei koppelt eine dipolartige Lichtquelle nahe der Oberfläche im Zentrum des CBGs an dessen Resonanzen. Das Licht wird innerhalb der Membran in z-Richtung durch den Brechungsindexunterschied zur Umgebung eingeschlossen. Je größer der Unterschied, desto stärker ist der resultierende Einschluss, weswegen ein Ansatz lautet, frei hängende Membranen der Dicke d zu prozessieren (vgl. Kap. 4.1). Damit geht einher, dass die Membran nicht vollständig durchgeätzt werden kann, weswegen sich die Ätztiefe t typischerweise im Bereich von $d/2 < t < d$ bewegt. Das E-Feld für einen im Zentrum befindlichen Dipol zeigt in der Seitenansicht in Abb. 2.10c) die signifikante Feldkonzentration in der Mitte senkrecht zur Oberfläche und ebenso eine grundsätzlich stärkere Auskopplung nach oben, bedingt durch das nicht komplette Durchätzen ($t < d$) [Dav11].

Das grundlegende physikalische Prinzip der CBGs beruht auf der Interaktion des Lichts mit seiner eigenen Reflexion innerhalb der Membran. Die Modulation des effektiven Brechungsindex n_{eff} durch das Gitter eröffnet die Möglichkeit, dass Moden in der Ebene mit solchen koppeln können, die aus der Ebene strahlen [Yar73]. Dies wiederum führt zur Bragg-Bedingung zweiter Ordnung für die Gitterperiode [Col12]:

$$\Lambda = \frac{\lambda_{Em}}{n_{eff}}, \quad (2.20)$$

¹³engl.: circular Bragg grating

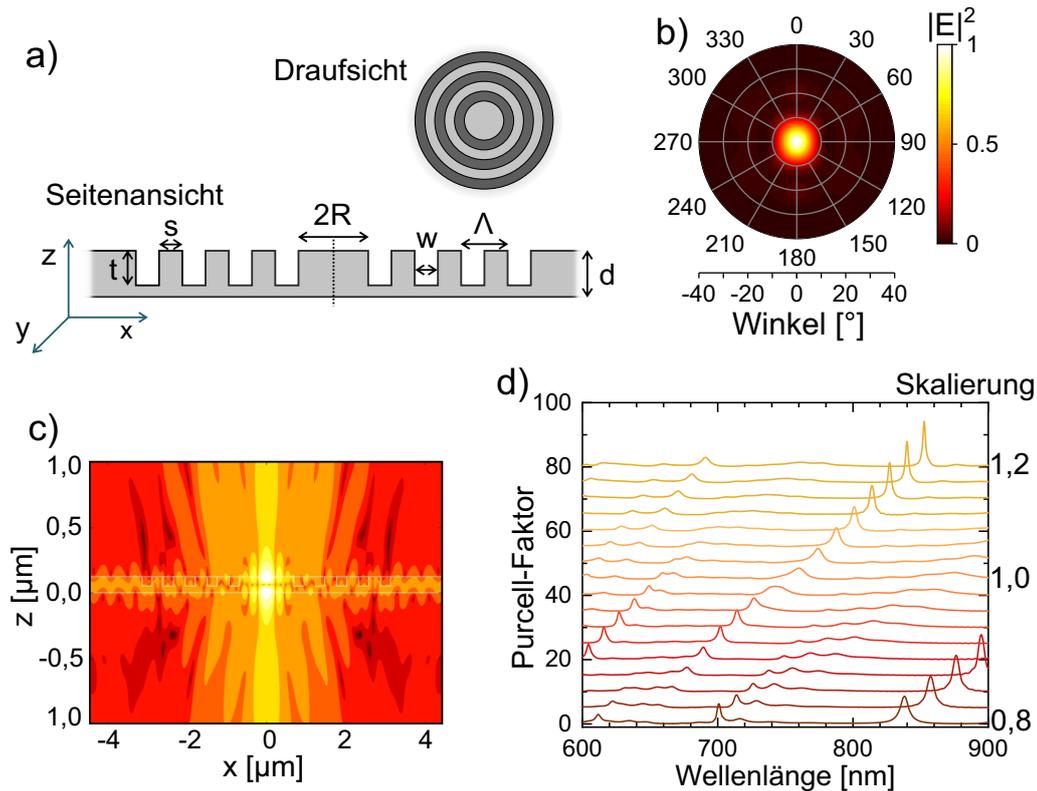


Abbildung 2.10: a) Draufsicht und Seitenansicht eines CBGs: Die Membran der Dicke d besitzt ein konzentrisches Gitter der Periode Λ mit der Grabentiefe t und Grabenbreite w sowie der Stegbreite s . Im Zentrum befindet sich eine Scheibe mit dem Radius R . b) Fernfeld (z -Richtung) eines im Zentrum platzierten Dipols. Das CBG reflektiert Licht primär zentral unter einem kleinen Winkel senkrecht zur Oberfläche. c) Die Seitenansicht des E-Feldes einer frei hängenden Membran zeigt wie in b) ein starkes Feld im Zentrum, das aus der Ebene in z -Richtung orientiert ist. Die leichte Asymmetrie des Feldes ist bedingt durch das nicht komplette Durchätzen. d) FDTD-Simulation des Purcell-Effekts eines CBGs in Abhängigkeit vom Skalierungsfaktor, der mit der Periode sowie Grabenbreite multipliziert wird. Für größeres Λ zeigt sich eine Rotverschiebung aller Moden. b) und c) stammen von unserem Kooperationspartner Dr. Marcelo Davanço, National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, USA.

mit der Emissionswellenlänge λ_{Em} sowie dem effektiven Brechungsindex n_{eff} , der sich aus der Kombination des Membranmaterials und der Luft ergibt [Har89]. Dies resultiert darin, dass Teile des reflektierten Lichts aus der Oberfläche austreten. Weiterhin führt der hohe Brechungsindexunterschied des Gitters zu einer starken Reflexion von Lichtwellen innerhalb der Membran, die das Licht im Zentrum bündelt.

Der Qualitätsfaktor eines CBGs bewegt sich im vergleichsweise niedrigen dreistelligen Bereich [Dav11], wobei dieser noch über eine Verringerung der Anzahl der Perioden reduziert werden kann. Damit einher gehen je nach Struktur und Parameter Purcell-Faktoren (vgl. Gl. 2.14) von bis zu 20, die zu einer stärkeren Lichtemission und kürzeren Lebenszeiten der gekoppelten Teilchen führen können. Die genauen Abmessungen des Gitters besitzen einen entsprechend großen Einfluss auf die sich ausbildenden Moden des CBGs, was sich in einer beispielhaften FDTD-Simulation¹⁴ in Abb. 2.10d) demonstrieren lässt. So verschieben sich die Resonanzen abhängig von den gegebenen Parametern spektral über einen Wellenlängenbereich von mehr als 200 nm. Der Skalierungsfaktor entspricht dabei einem Faktor a , der mit Λ und w multipliziert wird. Mit größeren Perioden geht eine Rotverschiebung einher. Zudem existieren neben der zentralen Mode noch mehrere, die alle direkt von der genauen Position des Emitters relativ zum Zentrum abhängen [Dav11]. Um nun den gewünschten Satz an Variablen zu finden, wird von Gl. 2.20 ausgehend die Struktur entsprechend mittels FDTD-Berechnungen optimiert. Hierbei sei nochmals erwähnt, dass jeder Parameter einen nicht vernachlässigbaren Einfluss auf die endgültigen Moden besitzt und somit auch prozessbedingte Unsicherheiten eine Rolle spielen.

Alternativ zur frei hängenden, nicht komplett durchgeätzten Membran bietet sich die Implementierung eines Spiegels unterhalb des CBGs an [Liu19b]. Durch eine dünne Schicht Gold kann nahezu das komplette, nach unten abgestrahlte Licht zurück in die Membran reflektiert werden, wodurch sich die Effizienz unabhängig von der Ätztiefe erhöhen lässt. Eine weitere Konsequenz ist die Möglichkeit, die Membran nun fest mit einem Substrat zu verankern, was zu einer erhöhten strukturellen Stabilität der Probe führt.

¹⁴ausgeführt in Lumerical Solution, siehe Anhang A.1

2.4 Photonenstatistik und Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung

Um eine Aussage über die zeitliche Korrelation von Licht treffen zu können, ist eine Betrachtung der zugehörigen Photonenstatistik nötig. Diese bietet Einblicke in die zugrunde liegende Physik eines Emitters. Insbesondere die Charakterisierung von nicht-klassischen Lichtquellen ist von zentraler Bedeutung für diese Arbeit. Mit den Mitteln der zweiten Quantisierung lässt sich die Statistik mit Hilfe der Erzeuger- und Vernichtungsoperatoren \hat{a}^\dagger beziehungsweise \hat{a} wie folgt beschreiben [Abr86]:

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle \hat{a}^\dagger(t)\hat{a}^\dagger(t+\tau)\hat{a}(t+\tau)\hat{a}(t) \rangle}{\langle \hat{a}^\dagger(t)\hat{a}(t) \rangle^2}. \quad (2.21)$$

Die Zeitdifferenz zweier Photonen zu einem fest definierten Zeitpunkt t wird durch τ ausgedrückt. Betrachtet man hingegen die Autokorrelation vom klassischen Standpunkt aus, so lässt sie sich durch die mittlere Intensität $\langle I \rangle$ ausdrücken. Hierdurch ergibt sich die vereinfachte Form [Bec01]:

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle I(t)I(t+\tau) \rangle}{\langle I(t) \rangle^2}. \quad (2.22)$$

In dieser Darstellung ist ersichtlich, dass die Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung die zeitliche Intensitätsverteilung beschreibt, was einen anschaulichen Zugang zu deren Bedeutung erlaubt. Im Experiment entspricht die Intensität dabei der registrierten Anzahl an Photonen zu einer gegebenen Zeit t . Konkret gibt die Funktion die Wahrscheinlichkeit an, im Abstand τ ein weiteres Photon zu detektieren, wenn zur Zeit t bereits ein solches emittiert wurde (siehe Abb. 2.11a)). Von besonderem Interesse ist der Punkt der Gleichzeitigkeit $\tau = 0$, der charakteristisch für die Art der Lichtquelle und deren Physik ist.

Grundsätzlich lassen sich Lichtquellen anhand ihrer Photonenstatistik in drei Arten einteilen: thermische, kohärente und nicht-klassische Emmitter. Solange die Intensität als klassisch betrachtet wird, kann für die ersten beiden Fälle mittels Cauchy-Schwartz'scher Ungleichung gezeigt werden, dass folgende Bedingungen an die Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung erfüllt sein müssen [Tho04]:

$$g^{(2)}(\tau) \leq g^{(2)}(0), \quad (2.23)$$

$$g^{(2)}(0) \geq 1. \quad (2.24)$$

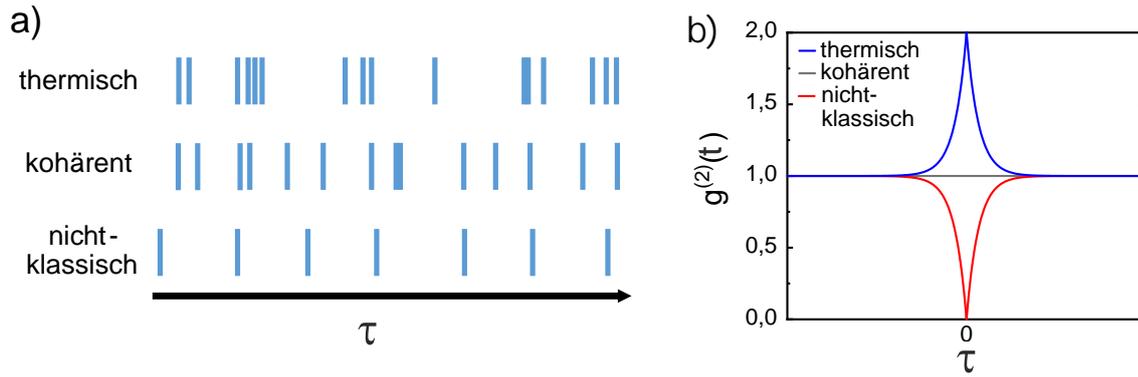


Abbildung 2.11: a) Vergleich des Verhaltens von thermischen, kohärenten und nicht-klassischen Lichtquellen hinsichtlich des zeitlichen Aussendens von Photonen. Im thermischen Fall kommt es zur gebündelten Emission, bei kohärenten Quellen zur unkorrelierten Emission und im nicht-klassischen Fall werden die Photonen zeitlich getrennt detektiert. b) Idealer Verlauf der $g^{(2)}$ -Funktion für die drei genannten Fälle um $\tau = 0$. Das Bunching (blau) und Anti-Bunching (rot) zeigen sich für thermische respektive Einzelphotonenemitter (nicht-klassisch).

Konkret bedeutet dies, dass sich stets ein Maximum für $\tau = 0$ ausbildet, sprich die Wahrscheinlichkeit erhöht ist, mehr als ein Photon gleichzeitig zu detektieren. Infolgedessen zeichnet sich die zeitliche Intensitätsverteilung durch das unregelmäßige Emittieren von Photonenbündeln aus, weshalb dieser Effekt auch Bunching¹⁵ genannt wird. Klassische Lichtquellen wie zum Beispiel thermisches Licht folgen der Bose-Einstein-Verteilung hinsichtlich ihrer Wahrscheinlichkeitsverteilung und zeichnen sich durch $g^{(2)}(0) = 2$ aus, wie es in Abb. 2.11b) gezeigt wird.

Kohärentes Licht hingegen lässt sich durch die Poisson-Verteilung beschreiben, welche von Lasern in guter Näherung erreicht wird. Dabei erfolgt das Aussenden der Photonen völlig unkorreliert zueinander, was einem $g^{(2)}(0)$ Wert von 1 entspricht.

Die Gleichungen unter 2.23 gelten allerdings nur in der klassischen Betrachtung. Im nicht-klassischen Fall hingegen, wie etwa bei optischen Übergängen in Atomniveaus, werden diese verletzt und stattdessen durch

$$g^{(2)}(0) = 1 - \frac{1}{n_i} \quad (2.25)$$

¹⁵engl.: bündeln

beschrieben, wobei n_i die Anzahl der individuellen Emitter darstellt. Für eine ideale Einzelphotonenquelle $n_i = 1$ gilt $g^{(2)}(0) = 0$, es wird also zu einem gegebenen Zeitpunkt t immer nur maximal ein Photon emittiert und nie ein zweites zur gleichen Zeit gemessen. Dies steht im starken Kontrast zu den beiden oben erwähnten, klassischen Fällen und wird als Anti-Bunching bezeichnet. Handelt es sich stattdessen um eine Quelle mit $n_i = 2$, so beträgt $g^{(2)}(0) = 0,5$, weswegen auch ein Wert von $\leq 0,5$ als wichtiges Kriterium gilt, ob es sich bei einem betrachteten Emitter um eine Einzelphotonenquelle handelt.

Die Beschreibung bis hierhin stellt den theoretischen Idealfall dar. In der experimentellen Realität allerdings muss man das Auflösungsvermögen der verwendeten Photonendetektoren miteinbeziehen, da jedes detektiertes Photon einer zeitlichen Ungenauigkeit, bedingt durch den konkreten Messaufbau, unterliegt. Mathematisch betrachtet lässt sich dies in einer Faltung der $g^{(2)}(\tau)$ -Funktion mit einer vom Auflösungsvermögen der Detektoren abhängigen Gauß-Funktion $G(\sigma, t)$ ausdrücken [Bec01]:

$$g^{(2)}(t) = g^{(2)}(t) * G(\sigma, t). \quad (2.26)$$

Hierbei fließt die Zeitauflösung t_{detektor} in die Standardabweichung $\sigma = t_{\text{detektor}}/2\sqrt{\ln 2}$ ein. Dabei gilt, je schlechter die Auflösung, desto verwaschener ist die gemessene Funktion und desto näher ist der experimentell gefundene, fehlerbehaftete $g^{(2)}(0)$ -Wert fälschlicherweise an eins.

3 Experimentelle Techniken

In diesem Abschnitt werden die verwendeten experimentellen Techniken und Aufbauten erörtert, die für diese Arbeit von Bedeutung sind. Zunächst wird die Exfolierung von Monolagen und deren Transfer dargelegt. Alle TMDC-Strukturen wurden im Reinraum prozessiert und hergestellt, sofern nicht anders erwähnt. Anschließend wird der verwendete Spektroskopiemessplatz und seine Besonderheiten erläutert, der für die Charakterisierung benötigt wurde.

3.1 Exfolierung und Transfer von Monolagen

Grundsätzlich lassen sich Übergangsmetall-Dichalkogeniden über zwei unterschiedliche Ansätze herstellen, die sich beide konzeptionell stark von einander unterscheiden. Unter dem Einsatz von epitaktischen Verfahren wie zum Beispiel der chemischen Gasphasenabscheidung lassen sich einzelne Schichten verschiedener TMDCs auf diverse Substrate aufbringen [Cha14], deren optische Qualität in den letzten Jahren stetig verbessert werden konnte. Dieses Verfahren ist jedoch sehr aufwendig und erfordert entsprechenden Maschinen- und Personaleinsatz.

Demgegenüber steht die Variante der mechanischen Exfolierung, wie sie bei Graphit erstmals Anwendung fand [Nov04] und zur Herstellung der ersten Graphenschichten führte. In den folgenden Jahren wurde dieses Verfahren bereits auf verschiedenste Materialien wie Bornitrid, komplexe Oxide und diverse TMDCs wie MoS₂ ausgeweitet und erfolgreich angewandt [Nov05, Mak10, Li13]. Für diese Art der Probenherstellung spricht insbesondere der geringe Material-, Personal- und damit verbundene Kostenaufwand sowie die geringe Einstiegshürde. Man benötigt lediglich das gewünschte Material und einen flexiblen, selbsthaftenden Streifen wie zum Beispiel Scotch-Tape oder Tesafilm.

Alle Arten der mechanischen Exfolierung beginnen mit dem Volumenmaterial des gewünschten Stoffs, das sich zum Beispiel kommerziell erwerben lässt (2D Semiconductors, HQ graphene). Für die vorliegende Arbeit stammt es jedoch zum Großteil

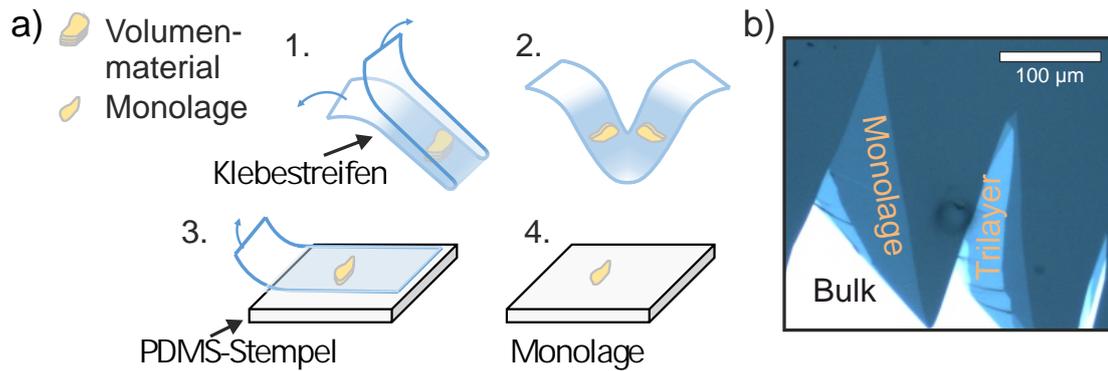


Abbildung 3.1: a) Typischer Exfolierungsprozess: 1. Das Volumenmaterial wird auf einem Klebestreifen platziert und gefaltet. 2. Durch mehrmaliges Auseinanderziehen wird das Stück ausgedünnt 3. Der Klebestreifen wird kopfüber auf den PDMS-Stempel aufgedrückt. 4. Beim anschließenden Abziehen des Streifens bleiben Monolagen auf dem PDMS-Stempel zurück. b) Exemplarisches Bild einer exfolierten Monolage am optischen Mikroskop. Die ML besitzt die höchste Transparenz, die mit zunehmender Schichtanzahl abnimmt.

aus einer Kooperation mit der Gruppe von Prof. Dr. Tongay der Arizona State University. Konkret standen verschiedene TMDCs wie MoSe_2 , MoS_2 , WSe_2 und WS_2 in unterschiedlichen Dotierungen zur Verfügung, wobei primär WSe_2 zum Einsatz kam. Der Exfolierungsprozess ist in Abb. 3.1a) dargestellt. Zunächst wird aus dem Volumenstück ein möglichst gleichmäßig flaches und großflächiges Stück mittels einer Pinzette oder eines Skalpells abgezogen bzw. herausgeschnitten. Hierbei ist zu beachten, dass dieses Startstück einen wichtigen Einfluss auf die Qualität und insbesondere Größe der am Ende vorhandenen Monolagen besitzt. Je glatter dieses ist, desto höher ist die Wahrscheinlichkeit, dass sich im Folgenden viele große und saubere Stückchen bilden. Nun legt man das Startstück mittig auf das Klebeband seiner Wahl (hier handelsüblicher Tesafilm) und faltet es so, dass nach dem Auseinanderziehen zwei Teile des ursprünglichen Volumenmaterials vorhanden sind. Eine oft genutzte Alternative zu Tesafilm ist Nitto-Tape (SPV-224PR-MJ) [CG14]. Den Vorgang des Faltens und Auseinanderziehens wiederholt man nun solange, bis eine ausreichende Fläche auf dem Klebestreifen bedeckt und das Anfangsstück ausgedünnt ist. Für den nächsten Schritt benötigt man einen dünnen Streifen Polydimethylsiloxan (PDMS), ein transparentes, flexibles Polymer, dessen Haftkraft geringer ist als bei Tesafilm. Auf diesen drückt man das ausgedünnte Material der TMDCs auf und zieht es wieder ab. Hierbei bleiben nun einige Stücke auf dem PDMS und mit etwas Glück auch einige Monolagen kleben. Zu deren Identifizierung bietet sich ein optisches

Mikroskop an, da der Kontrast der TMDCs von deren Schichtdicke abhängt. Er nimmt insbesondere im einstelligen Lagenbereich immer weiter ab, bis hin zur nahezu durchsichtigen Monolage (siehe Abb. 3.1b)). Mit etwas Erfahrung lassen sich solche ML-Flocken gut erkennen und die Fundstelle mit einem Skalpell in große, handliche PDMS-Stücke für die Weiterverarbeitung ausschneiden. Der ganze Prozess ist weitestgehend materialunabhängig, lediglich der Kontrast der Monolage kann sich leicht unterscheiden. Die Größe der exfolierten Monolagen kann stark schwanken und hängt – wie oben erwähnt – direkt mit dem Ausgangsstück zusammen. Ist dieses bereits klein oder gebrochen/zerworfen, so sinken auch die Chancen, ein schönes, großes Stück Monolage zu generieren. Die Größenordnung der Monolagen bewegt sich hierbei im Bereich von wenigen Mikrometern bis hin zu einigen 100 μm , wobei die Form oftmals langgezogenen Streifen entspricht. Die typische Größe allerdings bewegt sich im Bereich von wenigen 10 μm . In allen Fällen hängt die Monolage direkt an einem dickeren Materialstück, was sich aufgrund seiner guten Sichtbarkeit für den folgenden Transferprozess als Vorteil erweist.

TMDCs haften dank der Van-der-Waals-Wechselwirkungen auf vielen Oberflächen und lassen sich mittels des trockenen¹ Transferprozesses [CG14] unkompliziert auf ein gewünschtes Zielsubstrat transferieren, wie in Abb. 3.2,a veranschaulicht. Hierfür wird das präparierte PDMS-Stück mit der ML auf einen durchsichtigen Objektträger aufgebracht und in einen modifizierten Mikroskopaufbau (siehe Abb. 3.2b) eingebaut. Dieser Aufbau besteht aus einem handelsüblichen Mikroskop, dessen Tisch eine stabile XYZ-Positionierung erlaubt. Das Zielsubstrat wird auf dem Tisch durch Unterdruck angesaugt und stabilisiert. Daneben steht ein weiteres, bewegliches XYZ-System, auf das eine Y-Klemme montiert ist. In diese Vorrichtung lässt sich der Objektträger mit dem PDMS samt ML kopfüber einklemmen, sodass sie in Richtung Substrat ausgerichtet ist. Da sowohl das PDMS als auch der Objektträger optisch durchlässig sind, lassen sich beide mit Hilfe des Mikroskops in Position bringen. Der Arbeitsabstand des verwendeten Objektivs muss lediglich groß genug sein, um ML und Substrat fokussieren zu können, auch wenn diese zu Beginn noch einige Millimeter voneinander entfernt sind. Nun bewegt man die ML über das Substrat in Position und bringt die beiden stetig näher zusammen. Der Vorgang des Transfers lässt sich im Mikroskop dank der gut sichtbaren Kontaktlinie sehr gut verfolgen. Anschließend entfernt man den PDMS-Streifen wieder langsam vom Substrat und betrachtet, ob der Transfer erfolgreich war. Die Idee dahinter ist, dass beim langsamen Abziehen die Haftung

¹engl.: dry-stamped

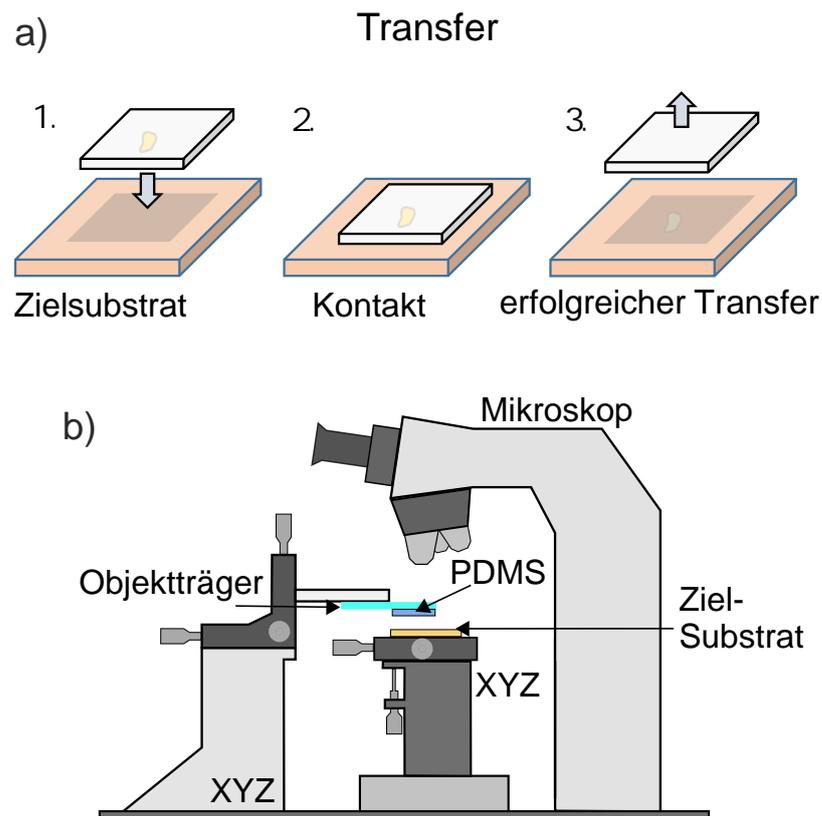


Abbildung 3.2: a) Transferprozess nach der trockenen Transfermethode: die Monolage auf dem PDMS-Stück wird über dem Zielsubstrat in Position gebracht, der Kontakt hergestellt und anschließend wieder langsam gelöst. Die Monolage befindet sich danach auf dem Substrat an der definierten Stelle. b) Schematische Darstellung des Transferaufbaus. Der Objektträger samt PDMS und das Substrat befinden sich jeweils auf einer XYZ-Stage, um die Position einstellen zu können. Der gesamte Prozess lässt sich durch das Mikroskop beobachten.

der ML am Substrat größer als am PDMS ist. Falls nicht erfolgreich, wiederholt man die Prozedur erneut, wobei üblicherweise die Monolage mit zunehmenden Versuchen in Mitleidenschaft gezogen wird und brechen kann. Die Positionsgenauigkeit beträgt wenige Mikrometer und wird primär durch die Stabilität sowie Ausrichtung der beiden XYZ-Stages während des Transfers bestimmt. Sind sie nicht perfekt parallel zueinander ausgerichtet, kommt es zu einer Verschiebung auf den letzten Millimetern vor dem Kontakt, die bei positionssensitiven Vorgängen kritisch ist und besonderer Vorsicht bedarf. Zudem sollte darauf geachtet werden, Scherbewegungen zwischen den beiden Oberflächen weitestgehend zu reduzieren. Um die Viskosität des PDMS und die Chancen eines erfolgreichen Transfers zu erhöhen, besteht auch die Möglichkeit, das

Substrat auf bis zu 160°C aufzuheizen. Es empfiehlt sich weiterhin, eine weitestgehend saubere und glatte Stelle für den Transfer auszuwählen und gegebenenfalls die Oberfläche des Substrates vorher mittels Sauerstoffplasma zu reinigen.

Neben der trockenen Methode gibt es noch weitere, nasschemische Verfahren unter dem Einsatz von Wasser [Sch10] oder Polyvinylalkohol [Zom11]. Alternativ kommen auch diverse Polymere als Transferplattform zum Einsatz, die im Laufe des Prozesses weggeschmolzen werden [Dea10]. Allen Varianten ist zugleich, dass hierbei das zu transferierende Material mit diversen Lösungen und Flüssigkeiten in Kontakt kommt, die dessen Oberfläche ungewollt kontaminieren oder verändern können. Um dies zu verhindern und eine erhöhte Kontrolle über die Qualität der MLen zu erreichen, wird in dieser Arbeit nur die oben beschriebene, trockene Variante verwendet.

3.2 Optische Charakterisierung mittels Mikrophotolumineszenz

Zur Charakterisierung der optischen Eigenschaften wurde ein Mikrophotolumineszenzaufbau verwendet, wie er schematisch in Abb. 3.3 dargestellt ist. Die Probe wurde in einen Heliumdurchflusskryostaten (Janis ST-500) auf einem Kältefinger montiert, der eine Betriebstemperatur bis hinab zu 4,2 K ermöglicht. Zur Temperaturkontrolle befindet sich ein Sensor am Kältefinger, der über einen entsprechenden Controller ausgelesen werden kann. Um die Arbeit mit Flüssighelium zu ermöglichen, wird der Kryostat mittels einer Vor- und Turbopumpe (Pfeiffer Vacuum) auf bis zu 10^{-6} mbar abgepumpt. Der Kryostat selbst ist liegend auf zwei Hochpräzisions-Linearverstellern von PI Instruments (M-511.DD1) befestigt, die eine closed-loop Positionierung in der Labortischebene mit einer Genauigkeit von bis zu 100 nm ermöglichen. Diese Präzision ist erforderlich, da die untersuchten Strukturen auf sehr kleinen Raum ($<1 \mu\text{m}$) begrenzt sind. Zudem ermöglicht dieser Aufbau eine Abtastung der Probe und die Erstellung einer Karte der Photolumineszenz an einer gewünschten Stelle.

Zur optischen Anregung der Proben stehen diverse Laser zur Verfügung. Hauptsächlich wird dabei ein grüner Dauerstrichlaser (CW²-Laser) mit einer Wellenlänge von 532 nm verwendet. Weitere Optionen stellen eine blaue (380- 400 nm) gepulste/cw Laserdiode, ein durchstimmbares Tsunami- (Spectra-Physics) und ein MIRA-System (COHERENT) dar. Die letzten beiden sind im gepulsten sowie Dauerstrichbetrieb bei

²engl.: Dauerstrich

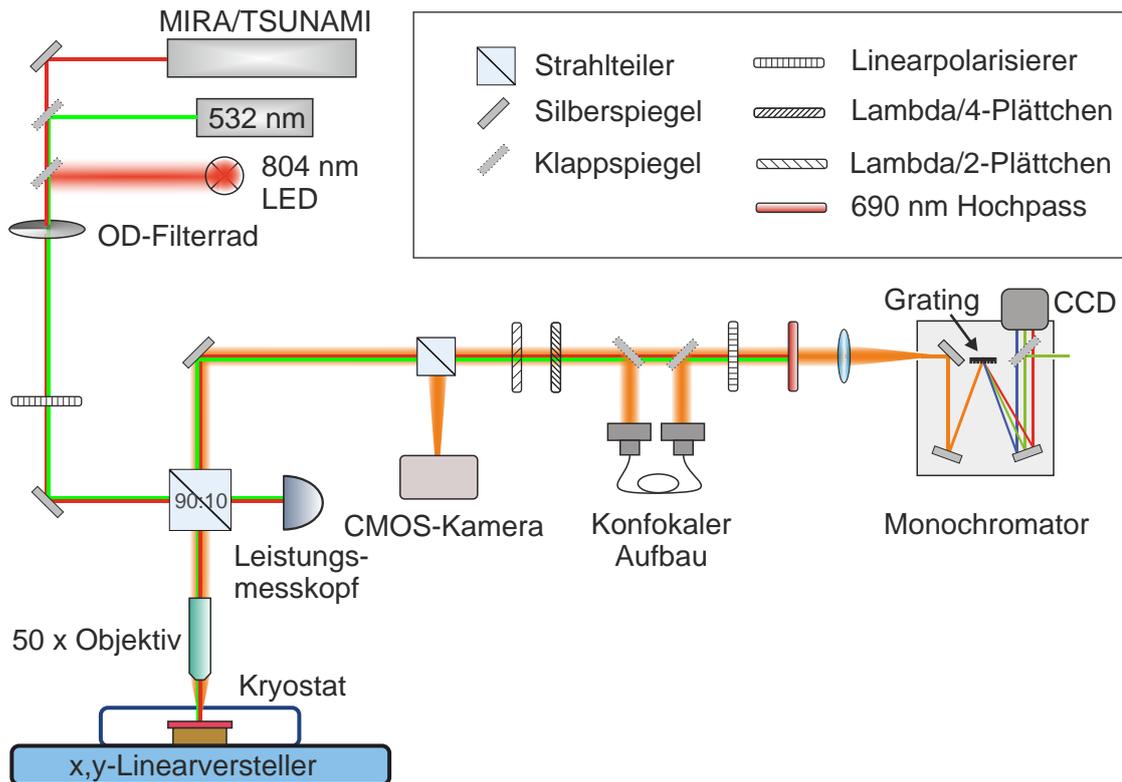


Abbildung 3.3: Mikrophotolumineszenzaufbau: Verschiedene Lasersysteme sowie eine rote LED können über Silberspiegel in den Anregungspfad eingekoppelt werden. Über ein durchstimmbares Filterrad sowie einen Linearpolarisator wird das Laserlicht auf einen 90:10 Strahlteiler gelenkt und von dort durch ein 50x Objektiv auf die Probenoberfläche fokussiert. Die Emission gelangt auf dem gleichen Pfad zurück über den Strahlteiler und wird anschließend durch die optionalen Poloptiken sowie den konfokalen Aufbau in den Monochromator geleitet. Dort wird sie spektral zerlegt entweder auf die CCD gelenkt oder seitlich für weitere Messungen ausgekoppelt.

Wellenlängen von 700 bis zu 1050 nm und im Femto- oder auch Picosekundenbereich nutzbar. Optional steht auch ein Frequenzverdoppler für beide zur Verfügung, um gepulst im Bereich von 400 nm-500 nm arbeiten zu können. Je nach Anwendung werden die Laser entweder Freistrahler oder per Faser in den Messaufbau eingekoppelt. Der weitere Aufbau ist weitestgehend unabhängig von dem verwendeten Laser. So wird die Anregungspolarisation immer mittels eines Linearpolarisators fixiert sowie Silberspiegel verwendet, die im Bereich von 400 nm bis 1500 nm einen sehr hohen, nahezu polarisationsunabhängigen Reflexionsgrad von 95% besitzen. Ein optisches Filterrad ermöglicht die stufenlose Änderung der Anregungsleistung, die von wenigen Nano- bis zu mehreren Mikrowatt reicht. Anschließend wird der Laserstrahl mit Hilfe

eines 90/10-Strahlteilers aufgespalten, wobei im transmittierenden Arm ein Leistungsmesser zur Messung der Anregungsleistung steht. Der reflektierte Teil wird durch ein 50x Objektiv (Mitutoyo M Plan Apo NIR 50x) mit einer numerischen Apertur (NA) von 0,42 gelenkt. Wichtig hierbei ist der vergleichsweise große Arbeitsabstand von 17 mm, um die Verwendung des Kryostaten zu ermöglichen. Der Fokus lässt sich über eine Mikrometerschraube sowie ein Piezoelement fein anpassen. Der kollimierte Laserstrahl wird durch das Objektiv auf die Probe zu einem Punkt mit etwa 3 μm fokussiert. Auf dem gleichen Weg zurück bündelt jenes das ausgehende Messsignal, das nun durch den Strahlteiler zu 90% transmittiert und in Richtung Monochromator geleitet wird. An dieser Stelle können nun diverse Polarisationsoptiken wie $\lambda/2$ oder $\lambda/4$ -Verzögerungsplättchen eingebaut werden, um polarisationsaufgelöste Messungen durchzuführen. Ebenso besteht die Option eines konfokalen Aufbaus, in dem das Signal wieder in eine Singlemode-Faser ein- und direkt ausgekoppelt wird. Hierdurch kann die örtliche Auflösung der spektralen Abtastung erhöht werden.

Nun fokussiert eine Sammellinse das Probensignal auf den Eingangsspalt des Monochromators (SpectraPro 750i, Princeton Instruments), der das Licht je nach gewünschter Auflösung über eines von drei möglichen Gittern (300, 1200 und 1500 Striche/mm) spektral zerlegt. Das in seine Wellenlängen aufgespaltene Signal gelangt üblicherweise auf die stickstoffgekühlte CCD³-Kamera, die dank ihres Siliziumchips eine hohe Quanteneffizienz im Bereich von 500 nm - 800 nm besitzt und somit ideal für die vorliegende Arbeit ist. Alternativ dazu kann das Signal auch seitlich aus dem Monochromator ausgeworfen und mittels der Spaltbreite wiederum selektiert werden. So ist es möglich, nur eine Bandbreite von einem Nanometer oder weniger (je nach Gitter) für weitere optische Aufbauten auszuwählen.

Um die Probenoberfläche auf dem PC betrachten zu können, ist es möglich, einen Klappspiegel in den Strahlengang vor dem Monochromator einzuklappen, der das Bild auf eine CMOS⁴-Kamera (Thorlabs) lenkt. Für die Ausleuchtung der Oberfläche wird eine rote LED (804 nm, Thorlabs) verwendet, die über einen Strahlteiler im Anregungspfad in das System eingekoppelt ist.

³engl.: charge coupled device

⁴engl.: complementary metal-oxide-semiconductor

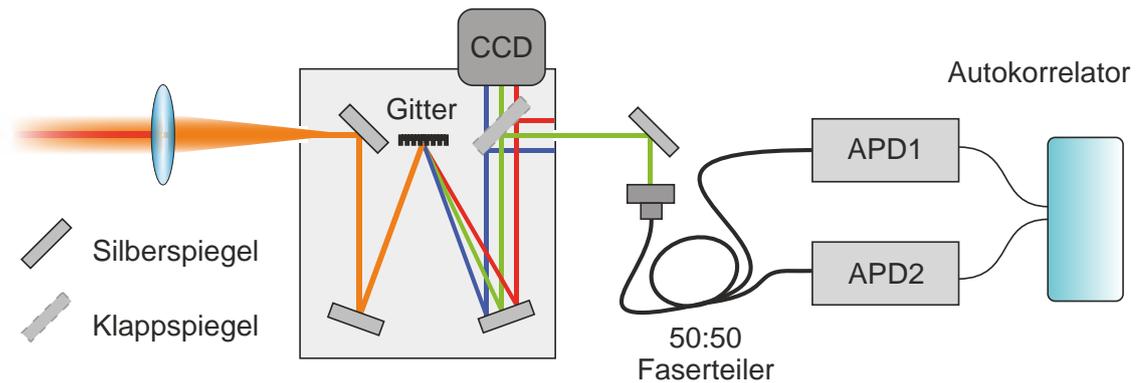


Abbildung 3.4: Autokorrelationsaufbau: Nachdem das Signal im Monochromator spektral zerlegt wurde, wird es anschließend über einen Spiegel seitlich ausgeworfen. Durch die Spaltgröße lässt sich das spektrale Fenster variieren, das anschließend in eine Faser gekoppelt wird. Dort wird das Signal in einem 50:50 Faserteiler auf zwei APDs gelenkt, die einzelne Photonen detektieren und die elektrischen Impulse zum Autokorrelator weiterleiten. Für Lebenszeitmessungen wird nur eine APD und kein Strahlteiler verwendet.

3.3 Messaufbau für Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung und Lebenszeit

Neben Photolumineszenzmessungen werden ebenso Messungen der Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung sowie Lebenszeit durchgeführt. Hierfür wird der in Kap. 3.2 beschriebene Aufbau verwendet und das Signal seitlich ausgeworfen (Abb. 2.11). Im weiteren Verlauf kollimiert eine Sammellinse das Signal, wonach es in eine Multimodefaser eingekoppelt wird. Für die $g^{(2)}$ -Messung wird ein typischer Hanbury-Brown und Twiss-Aufbau [Bro54] (HBT-Setup) benutzt, indem das Signal über einen 50/50-Faserstrahlteiler aufgeteilt und jeder Arm auf einen eigenen Lawinenphoto-detektor (APD⁵) gesteuert wird. Die verwendeten APDs besitzen eine Zeitauflösung von 350 ps und sind auf eine hohe Quanteneffizienz um 750 nm ausgelegt. Trifft ein Photon auf den Sensor der APD, wandelt sie diese in einen elektrischen Impuls um, der wiederum an einen Autokorrelator (TimeTagger 2.0, Swabian Instruments) geleitet wird. Die Idee hinter dem Aufbau besteht darin, dass man den Zeitunterschied zwischen der Detektion zweier Photonen in unterschiedlichen Armen ermittelt und statistisch erfasst. Im Falle einer idealen APD müsste man das Signal nicht aufteilen, da diese jedes Photon beliebig genau messen könnte. Bedingt durch ihren Aufbau

⁵engl.: avalanche photo detector

jedoch besitzt jede APD eine gewisse Totzeit nach der Detektion eines Teilchens von mehreren Nanosekunden, sodass innerhalb dieser Zeit kein weiteres Photon erkannt werden kann. Um dennoch Aussagen über den $g^{(2)}(\tau)$ -Wert bei einer Zeitdifferenz von $\tau = 0$ treffen zu können, ist eine zweite APD vonnöten, mit der die Totzeit umgangen werden kann. Trifft ein Photon auf eine der beiden APDs auf, beginnt die Messung des Zeitunterschieds, welche bei der erneuten Detektion eines Photons auf der zweiten APD gestoppt wird. Trägt man den Unterschied, wie in 2.4 erläutert, auf, so erhält man die Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung. Dies funktioniert sowohl bei CW als auch gepulster Anregung in gleichem Maße.

Im Gegensatz dazu benötigt man für Lebenszeitmessungen nur eine APD und keinen Strahlteiler, dafür aber immer einen gepulsten Laser. Das Signal wird komplett auf einen Detektor gelenkt und mit einem Referenzsignal – üblicherweise vom Anregungslasers bereit gestellt – korreliert. Was man hierbei im physikalischen Sinne erhält, ist der Zeitunterschied zwischen Anregung eines Zustandes (Laserpuls) und dessen Abregung durch Aussenden eines Photons mit durch den Monochromator selektierter Wellenlänge. Dies stellt sich in der Regel als exponentieller Abfall dar, hängt im Detail aber von der Dynamik des betrachteten Systems ab.

4 Probenprozessierung

Die in dieser Arbeit verwendeten Proben basieren auf verschiedenen Materialsystemen, die in teilweise längeren Prozessen aufwendig strukturiert werden müssen. Das Ziel der beiden folgenden Herstellungsverfahren ist die Realisierung eines zirkularen Bragg-Gitters, das zur Kopplung an WSe_2 -Monolagen und deren Quantenemitter benutzt werden kann. Bei Ersterem kommen frei hängende InGaP-Membranen zum Einsatz, die komplett von Luft umgeben sind. Im Zweiten hingegen wird die Herstellung von AlGaAs-basierte Membranen erörtert, die aufwendig in einem Flip-Chip-Prozess hergestellt werden. Statt frei zu hängen, liegen diese am Ende fest verbunden direkt auf einem Substrat. Im letzten Teil des Kapitels steht die nanometergenaue Materialabscheidung mittels Elektronenstrahl im Fokus. Dieser Schritt ermöglicht die Positionierung kleiner Nanotürmchen aus Siliziumdioxid in der Mitte der zirkularen Bragg-Gitter.

4.1 Zirkulare Bragg-Gitter-Membranen basierend auf InGaP

Zwei InGaP-Proben finden in der vorliegenden Arbeit Anwendung, die sehr ähnlich aufgebaut sind und auf kommerziell gekauften GaAs-Wafern basieren. Der Prozess stellt sich wie folgt dar: Mittels Molekularstrahlepitaxie (MBE) wird zunächst eine $1\ \mu\text{m}$ dicke $\text{Al}_{0,7}\text{Ga}_{0,3}\text{As}$ -Opferschicht, und anschließend entweder eine $120\ \text{nm}$ (Probe A) oder eine $190\ \text{nm}$ (Probe B) dicke Schicht InGaP abgeschieden. Bei Probe B befinden sich in der Mitte der InGaP-Schicht noch InP-Quantenpunkte, die als aktives Medium eine spätere Spektroskopie der optischen Kavitäten erleichtern sollen. Eine Übersicht der Aufbauten ist in Abb. 4.1a) und b) abgebildet. Die Proben sind für die Verwendung mit zirkularen Bragg-Gittern ausgelegt, um eine Verstärkung der Photolumineszenz im Bereich von $750\ \text{nm}$ zu ermöglichen. Deren Dicken wurden, wie in Kapitel 2.3 erörtert, basierend auf FDTD-Simulationen entsprechend gewählt. Um einen möglichst hohen Brechungsindexkontrast der Membran zur Umgebung zu

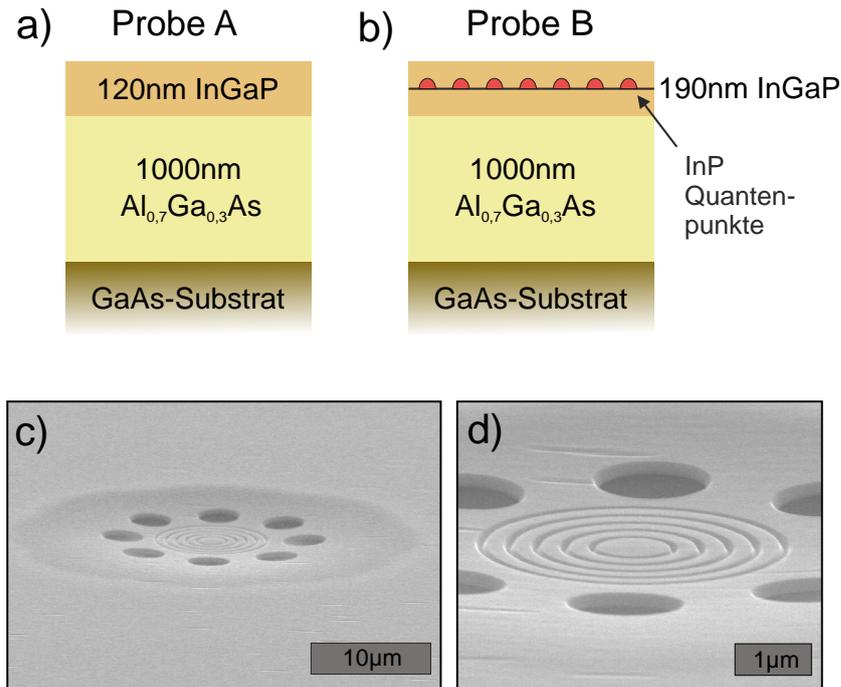


Abbildung 4.1: Aufbau der beiden InGaP-Proben: a) Auf einem GaAs-Wafer befindet sich eine 120 nm dünne InGaP-Schicht auf einer 1 μm AlGaAs-Opferschicht. b) Analog zu a), wobei die InGaP-Schicht 190 nm dick ist. Weiterhin befinden sich InP-Quantenpunkte in deren Mitte. c) und d) SEM-Aufnahmen fertigprozessierter, freihängender Membranen. Der unterätzte Bereich ist deutlich am helleren Kontrast zu erkennen, ebenso wie das Durchhängen der Membran.

erreichen, werden freihängende Membranen verwendet ($n_{\text{InGaP}} = 3,32$, $n_{\text{Luft}} \approx 1$). SEM¹-Bilder der fertigen Struktur sind in Abb. 4.1c) und d) dargestellt. Es ist deutlich zu erkennen, wie die Membran im Vergleich zur Umgebung durchhängt.

Die zur Herstellung benötigten Prozessschritte sind in Abb. 4.2 dargestellt und werden im Folgenden erklärt: Zunächst wird auf die Probe eine 10 nm dünne Polymethylmethacrylat-Schicht (PMMA) mittels Rotationsbeschichtung aufgeschleudert, die als Ätzmaske dient. Anschließend wird mit Elektronenstrahlolithographie das Muster der gewünschten CBGs in das PMMA geschrieben, sodass die InGaP-Oberfläche dort frei liegt, wo diese im folgenden Schritt entfernt werden soll. Hierfür wird das Verfahren des Plasmaätzens angewandt, wodurch die Strukturen im zweistelligen Nanometerbereich in die Oberfläche geätzt werden. Um nun allerdings freistehende Membranen zu erzeugen, muss die AlGaAs-Opferschicht entfernt werden. Der Zugang

¹engl.: scanning electron microscope, Rasterelektronenmikroskop

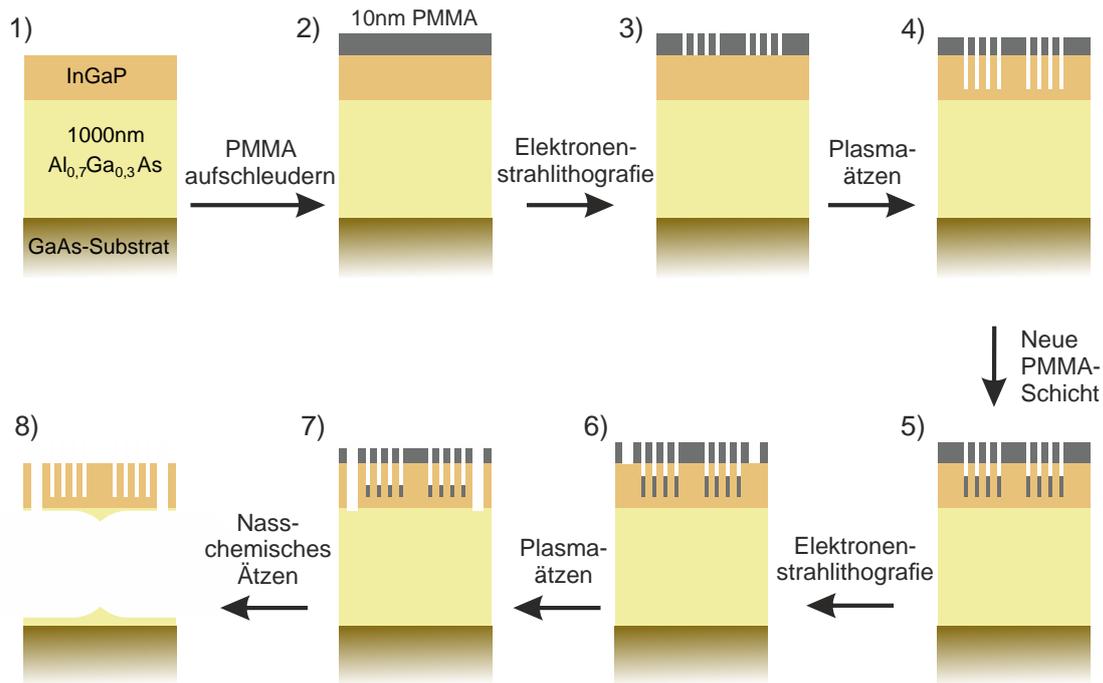


Abbildung 4.2: Herstellung der freistehenden InGaP-Membranen: 1) Anfangszustand der Probe. 2) Aufschleudern der 10 nm PMMA-Schicht. 3) Schreiben der gewünschten CBGs in die Schicht mittels Elektronenstrahlithographie. 4) Plasmaätzen der InGaP-Oberfläche. 5) Aufbringen einer neuen PMMA-Schicht. 6) Erneutes Schreiben von Löchern um die nun vorhandenen CBGs herum. 7) Plasmaätzen der Löcher durch die InGaP-Schicht. 8) Entfernen der AlGaAs-Opferschicht mittels HF sowie des PMMA-Rests.

hierzu entsteht durch Löcher, die konzentrisch um das CBG herum geätzt werden. Hierfür wird zunächst eine neue PMMA-Schicht aufgebracht, die erneut mittels Elektronenstrahlithographie belichtet wird. Danach erfolgt das Schreiben der Löcher von etwa einem Mikrometer Durchmesser. Mittels Plasmaätzen wird die komplette InGaP-Membran an diesen Stellen entfernt und die darunterliegende AlGaAs-Schicht offen gelegt. In einem letzten, nasschemischen Schritt löst Flusssäure (HF) die Opferschicht unterhalb der zuvor geätzten Löcher auf (< 60 s). Abschließend muss die Probe kopfüber getrocknet werden, um das Risiko eines Zusammenstürzens der Membran zu verringern. Während der Prozessoptimierung wurden eine unterschiedliche Anzahl (4-8) an Ätzlöchern sowie verschiedene Abstände getestet. Es konnte kein signifikanter Unterschied zwischen den verwendeten Parametern festgestellt werden. Der wichtigste Faktor ist, dass eine ausreichende Flächenabdeckung des zu unterätzenden CBGs erfolgt. Dies wiederum ist bereits ab vier Löchern ausreichend gegeben. Ob dies der Fall

ist, lässt sich im optischen Mikroskop leicht erkennen (vgl. Anhang A.2). Der Abstand sollte stets so klein wie möglich gewählt werden, um die strukturelle Integrität nicht unnötig zu verringern.

4.2 Zirkulare Bragg-Gitter-Membranen basierend auf AlGaAs

Neben den in 4.1 beschriebenen, frei hängenden InGaP-Membranen wurde auch ein Prozess auf Basis von AlGaAs-Kavitäten entwickelt. Die Konzentration der AlGaAs-Schicht wird mit 31% Aluminiumgehalt so gewählt, dass die Bandlücke mit 680 nm energetisch über den exzitonischen Strukturen in WSe₂ (>710 nm) liegt. Unter der 235 nm dünnen, epitaktisch gewachsenen Membran befindet sich eine etwa 2 µm dicke Al_{0,8}Ga_{0,2}As-Opferschicht, die bedingt durch ihre wesentlich höhere Al-Konzentration andere chemische Ätzeigenschaften als erstere besitzt. So lässt sich die Opferschicht durch 5%ige Flußsäure selektiv entfernen, wohingegen sie die 31%ige Schicht nicht angreift [Kuz17] und sich somit eignet, den Unterbau der Membran im folgenden Flip-Chip-Prozess zu entfernen.

Die essentiellen Schritte des gesamten Prozesses sind in Abb.4.3 dargestellt. So wird die Ausgangsprobe mit der AlGaAs-Membran zunächst mit einer Schicht Siliziumdioxid (SiO₂) besputtert. Die Dicke der Schicht wird mit 430 nm so gewählt, dass eine möglichst hohe Reflektivität mit dem folgenden Goldspiegel gewährleistet ist [Liu19b, Wan19]. Der Spiegel selbst besteht aus 150 nm Gold, das von zwei jeweils 30 nm dicken Titanlagen umschlossen ist. Die Titanlagen dienen als Haftvermittler, um die mechanische Robustheit der Struktur zu erhöhen. Damit ist die Membranprobe bereit für den Flip-Chip-Prozess.

Auf das vorgesehene Zielsubstrat (GaAs-Wafer) muss zunächst noch eine Schicht Benzocyclobuten (BCB) aufgebracht werden, die lediglich als Kleber dient. Das unverdünnte BCB kann in beliebiger Dicke verwendet werden, da es unterhalb des Goldspiegels und folglich außerhalb des optisch relevanten Bereichs liegt. Somit kann die Dicke der Schicht zugunsten einer höheren Haftung der Membran größer gewählt werden. Beim eigentlichen Flip-Chip-Prozess wird die Membran kopfüber auf das BCB aufgedrückt und anschließend die gesamte Struktur ausgebacken (Schritt 4). Dabei wird die Temperatur im Laufe einer Stunde auf 150 °C erhöht und anschließend für eine weitere Stunde auf 250 °C gesetzt. Um nun die Membran von oben her freizulegen, wird zunächst der Großteil des GaAs-Wafers der Membran auf $\approx 30 \mu\text{m}$

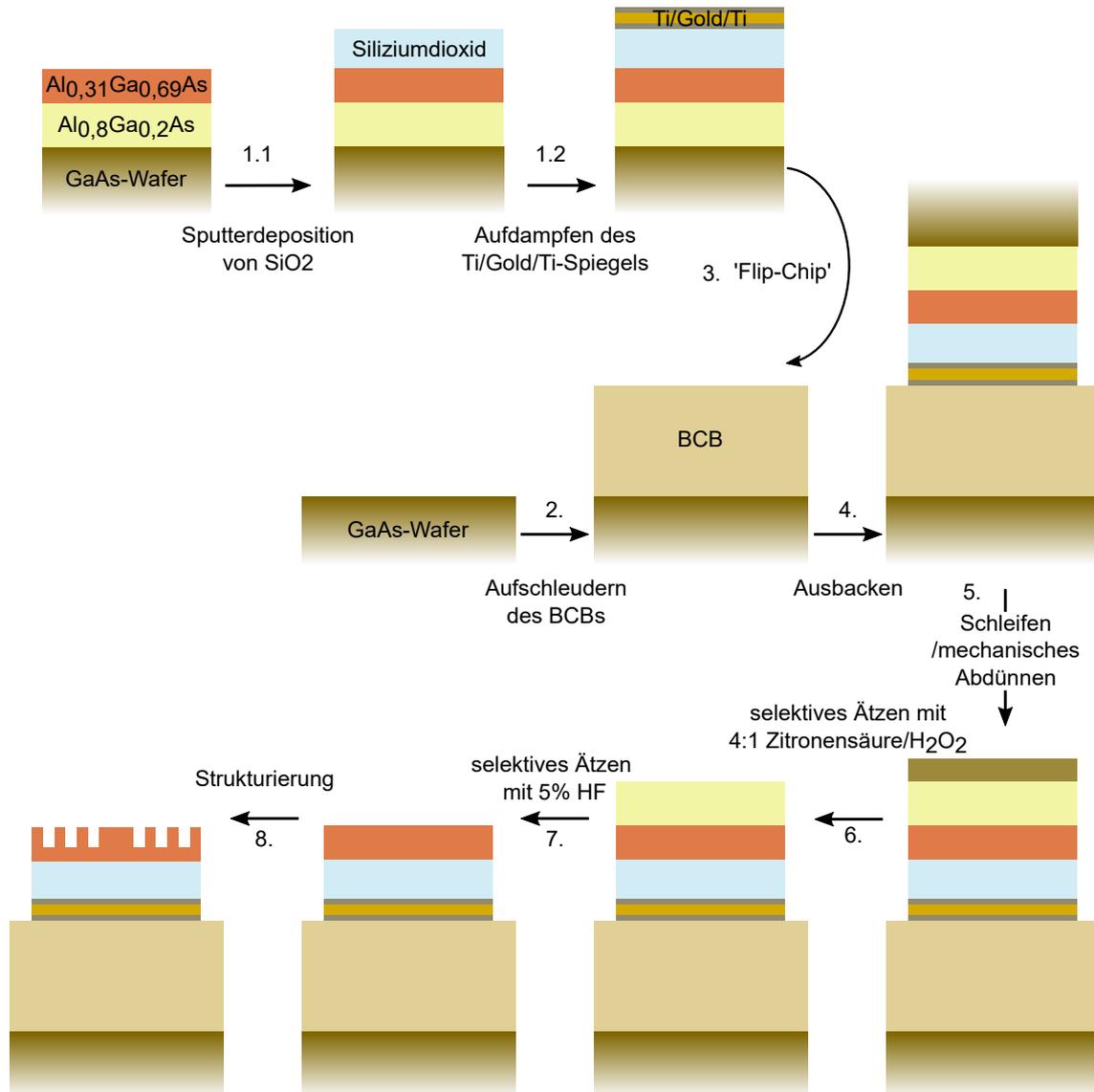


Abbildung 4.3: Ablauf des Flip-Chip-Prozesses: 1) Zunächst wird die Ausgangsprobe epitaktisch gewachsen und mit SiO_2 sowie einem Titan-Gold-Titan-Spiegel beschichtet. 2) Parallel hierzu wird auf einem GaAs-Wafer BCB als Haftvermittler aufgebracht. 3) Nun wird im Flip-Chip-Prozess die erste Struktur kopfüber auf das BCB aufgedrückt und in 4) ausgebacken. 5) Um nun die AlGaAs-Membran freizulegen, wird das GaAs-Substrat mechanisch abgedünnt und anschließend 6) mit Zitronensäure komplett entfernt. 7) Aufgrund der unterschiedlichen Al-Konzentrationen sind die zwei übrigen AlGaAs-Schichten unterschiedlich anfällig für Flussäure, die primär die 80%ige auflöst. 8) Die jetzt komplett freigelegte $\text{Al}_{0,31}\text{Ga}_{0,69}\text{As}$ -Membran kann nun mittels PMMA und Elektronenstrahlithografie strukturiert werden.

mechanisch abgedünnt und der Rest anschließend mit Zitronensäure nasschemisch bis zum $\text{Al}_{0,8}\text{Ga}_{0,2}\text{As}$ aufgelöst (Schritt 5 und 6). Die Opferschicht lässt sich, wie eingangs erwähnt, mit einer 5% HF-Lösung entfernen, ohne die Membran darunter anzugreifen (Schritt 7). Nun ist die $\text{Al}_{0,31}\text{Ga}_{0,69}\text{As}$ -Membran bereit für die Strukturierung mittels Elektronenstrahlolithographie, analog zu Abb. 4.2.

In einer früheren Prozessiteration wurde statt SiO_2 zunächst nur verdünntes Benzocyclobuten (BCB) verwendet, das nicht aufgesputtert, sondern direkt auf dem GaAs-Substrat aufgebracht wurde (Schritt 1.1 und 1.2 wurden übersprungen). Dies hatte zur Folge, dass beim Ausbacken des BCBs dessen Lösungsmittel verdampfte. Anstatt nun aber einfach nach oben entweichen zu können (wie bei der sonstigen Anwendung von BCB üblich), blieb es innerhalb der Schicht gefangen. Dies führte zu einer starken Blasenbildung des BCBs und nicht-reproduzierbaren Schichtdicken, die bis zu dreimal so dick waren wie angedacht. Auf diesen Blasen wiederum brach die darauf befindliche Membran leicht und verhinderte eine zuverlässige Prozessierung.

4.3 Nanometerpräzise Materialabscheidung mittels Elektronenstrahl

Bedingt durch ihre geringe Dimensionalität lassen sich TMDC-Monolagen durch die Morphologie des Zielsubstrats sowohl in ihrer Form, als auch in ihren physikalischen Eigenschaften beeinflussen (siehe Kapitel 2.1.3). Es hat sich herausgestellt, dass das Ablegen einer Monolage auf winzige, nur wenige hundert Nanometer kleine Strukturen zur Bildung lokaler Potentialminima führen kann, in denen Exzitonen bevorzugt rekombinieren [Kum15, Ker16, Bra16a, PB17, Luo18, Cha18, Tri18, Iff18]. Die deterministische Positionierung solcher Einzelphotonenquellen an Nanotürmchen erfolgt in der Regel auf einem planaren Substrat, das in unmittelbarer Umgebung des Türmchens nicht weiter strukturiert ist. Hierfür findet typischerweise SiO_2 oder Gold Anwendung, wobei grundsätzlich jedes, nach dem Prozess stabile Material geeignet ist.

Um die Eigenschaften der auf solche Art erzeugten Einzelphotonenquellen weiter modulieren zu können, ist eine Kombination mit optischen Kavitäten erstrebenswert. Die in dieser Arbeit verwendeten zirkularen Bragg-Gitter eignen sich hierfür sehr gut, da sie einen vergleichsweise einfachen Transfer und eine einfache Positionierung der beteiligten Monolagen ermöglichen. Aufgrund des komplexen Herstellungsprozesses (siehe 4.1 und 4.2) gestaltet sich das Platzieren eines Nanotürmchens – idealerweise

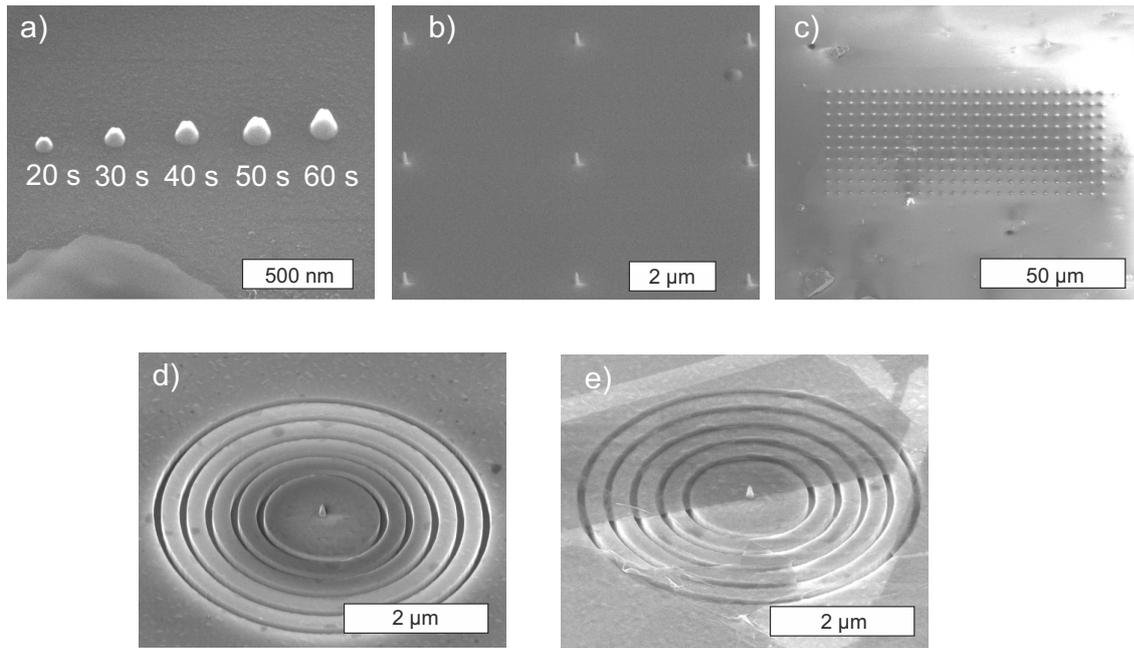


Abbildung 4.4: a) Kalibrationsreihe von mittels elektronstrahlinduzierter Materialabscheidung gewachsener Tümmchen. b) Nahaufnahme eines Feldes mehrerer Tümmchen mit einem Abstand von $4\ \mu\text{m}$. c) Gesamtaufnahme des Tümmchenfeldes von 10×30 einzelnen Tümmchen. d) Integration eines Nanotümmchens in das Zentrum eines zirkulären Bragg-Gitters. e) Darstellung des Endresultats einer solchen Struktur inklusive transferierter WSe_2 -Monolage, die die obere Hälfte bedeckt.

im Zentrum des CBGs – während der Strukturierung als schwierig. Um diese Herausforderung zu umgehen, kommt eine andere Methode zum Einsatz. Nachdem die Proben mit den CBGs versehen wurden, werden die Tümmchen mittels elektronstrahlinduzierter Materialabscheidung in einem dafür geeigneten Elektronenmikroskop (Helios DualBeam) mit Nanometergenauigkeit gewachsen. Je nach erforderlicher Höhe wird die gewünschte Stelle entsprechend lange (20 - 60 s) exponiert (siehe Abb. 4.4a). Hierfür wird in die Vakuumkammer des SEMs durch eine Düse ein geeignetes Precursor-Gas² eingelassen. Durch den auf wenige Nanometer zentrierten Elektronenstrahl (alternativ auch Ionenstrahl) werden die Verbindungen des Gases aufgetrennt und die Spaltprodukte Richtung Probenoberfläche beschleunigt, wo sie sich absetzen können. Zum Einsatz kommt das Precursor-Gas Tetraethylorthosilicat ($\text{Si}(\text{C}_2\text{H}_5\text{O})_4$), das zusammen mit Wasserdampf und dem Elektronenstrahl SiO_2 -Strukturen generieren kann [Gre07].

²engl.: Vorläufergas

Beispiele einer solchen Türmchenanordnung sind in b) und c) dargestellt. Die konkrete Form und die entsprechenden Wachstumsparameter hängen immer vom jeweiligen Zustand der SEM-Kammer ab und müssen vor jedem neuen Wachsen zunächst kalibriert werden. Innerhalb einer Sitzung jedoch ist eine hohe Reproduzierbarkeit gegeben, wodurch gleichmäßige Felder von 10x30 Türmchen möglich sind. Die Positionstreuung wird hierbei durch die Genauigkeit des SEM bestimmt und ist folglich dessen mikroskopischen Schwankungen auf der Minutenskala unterworfen.

Diese Technik eignet sich somit hervorragend zur Integration in CBGs. Das Zentrum der Kavitäten kann einfach angefahren, der Elektronenstrahl dort 'geparkt' und das Türmchen gewachsen werden. Eine Aufnahme der entsprechenden Struktur ist in Abb. 4.4d) abgebildet. Das Endresultat zusammen mit einer transferierten WSe₂-Monolage, die das CBG halb bedeckt (Abb. 4.4e)), wurde in Kapitel 9 näher untersucht und stellt das Ende eines langen Prozesses dar.

5 Optische Grundcharakterisierung von WSe₂-Monolagen

Die Klasse der Halbleiter-Übergangsmetall-Dichalkogenide stellte sich mit ihren optischen Bandlücken im sichtbaren bis nahen infraroten Bereich des Spektrums als einfach zugänglich und aber zugleich voller interessanter physikalischer Eigenschaften heraus. Insbesondere die Klasse der molybdän- beziehungsweise wolframbasierten Sulfide und Selenide (MoS₂, MoSe₂, WS₂, WSe₂) gelangten zu großer Popularität, nachdem deren Monolagen untersucht wurden [Mak10]. Zu Beginn lag der Fokus auf den freien 2D-Exzitonen, die noch bei Raumtemperatur dank ihrer starken Exzitonenbindungsenergien detektierbar sind. Mit zunehmendem Interesse waren Tieftemperaturmessungen der logische nächste Schritt, um das experimentelle Wissen von zum Beispiel Quantenpunkten auf TMDCs anzuwenden. Als dann 2015 neuartige Einzelphotonenquellen basierend auf WSe₂-Monolagen entdeckt wurden [He15, Kum15, Ton15, Sri15, Kop15], stieg das Interesse an diesem Materialsystem nochmals an. Bis heute bleibt WSe₂ das vielversprechendste TMDC hinsichtlich dieser Quantenemitter.

In diesem Kapitel werden die charakteristischen Eigenschaften einer WSe₂-Monolage in optischen Experimenten mit Fokus auf SPEs aufgezeigt. Die Photolumineszenz einer ML wird sowohl bei Raum- als auch Tieftemperaturen untersucht, wobei die Emission mit sinkender Temperatur zunehmend von lokalisierten Exzitonen und neuen exzitonischen Komplexen dominiert wird. Die Charakterisierung der Quantenemitter erfolgt hinsichtlich deren Entstehung, charakteristischen PL und Verhalten in Abhängigkeit von der Anregungsleistung. Außerdem werden Autokorrelationsmessungen zweiter Ordnung sowie Untersuchungen des zeitlichen spektralen Zitterns präsentiert.

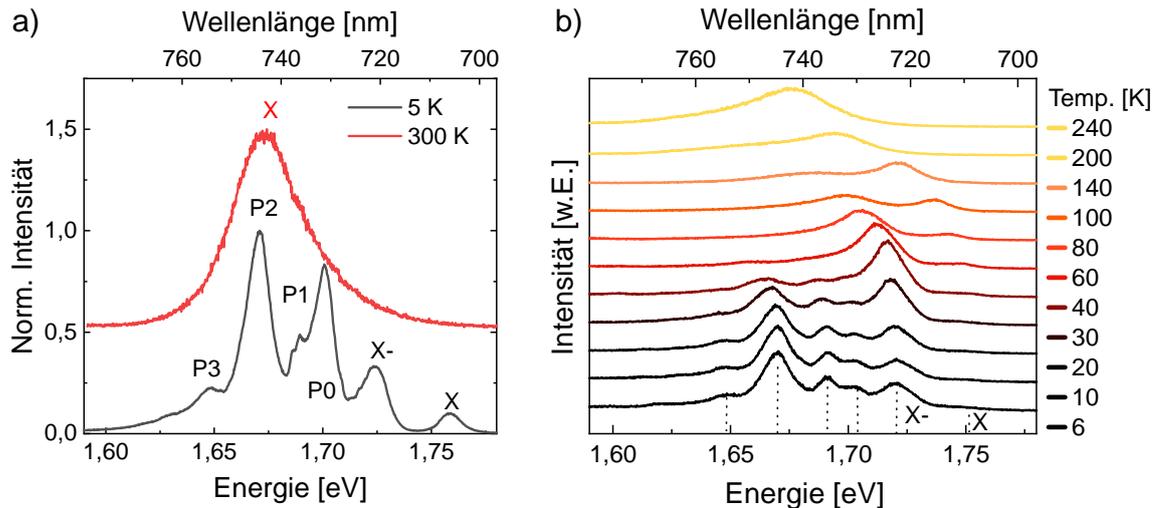


Abbildung 5.1: a) Vergleich der Emission einer WSe₂-Monolage bei Raum- und Tieftemperaturen. Bei 300 K zeigt sich nur das freie Exziton X, bei 5 K hingegen noch viele weitere Emissionen wie das Trion (X-). Die Emittter P0-3 können verschiedenen exzitonischen und Defektzuständen zugeordnet werden. b) Temperaturserie von 6 K bis 240 K einer WSe₂-Monolage. Das freie Exziton nimmt ab 100 K an Intensität zu und zeigt danach eine typische Verschiebung zu niedrigeren Energien für höhere Temperaturen. P0-3 verschwinden ab 50 K komplett.

5.1 Grundlagen der freien Exzitonen in WSe₂

Bei Raumtemperatur dominieren die freien Exzitonen (X) die Photolumineszenz von TMDC-Monolagen, wie in Abb. 5.1a) für WSe₂ dargestellt. Aufgrund ihrer hohen Bindungsenergie von mehreren 100 meV [Han15] bleiben Exzitonen auch bei 300 K bei $E_X = 1,675$ eV (745 nm) mit einer Linienbreite von etwa 35 meV stabil. Betrachtet man hingegen ein Spektrum bei 5 K, ergibt sich ein anderes Bild. Zunächst einmal zeigt sich eine temperaturbedingte Verschiebung der Exzitonenergie hin zu 1,76 eV (710 nm), die durch die für Festkörper übliche Abnahme der Gitterkonstante verursacht wird [Var67]. Hierdurch wird die Bandlücke und entsprechend auch E_X größer [Aro16]. Neben dem Exziton kommt bei 1,72 eV ein Trion (X-) zum Vorschein, dessen Bindungsenergie relativ zum Exziton etwa 30 meV beträgt. Interessanterweise entstehen auf der niederenergetischen Seite noch weitere Signale, die der Reihe nach mit P0, P1, P2 und P3 benannt sind. Grundsätzlich bietet WSe₂ eine Vielzahl an möglichen Zuständen, die durch den dunklen Übergang bedingt und weiterhin Gegenstand aktueller Forschungen sind [Liu19a, Liu20]. Ohne die Verkapselung in

hBN und mit Linienbreiten um 10 meV ist eine genaue Auflösung der einzelnen Linien nicht ohne Weiteres möglich. P0 wird gelegentlich einem biexzitonischen Zustand zugeordnet [You15, Bar18], hat sich im experimentellen Alltag allerdings nicht auf jeder Monolage eindeutig als solches verhalten. Die genauen Umstände für das Entstehen konnten nicht geklärt werden, hängen aber vermutlich mit einer Kombination der Exfolierbedingungen und der Probenstruktur zusammen. Die übrigen Emissionen P1-3 stellen sehr sicher lokalisierte Defektemissionen dar, die durch Fehlstellen, wie in Kap. 2.1.2.2 erörtert, entstehen und bei geringen Anregungsleistungen das Spektrum dominieren.

Das temperaturabhängige Verhalten wird in Abb. 5.1b) nochmals deutlicher. Von 6 K bis etwa 40 K bleiben die niederenergetischen Emissionen P0-P3 detektierbar, wohingegen sie danach rasch an Intensität verlieren. Durch die geringen Potentialeinschlüsse der Defekte reicht bereits eine relativ niedrige thermische Energie aus, um sie zu überwinden [Aro16] und zu deaktivieren. Das Trion stattdessen gewinnt zunächst wesentlich an Intensität bis etwa 80 K. Danach kommt das Exziton deutlicher zur Geltung, bis es bei hohen Temperaturen als Einziges messbar bleibt. Der Grund für die Zunahme der Helligkeit liegt in der besonderen Bandstruktur der WX₂-TMDCs, deren niedrigster energetischer Übergang dunkel ist (vgl. Kap. 2.1) und der größere, helle Übergang erst mit zunehmender Temperatur besetzt wird. Dies steht im Gegensatz zu den meisten anderen TMDCs, wie der Molybdängruppe [Rol14], die bei Raumtemperatur eine geringere Intensität aufweist.

Die Anregungsleistung des verwendeten Lasers besitzt großen Einfluss auf die PL der Signaturen. In Abb. 5.2 zeigt sich das übliche Verhalten einer WSe₂-Monolage bei einer Laserleistung von 5 μ W bis 1 mW. Alle Signaturen nehmen an Intensität zu, wobei P0 gelegentlich einen superlinearen Anstieg besitzt, der typisch für ein Biexziton ist. Bei geringeren Leistungen hingegen bilden sich oft schärfere Spektrallinien aus, die mit stark lokalisierten Quantenemittern in Verbindung gebracht werden und auf die im nachfolgenden Abschnitt genauer eingegangen wird. Insgesamt lässt sich hier festhalten, dass das Spektrum einer Monolage je nach individuellen Bedingungen unterschiedlich ausfällt. Wie stark insbesondere das Exziton und das Trion ausgeprägt sind, hängt von der Ladungsträgerumgebung und somit auch vom Substrat ab [Iff17]. Je mehr Elektronen sich in der Monolage ausbilden können, umso leichter entstehen zusätzliche Trionen. Weiterhin besteht eine starke Abhängigkeit der spektralen Struktur unterhalb von 1,70 eV von der spezifischen Monolage, die untersucht wird.

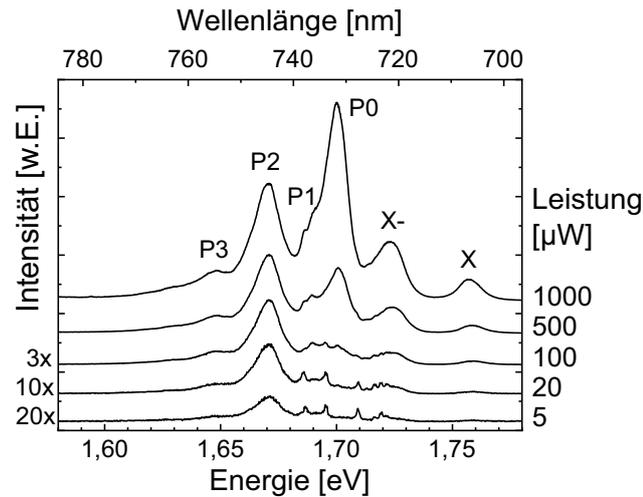


Abbildung 5.2: Leistungsserie einer WSe₂-Monolage bei Tieftemperaturen. Alle Emitter nehmen mit steigender Laserleistung an Intensität zu, wobei P0 einem Biexziton zugeordnet werden kann. Bei geringen Leistungen werden scharfe Spektrallinien sichtbar, die stark lokalisierten Emittoren entsprechen.

Um Strukturen wie hier gezeigt zu erhalten, ist eine möglichst saubere, intakt exfolierte und transferierte Monolage von Vorteil, da etwaige Risse und Falten zur Ausbildung weiterer Defektemissionen und zu deren inhomogener Verbreiterung beitragen.

5.2 Einzelphotonenquellen in WSe₂

In WSe₂-MLen besteht die Möglichkeit, dass sich spektral sehr scharfe Linien ausbilden, die stark lokalisierten Exzitonen zugeordnet werden können. Ein solches exemplarisches Spektrum zeigt in Abb. 5.3a) eine gut aufgelöste, spektral getrennte Emission im Bereich unterhalb des Trions ($< 1,71$ eV), in der normalerweise die breiten Defektsignale liegen. Wie in Kap. 2.1.3.1 ausgeführt, entstehen diese durch einen dreidimensionalen Potentialeinschluss, der ausreichend tief ist, sodass Exzitonen darin anstelle der üblichen Übergänge gefangen werden können. Folglich wird durch eine entsprechend aktivierte Defektdichte die Emission der anderen Übergänge unterdrückt. Die Linienbreite des in a) dargestellten Quantenemitters SPE1 (1,665 eV, blau) liegt unterhalb des Auflösungsvermögens des Gitters mit 300 Linien/mm des Monochromators. Zur genaueren Untersuchung ist derselbe Emitter im Einschub in Abb. 5.3a) mit dem feineren Gitter (1500 Linien/mm) dargestellt. Der Lorentzfit ergibt eine Linienbreite von etwa 180 μ eV. Außerdem wird ersichtlich, dass der Emitter bei 1,675 eV eine Feinstrukturaufspaltung besitzt, die erst mit höherer Auflösung detektierbar wird. Das Histogramm der Linienbreite einer WSe₂-Monolage mit hoher Quantenemitterdichte in Abb. 5.3b) demonstriert die typische Verteilung auf einem SiO₂-Substrat. Der Großteil der Linienbreiten bewegt sich um 1 meV. In der genaueren Betrachtung (Einschub) wird dies nochmals verdeutlicht. Allerdings existieren auch SPEs, die je nach betrachteter Monolage weit höhere Linienbreiten (> 4 meV) besitzen können. Oft entstehen die Emitter gebündelt an der gleichen spektralen Position, da sie von der selben Defektstelle oder dem selben Einschlusspotential (Verspannung) ausgehen. Der zugehörige Spektralbereich reicht bis etwa 1,55 eV (800 nm), wobei der Schwerpunkt bei 1,60 eV bis 1,71 eV liegt.

Die Defektemission einer weiteren Monolage in Abb. 5.4a) gibt Aufschluss über den charakteristischen Verlauf in Abhängigkeit von der Anregungsleistung des Lasers. So bilden sich bereits bei geringen Laserleistungen die für die jeweilige Position dominanten Spektrallinien (hier QD1-3) aus. Mit zunehmender Laserleistung steigt sowohl die Intensität der Quantenemitter als auch die des breiten Hintergrundes an. Ab einer gewissen Leistung setzt eine Sättigung der Intensität der scharfen Linien ein, wobei der Untergrund stetig zunimmt und bei wesentlich höherer Anregung wieder in die freien WSe₂-Signaturen aus Abb. 5.2 übergeht. Die Intensitätskurve in Abb. 5.4b) zeigt für QD1-3 in der doppel-logarithmischen Auftragung deutlich die

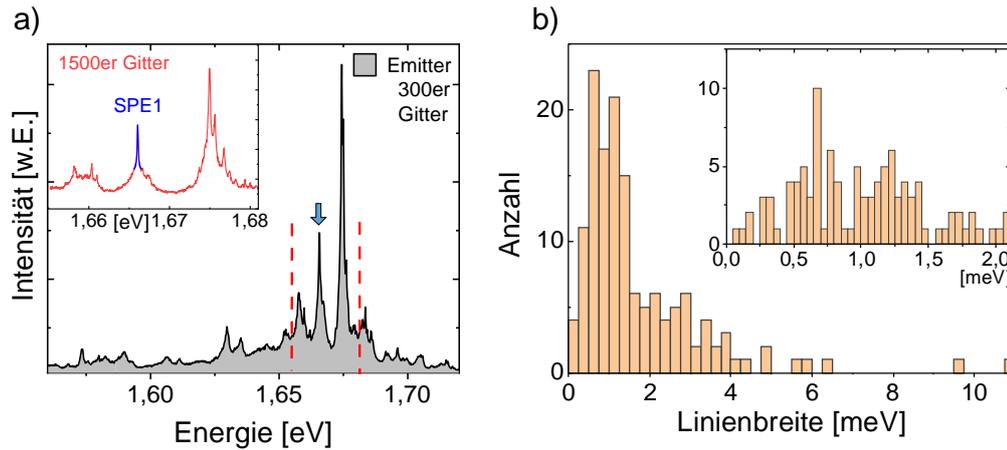


Abbildung 5.3: a) Typisches Spektrum eines Quantenemitters in einer WSe₂-Monolage, aufgenommen mit dem 300 Linien/mm Gitter. Das Spektrum wird durch wenige Emitter dominiert, wobei ein schwacher Hintergrund über einem großen Spektralbereich vorhanden ist. Einschub: Vergrößerte Darstellung des gleichen Spektrums zwischen den roten Linien mit dem 1500 Linien/mm Gitter. SPE1 besitzt eine Linienbreite von 180 μeV (Lorentz-Anpassung). b) Histogramm der Linienbreite von über 70 individuellen Emittlern auf einer Monolage. Ein Bereich von 0,1 meV bis über 10 meV wird abgedeckt, wobei der Schwerpunkt bei etwa 1 meV liegt.

Abnahme vom anfänglich linearen Verlauf. Dieses Verhalten der SPEs lässt sich wie ein Zwei-Niveau-System nach

$$I = I_S \cdot \frac{1}{1 + P_n/P_{Anr}} \quad (5.1)$$

in Abhängigkeit von der nominellen Anregungsleistung P_{Anr} , des freien Normalisierungsparameters P_N sowie der Sättigungsintensität I_S anpassen [Kum15]. In Tabelle 5.1 sind die Resultate aufgeführt, wobei die Anpassung mit zunehmender Laserleistung durch den immer dominanteren Hintergrund erschwert wird. Dennoch beschreibt das Modell den Verlauf sehr gut, woraus folgt, dass sich das System hauptsächlich durch zwei Zustände (Grund- und angeregter Zustand) erklären lässt. Nach einer endlichen Zeit, die der Lebensdauer des angeregten Zustandes entspricht, zerfällt das Exziton wieder. Erst dann ist der SPE erneut bereit, angeregt zu werden. Hieraus ergibt sich folglich eine endliche, maximale Intensität.

Die Bestimmung des Einzelphotonencharakters erfolgt mittels des in Kap. 3.3 beschriebenen Messaufbaus unter Verwendung der Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung.

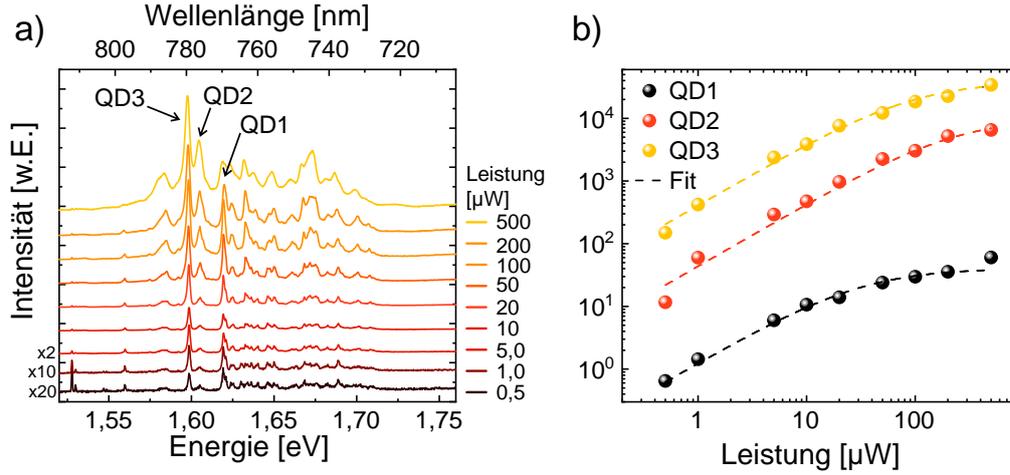


Abbildung 5.4: a) Leistungsserie eines Bereichs mit hoher Defektdichte einer WSe₂-Monolage. Bei geringen Leistungen dominieren einige wenige Spektrallinien QD1-3, die mit zunehmender Leistung vom breiten Untergrund überdeckt werden. b) Auswertung der QD1-3 aus a) mittels des Zwei-Niveau-Modells zeigt eine gute Übereinstimmung. Die Emittter sättigen ab einem Wert, der stark vom Emittter selbst abhängt (Tab. 5.1).

Emittter	I_S [w.E.]	P_0 [μW]
QD1:	$40,5 \pm 2,5$	$32,0 \pm 4,9$
QD2:	$(10,1 \pm 2,3) \cdot 10^3$	231 ± 72
QD3:	$(38,7 \pm 3,2) \cdot 10^3$	94 ± 12

Tabelle 5.1: Übersicht der Parameter der Leistungsserie aus Abb. 5.4b), die sich nach der Gleichung 5.1 eines Zwei-Niveau-Systems ergeben.

Hierfür wurde ein ausreichend heller Emittter (Pfeil) in Abb. 5.5a) gewählt, der ebenso hinreichend isoliert von jedem Hintergrund war. Die zugehörige $g^{(2)}(\tau)$ -Messung in Abb. 5.5b) ergibt einen Wert für $g^{(2)}(0)$ von $0,31 \pm 0,05$. Da er unter der charakteristischen Schwelle von 0,5 liegt, handelt es sich um eine Einzelphotonenquelle. Die Abweichung vom idealen Wert $g^{(2)}(0) = 0$ liegt im Vorhandensein eines leichten Hintergrundes sowie der Wahl der zeitlichen Auflösung von 500 ps. Diese stellt einen Kompromiss aus der Genauigkeit und der für die Messung benötigte Zeit dar. Das Verhalten der Einzelphotonenquellen ist charakteristisch für ausreichend stark lokalisierte Quantenemitter und gleichzeitig deren wichtigste Eigenschaft für Anwendungen wie zum Beispiel in der Quanteninformatik [Shi07]. Eine weitere

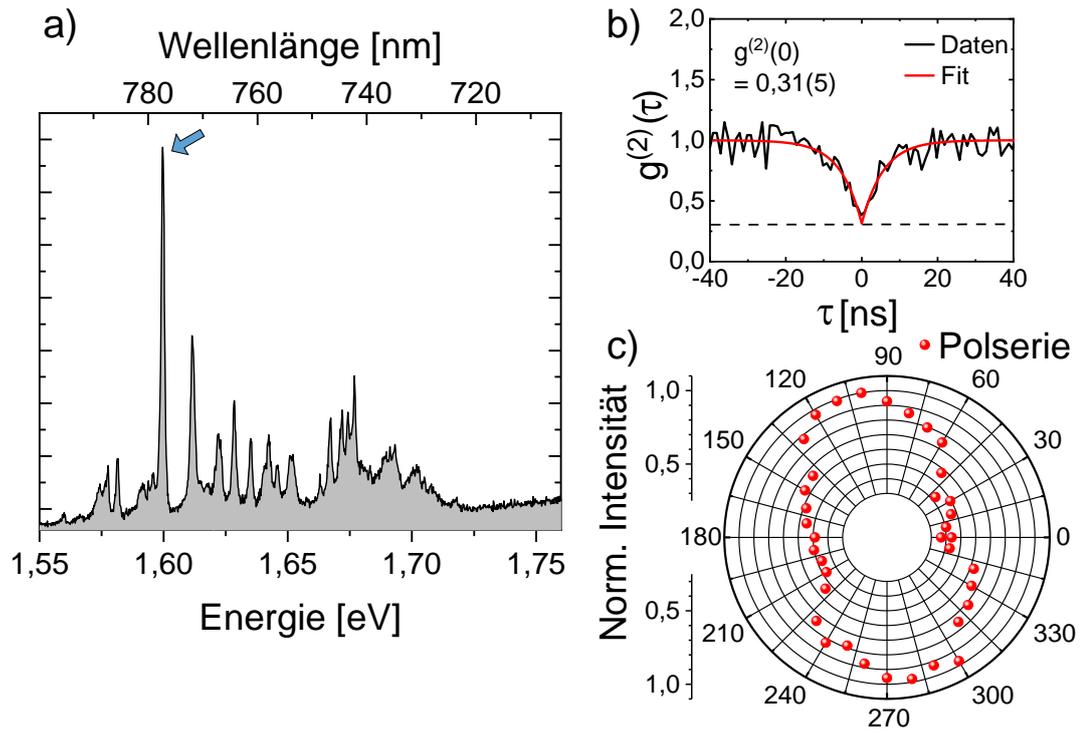


Abbildung 5.5: a) Spektrum einer defektreichen Stelle. b) Autokorrelationsmessung zweiter Ordnung des Emitters (Pfeil in a) ergibt einen $g^{(2)}(0)$ -Wert von $0,31 \pm 0,05$, womit der Einzelphotonencharakter bestätigt wird. c) Die auf das Maximum normierte Polarisationsserie eines beliebigen Quantenemitters beschreibt eine lineare Ausrichtung.

Eigenschaft besteht in deren durchgehend linearer Polarisation (Abb. 5.5)c). Dies zeigt sich in der Messung, für die die Intensität Maximum normiert wurde. Dadurch lässt sich sehr gut die Ausrichtung erkennen, die eine eindeutige Vorzugsrichtung aufweist. Der Grad der linearen Polarisation ($DolP^1$) definiert sich über die minimale und maximale Intensität des Emitters zu:

$$DolP = \frac{I_{max} - I_{min}}{I_{max} + I_{min}}, \quad (5.2)$$

und ergibt sich in dem gezeigten Fall zu 0,46. Der konkrete Wert und insbesondere die Ausrichtung hängen von der Umgebung des Dipols ab, lassen sich aber wie in Kap. 7.2 durchaus durch eine entsprechende Modulation der Verspannung beeinflussen.

Eine grundsätzliche Problematik der SPEs in zweidimensionalen Materialien liegt in deren spektraler Stabilität über Zeit. In Abb. 5.6a) wird dies in einer Kontrastkarte aufeinanderfolgender Spektren verdeutlicht, die einen zeitlichen Abstand von 10s

¹engl.: degree of linear polarization

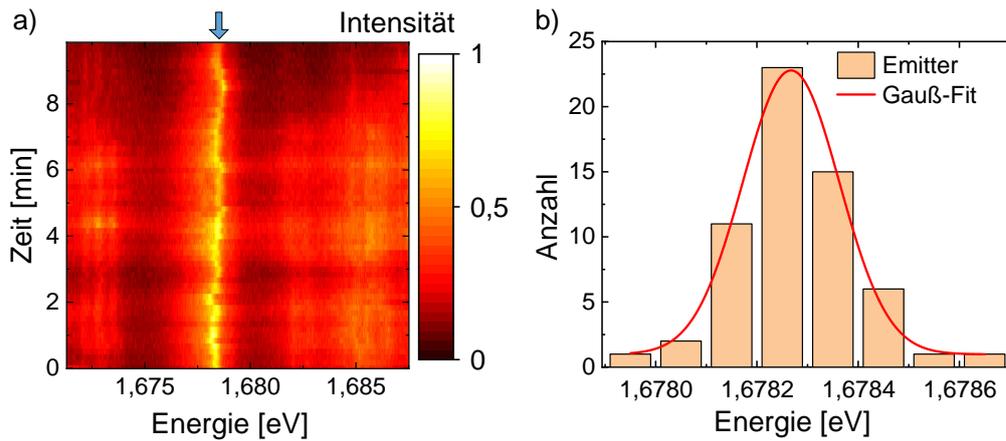


Abbildung 5.6: a) Zeitlich aufgelöstes Verhalten mehrerer Emissionen über 10 Minuten (10 s Schritte). Der Emitter (Pfeil) zeigt deutliche spektrale Fluktuationen im Bereich weniger Sekunden, wohingegen die weiteren Signale links und rechts davon ein schwaches Blinkverhalten besitzen. b) Histogramm der Energieposition des Emitters aus a). Die zufällige Änderung lässt sich sehr gut durch eine Gauß-Verteilung mit einer zentralen Energie von 1,6783 eV und einer Halbwertsbreite von (190 ± 19) μeV anpassen.

zueinander besitzen. Der Emitter bei 1,678 eV (Pfeil) zeigt eine signifikante, spektrale Fluktuation im Verlauf der knapp 10 Minuten. Neben diesem spektralen Zittern gibt es auch ein Blinken der Emission, wie es die beiden breiteren Emissionen bei 1,670 eV und 1,685 eV in der Abb. 5.6a) zeigen. Ursächlich hierfür sind zeitliche Fluktuationen der Ladungsträgerdichte in der direkten Umgebung der Emitter, die Einfluss auf die Zustände und deren Energien nehmen. Der zufällige Charakter des spektralen Wanderns lässt sich sehr gut mittels der Normalverteilung in Abb. 5.6b) demonstrieren. Dort ist die spektrale Position des Emitters aus a) in einem Histogramm (Breite 0,1 meV) aufgetragen. Die Anpassung mittels einer Gauß-Funktion ergibt eine zentrale Energie von 1,6783 eV mit einer Halbwertsbreite von (190 ± 19) μeV . Durch die Wahl eines passenden Substrats lässt sich hierauf Einfluss nehmen, indem die Ladungsträgerdichte der Umgebung weniger Fluktuationen ausgesetzt wird [Iff17].

5.3 Zusammenfassung

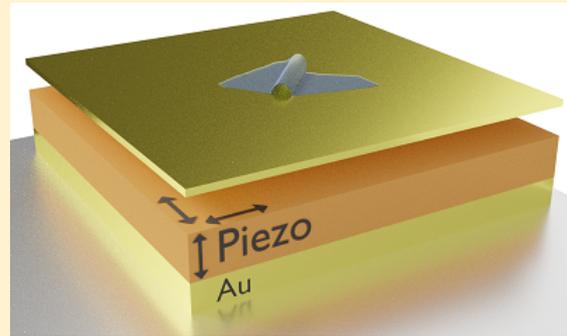
In diesem Kapitel wurden die grundlegenden Eigenschaften einer WSe₂-Monolage erörtert, wobei der Fokus auf den Quantenemittern lag. Bei Raumtemperatur dominiert das 2D-Exziton die Emission, wohingegen sie mit sinkender Temperatur abnimmt.

Dafür werden zunächst das Trion um 150 K und ab etwa 50 K noch weitere Zustände sichtbar. Die Abnahme der Intensität der Exzitonen ist typisch für WX₂ Materialien aufgrund der besonderen Bandstruktur im Vergleich zu anderen TMDCs. Bei niedrigen Anregungsleistungen spalten sich je nach Monolage die breiten Defektemissionen in scharfe Linien auf, die Linienbreiten von weniger als 500 μeV besitzen und stark lokalisierten Emittlern zuzuordnen sind. Sie treten im spektralen Bereich von 1,55 eV - 1,71 eV auf und stehen zudem wegen ihres Einzelphotonencharakters im Fokus dieser Arbeit. Dieser wurde hier und an vielen weiteren Stellen in dieser Arbeit mittels eines $g^{(2)}(0)$ -Werts, der kleiner als 0,5 ist, bestätigt. Das leistungsabhängige Verhalten hingegen lässt sich sehr gut durch ein Zwei-Niveau-System erklären, das ständig angeregt wird und wieder zerfällt. Ebenso besitzen die Emittler typischerweise eine lineare Polarisierung, wie exemplarisch an einem repräsentativen Emitter gezeigt wurde. Deren konkrete Ausrichtung allerdings fällt von Emitter zu Emitter unterschiedlich aus, da die individuelle Umgebung einen entscheidenden Einfluss darauf besitzt. Abschließend wurden noch die spektralen Fluktuationen über Zeit analysiert, die problematisch hinsichtlich längerer Experimente und Anwendungen sein können.

6 Einfluss von piezoelektrischer Verspannung auf Quantenemitter in WSe₂-Monolagen

Kurzfassung. Die Eigenschaften von Einzelphotonenquellen in Übergangsmetall-Dichalkogenidmonolagen lassen sich durch deren mechanische Verspannung direkt beeinflussen. In diesem Kapitel ermöglicht die Kombination einer Monolage WSe₂ mit einem piezoelektrischen Element die Kontrolle über die Energie der Quantenemitter, die in entsprechenden Falten lokalisiert sind. Es wird gezeigt,

dass durch die einstellbare Verspannung die Emissionsenergie der Emitter um bis zu 18 meV reversibel durchstimmbare ist, wobei der Einzelphotonencharakter erhalten bleibt. Weiterhin stellt sich heraus, dass das Vorzeichen der verspannungsabhängigen Energieverschiebung von Emitter zu Emitter unterschiedlich ausfallen kann. Ein einfaches Modell basierend auf Finite-Elemente-Methoden erklärt diesen Umstand hinreichend und offenbart ebenso, dass die Art der Verspannung (Komprimieren oder Strecken) stark von der individuellen Position eines Emitters abhängt. Diese Resultate bedeuten einen wichtigen Schritt für die technologische Umsetzung von Einzelphotonenquellen in 2D-Materialien sowie für das Verständnis des Einflusses auf deren Emissionseigenschaften.



Dieses Kapitel beruht auf der Veröffentlichung [Strain-Tunable Single Photon Sources in WSe₂ Monolayers](#), 2019, *Nano Letters* [Iff19].

6.1 Einleitung

Die Gruppe der zweidimensionalen Halbleiter-Übergangsmetall-Dichalkogeniden besitzt einige Merkmale, die gegenüber herkömmlichen Halbleitern einen neuen Zugang zur Veränderung der optischen Eigenschaften ermöglichen. So liegt ein Vorteil der Monolagen in der ausgeprägten Dehnbarkeit, da sie Zugkräfte von mehr als 1% aushalten können, bevor sie reißen. Dies ermöglicht die Verspannungsmodulation der Einzelphotonenquellen in Monolagen via einer externen Kraft, die durch einen piezoelektrisches Bauteil übertragen wird [CG14, Des14, Kum15, Isl16, Nie18, MS18], um die optoelektronischen Eigenschaften den eigenen Wünschen anzupassen.

Um die SPEs deterministisch und in größerer Anzahl zu generieren, wurden Gitter aus Nanostrukturen für eine periodische Verspannung von Mono- und Bilagen aus WS₂/WSe₂ [Bra16a, PB17, Ker16] verwendet (vgl. auch Kap.7.2). Ebenso koppeln sie an metallische Strukturen [Cai17, Luo18] (vgl. Kap.7) und Wellenleiterstrukturen [Che17a, Har18], die weitere potentielle Anwendungen hinsichtlich der Integration in optischen Kavitäten und on-chip¹ quantenphotonischen Bauteile ermöglichen.

Trotz dieser Fortschritte stellt die üblicherweise willkürliche Energie der SPEs, die in der Komplexität der Potentiallandschaften sowie der Art der Defektursprünge begründet liegt, eine Schwierigkeit für deren Einsatz dar. Dies behindert das Abstimmen von Kavitäten oder die Kombination mit anderen Bauteilen, wobei es oft auf spektrale Genauigkeit im Nanometerbereich und kleiner ankommt. Folglich ist es von großer Bedeutung, Prozesse zu entwickeln, die eine nachträgliche, reversible Änderung der spektralen Position der SPEs ermöglichen. Die elastische Verspannungsmodulation der Bandstruktur ist ein möglicher Ansatz, der bereits in III-V Quantenpunkten erfolgreich zum Einsatz kam [Tro16, Hua17]. Frühere Berichte von defektinduzierten Emittern in dicken hBN-Flocken zeigen eine Veränderung der spektralen Position von nur etwa 6 meV/%, die wahrscheinlich dem schlechten Übertrag der Verspannung innerhalb der verwendeten Struktur geschuldet ist [Gro17a].

In diesem Kapitel wird die reversible Durchstimmung von Quantenemittern in WSe₂-Monolagen durch den Einsatz von Piezoelementen demonstriert, die auf (001) und (110)-[Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O₃]_{0,72}-[PbTiO₃]_{0,28} (PMN-PT) basieren. Der Bereich der Energiemodifikation beträgt bis zu 18 meV bei angelegten elektrischen Feldern von 20 kV/cm und beeinflusst nicht die Reinheit der Einzelphotonenquellen.

¹engl.: 'direkt auf einem Mikrochip'

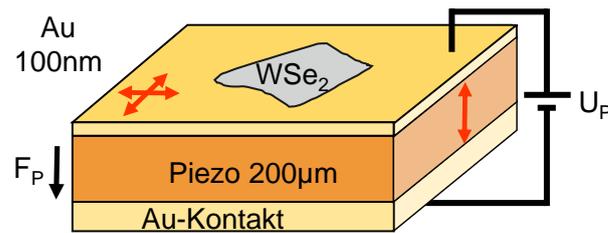


Abbildung 6.1: a) Schema der Hybridstruktur aus 2D-Monolage und Piezoelement. Der Piezo ist zwischen zwei kontaktgebenden Goldschichten eingebettet, über die die Spannung U_P angelegt wird. Die folgende Streckung und Stauchung des Piezos entlang F_P führt auch zu einer Verspannung der Oberfläche, auf der eine zuvor transferierte WSe_2 -Monolage liegt.

6.2 Probenaufbau und piezoelektrisches Prinzip

Die hier verwendeten Proben bestehen jeweils aus einer PMN-PT-Piezoplatte, die auf beiden Seiten jeweils mit einer 3 nm Chrom-Schicht und einer 100 nm Gold-Schicht für den elektrischen Kontakt [CG14] überzogen ist (Abb. 6.1a). Anschließend werden sie auf einen AlN-Träger aufgebracht, der als einfache Plattform für die Kontaktierung und Handhabung der Probe dient. Auf die Oberfläche wird danach noch eine WSe_2 -Monolage, wie in Kap. 3.1 beschrieben, transferiert. Dabei entstehen bereits Verwerfungen der Monolage, an denen üblicherweise Quantenemitter aktiviert werden. Die unten aufgeführten PL-Messungen fanden bei Tieftemperaturen und einer nicht-resonanten Anregung ($\lambda_{Anr} = 633 \text{ nm}$) statt. An den Piezo wird in zuvor festgelegter Polrichtung (F_P) ein elektrisches Feld angelegt, das zu einer Streckung und Stauchung des Piezos führt. Diese Verformung wiederum wird über die Oberfläche auch an die Monolage weitergegeben, die somit auch eine zusätzliche mechanische Verspannung und Modulation der Potentiale erfährt.

Grundsätzlich können viele Feststoffe und Kristalle, die keine Inversionssymmetrie in eine bestimmte Richtung aufweisen [Gau02], als Piezo dienen. Eine gerichtete, äußere Kraft auf den Körper sorgt zunächst für dessen Deformierung. Diese führt zu einer Verlagerung der Ladungsschwerpunkte Q_+ bzw. Q_- und entsprechend zu einer Spannung, die sich in dem Körper aufbaut (Abb. 6.2a). Der Vorgang ist reversibel und tritt umgekehrt auch beim Anlegen eines elektrischen Feldes auf (wie es in diesem Kapitel benutzt wird). Mikroskopisch betrachtet verhält sich der piezoelektrische Effekt analog zum Magnetismus: Piezoelektrische Materialien bestehen aus vielen kleinen, anfangs ungeordneten Dipolen. Üblicherweise bilden sich Weiss'sche Gebiete

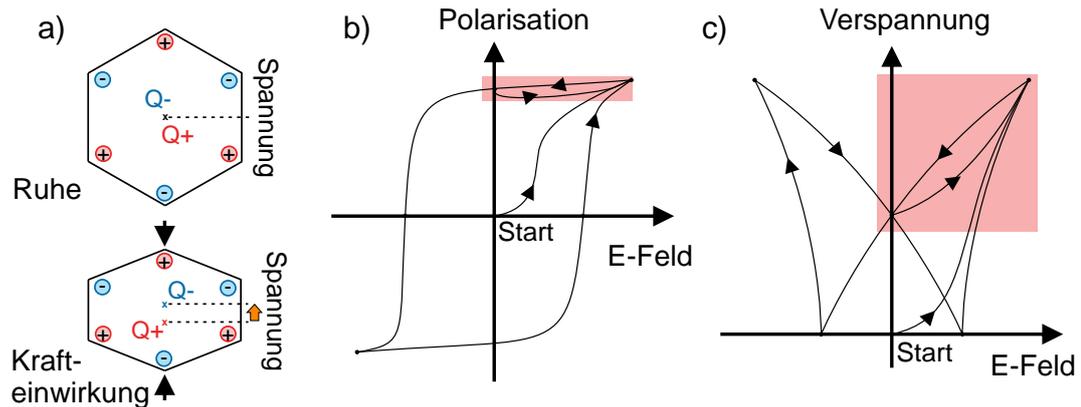


Abbildung 6.2: a) Unverspanntes (oben) und verspanntes (unten) piezoelektrisches Modell. Durch äußere Krafteinwirkung werden in einem nicht-isotropen Festkörper die Ladungsschwerpunkte Q_+ und Q_- zueinander verschoben. Dadurch entstehen Dipolmomente, die kollektiv zu einer Spannung führen. b) Polarisationshysterese in Abhängigkeit vom angelegten Feld. Nach der anfänglichen Polung zeigt das Piezoelement eine nahezu konstante Polarisation, die sich erst mit entsprechend großem umgekehrten E-Feld ändert. Der typische Arbeitsbereich ist farblich markiert. c) 'Schmetterling'-Diagramm der Verspannung abhängig vom E-Feld für den umgekehrten piezoelektrischen Effekt.

mit lokal gleicher Ausrichtung aus, die zueinander aber wieder zufällig orientiert sind. Bei vielen Materialien lassen sich diese Gebiete über ein äußeres Feld oder äußere Kraft dauerhaft in dieselbe Richtung neu ausrichten (= polen), wodurch eine makroskopische Polarisierung \mathbf{P} entsteht. Wird \mathbf{P} über das entstandene E-Feld aufgetragen, ergibt sich das typische Hystereseverhalten [Gau09] (Abb. 6.2b). Der Arbeitsbereich ist zum Großteil auf das Vorzeichen des E-Feldes beschränkt, in das gepolt wurde. Je nach vorliegendem Probenaufbau kann er allerdings auch in die entgegengesetzte Polung ausgeweitet werden, solange die Polarisation nicht zu sehr abnimmt. Die durch das E-Feld verursachte Verspannung nimmt die charakteristische 'Schmetterlingsform' in Abb. 6.2c) an. Auffällig hierbei ist, dass der Vorgang zwar reversibel, das Ergebnis aber nicht hundertprozentig identisch ausfällt. Dies liegt in der minimalen Änderung der Polarisation durch die Krafteinwirkung begründet. Mathematisch lässt sich der Effekt über das elektrische Verhalten des Körpers mit der elektrischen Flussdichte \mathbf{D} (vgl. Kap. 2.2.1)

$$\mathbf{D} = \epsilon \mathbf{E} \quad (6.1)$$

sowie dem Hook'schen Gesetz mit der Verformung \mathbf{S} , der Dehnsteifigkeit s und der mechanischen Verspannung \mathbf{T}

$$\mathbf{S} = s\mathbf{T} \quad (6.2)$$

beschreiben. Da die hier beteiligten Größen alle vektoriell zu betrachten sind, werden zur Beschreibung des sich ergebenden Gleichungssystems Tensoren eingesetzt. Die materialspezifischen Tensoren der hier verwendeten Piezos sind in Anhang A.3 aufgeführt. Zudem lässt sich anhand des Vorzeichens der angelegten Spannung auch die Richtung der Verformung des Materials festlegen. Im vorliegenden Fall bedeutet eine positive (negative) angelegte Spannung eine stauchende (dehnende) Veränderung in der Ebene der Probenoberfläche und damit auch der Monolage.

6.3 Optische Charakterisierung und Einfluss der Piezo-Verspannung

Unter optischer Anregung emittiert die Monolage Photonen, die im Spektrum Abb. 6.3a) sowohl für hohe als auch niedrige Anregungsleistungen abgebildet sind. Bei ersteren zeigt sich das charakteristische WSe₂-Spektrum der 2D-Exziton- (X) und Trionresonanzen (X-), sowie ein weiterer Bereich von 730 nm - 770 nm, der Defektemissionen zugeordnet wird [Chi19, Bra16a, Tri18, Iff18]. Bei niedriger Anre-

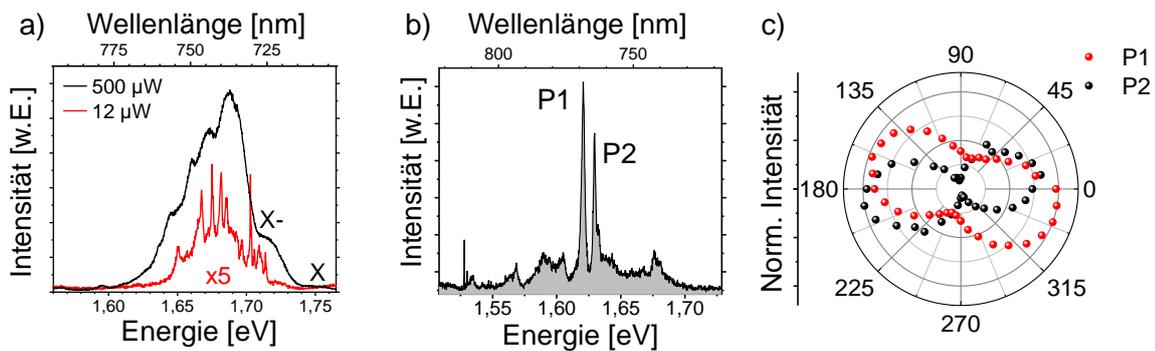


Abbildung 6.3: a) Typisches Spektrum einer WSe₂-Monolage bei hoher und niedriger Anregungsleistung mit dem Exziton (X) und dem Trion (X-). Bei 12 μW werden die schmalen Linien der Quantenemitter ersichtlich. b) Nähere Betrachtung zweier isolierter Emitter P1 und P2 mit Linienbreiten knapp über 200 μeV. c) Polarisationsserien von P1 und P2 zeigen ein deutlich linear polarisiertes Verhalten. Die Serien sind jeweils auf ihr Maximum normiert.

gungsleistung dominieren die Emissionslinien einzelner, gut isolierter Quantenemitter mit Linienbreiten um $200 \mu\text{eV}$ (Abb. 6.3b)). Auf der Probe befindet sich eine Vielzahl solcher Emittter, die alle eine ausgeprägte, für Dipole typische, lineare Polarisierung besitzen (vgl. Kap. 2.1.3). Die Polarisierung der beiden Emittter P1 und P2 aus Abb. 6.3b) ist in c) dargestellt. Deren Orientierung ist zufällig verteilt, für Emittter der gleichen Position aber meist sehr ähnlich.

Nun wird am Piezo ein elektrisches Feld im Bereich von $F_P = \pm 20 \text{ kV/cm}$ angelegt, das einer eingestellten Spannung von $U_P = \pm 500 \text{ V}$ entspricht. In diesem Spannungsbereich bleibt die Polarisierung des Piezoelements über viele Messungen hinweg konstant. Durch das Anlegen des äußeren elektrischen Feldes erhält man Kontrolle über die spektrale Position der SPEs, wie zum Beispiel für den in Abb. 6.4a) gezeigten Emittter. Konkret schiebt er mit stauchender/streckender Verspannung, die von dem Piezoelement ausgeht, hin zu höheren/niedrigeren Energien. Dies ist möglich, da die äußeren Kräfte Auswirkung auf die optischen Bandlücken und die Geometrie der Festkörper – und somit der gesamten Bandstruktur – besitzen. Außerdem ist der Prozess reversibel, wodurch eine freie Einstellung der Energie innerhalb des gegebenen Bereichs möglich wird. Insgesamt ergibt sich eine Verschiebung von $5,4 \text{ meV}$ mit einer Rate von $5,4 \mu\text{eV/V}$, die somit in der Größenordnung von auf Halbleiter basierten Nanomembranen mit integrierten Quantenpunkten liegen kann [Tro12]. Hieraus ergibt sich auch eine Schätzung für die Verspannung innerhalb der Oberflächenebene von etwa $0,15\%$ für das maximal angelegte E-Feld. Allerdings besitzen alle Emittter ein quantitativ unterschiedliches Verhalten, da sie je nach Position auf der Monolage beziehungsweise Verwerfung eine andere Stärke und auch Richtung der Verspannung erfahren können. Dies wird in der Auswertung 68 individueller Quantenemitter in Abb. 6.4b) deutlich, in der die Verschiebungsrate dargestellt ist. Ein Großteil der Quellen ordnet sich bei etwa $2,5 \mu\text{eV/V}$ ein, wobei einige Emittter auch bei höheren Werten liegen. Interessanterweise reagieren manche nicht messbar auf die eingestellte Verspannung, dies lässt sich aber durch eine entsprechende Lage und Ausrichtung hinsichtlich der auf sie wirkenden Kräfte erklären. Zudem zeigt Abb. 6.4c) exemplarisch, dass die Polarisierungsrichtung der Emittter ebenso stabil bleibt. Dies spricht dafür, dass das E-Feld auf den Bereich zwischen den Goldkontakten beschränkt ist und kaum Einfluss auf die Ausrichtung der Emittter besitzt. Demgegenüber verändert sich der Grad der linearen Polarisierung von $0,37$ bei 0 kV/cm zu $0,52$ und $0,26$ bei -10 kV/cm respektive $+10 \text{ kV/cm}$.

Ein wichtiger Aspekt hinsichtlich der Anwendung solcher SPEs in Bauteilen stellt die Erhaltung ihres Einzelphotonencharakters dar, welche mittels der Autokorrelati-

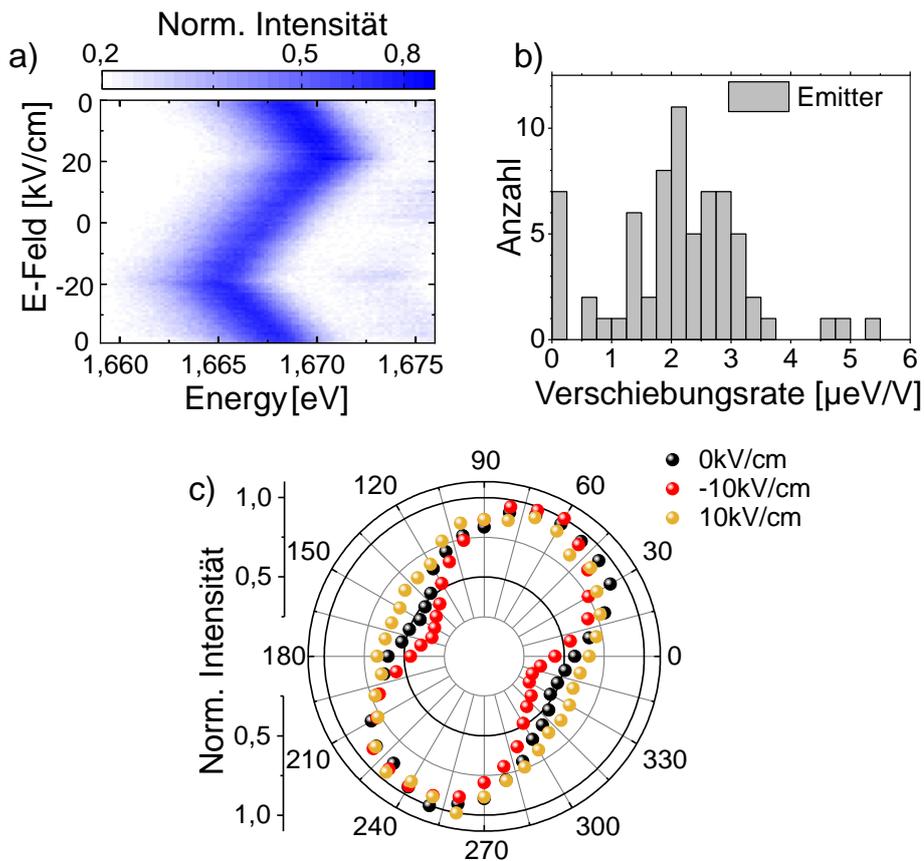


Abbildung 6.4: a) Konturplot der Spektren eines Emitters in Abhängigkeit des angelegten E-Feldes. Das Feld wird von 0 kV/cm auf +20 kV/cm, hinab zu -20 kV/cm und wieder auf 0 kV/cm zurück geändert. Die Rot-(Blau)verschiebung durch die induzierte, stauchende (dehnende) Verspannung der Monolage am Ort des Quantenemitters beträgt insgesamt 5,4 meV und erfolgt reversibel mit einer Rate von $5,4 \mu\text{eV/V}$. b) Histogramm der Verschiebungsrate von 68 individuellen Emittlern. Manche Emittler zeigen keinen Einfluss der Verspannung. c) Die Polarisationsrichtung eines beliebigen Emitters bleibt weitestgehend von der Verspannung unbeeinflusst. Die Serien sind jeweils auf das Maximum normiert.

onsfunktion zweiter Ordnung $g^{(2)}(\tau)$ (siehe Kap. 3.3) untersucht wird. Die Spektren solcher Messungen in Abhängigkeit vom angelegten E-Feld sind in der Abb. 6.5a) für den Emittler aus Abb. 6.4a) dargestellt. Die Intensität sowie die spektrale Form verändern sich mit einer durchschnittlichen Linienbreite von $(2,99 \pm 0,03)$ meV kaum bei unterschiedlichen E-Feldern, was für eine Robustheit gegenüber äußeren Einflüssen spricht. In Abb. 6.5b) lassen die ermittelten $g^{(2)}(0)$ -Werte in Abhängigkeit des E-Feldes Rückschlüsse auf die Emittler zu. So bleibt $g^{(2)}(0)$ nahezu konstant bei

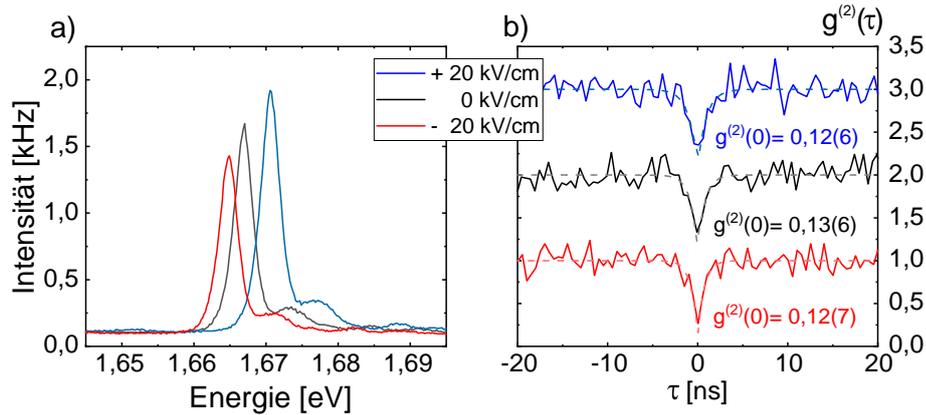


Abbildung 6.5: Einfluss der Verspannung auf den Einzelphotonencharakter für 0, +20, -20 kV/cm: a) Vergleich der Spektren des Emitters aus Abb. 6.4a) offenbart mit durchschnittlich $2,99 \pm 0,03$ meV keine signifikanten Auswirkungen auf die Linienbreite. b) Die Ergebnisse der Autokorrelationsmessungen zweiter Ordnung bleiben für 0 kV/cm und ± 20 kV/cm mit $g^{(2)}(0) \approx 0,13$ nahezu konstant.

etwa 0,13 und folglich der Einzelphotonencharakter eindeutig erhalten. Weiterhin lässt sich aus dem einfach exponentiellen Abfall um $\tau = 0$ eine Lebenszeit von ca. 1,0 ns extrahieren, da unterhalb der Sättigung gemessen wurde. Dieser Wert liegt unterhalb der typischen Lebensdauern [Ton15] (vgl. Tab. 7.1), was womöglich durch die Goldoberfläche begünstigt wird (siehe Kap. 7). Insgesamt wird hieraus ersichtlich, dass mechanische Deformierung zu keiner Verschlechterung der Emitterqualität führt.

6.4 Diskussion des Verspannungsfeldes

Um die Verspannung der Monolage weiter zu quantifizieren, wurden von unserem Kooperationspartner² Finite-Elemente-Simulationen (FEM³) der Verspannungsfeldverteilung in einer WSe₂-Monolage durchgeführt. Für diese wird angenommen, dass sie eine gaußförmige Falte, wie in Anhang A.4 gezeigt, besitzt. Exemplarisch ist die entsprechende Simulation für eine 40 nm hohe, 100 nm breite Falte der Länge von etwa $1,5 \mu\text{m}$ ausgelegt. Die Monolage selbst wird als Film der Dicke 0,7 nm berücksichtigt. In Abb. 6.6a) wird die Änderung der Feldverteilung an der Falte bei 30 kV/cm im Vergleich zu 0 kV/cm dargestellt. Da die spektrale Verschiebung eines Emitters direkt mit der Änderung des Verspannungsfeldes zusammenhängt, ist auch

²Dr. Javier Martín-Sánchez, Universität von Oviedo, Spanien

³engl.: finite element method

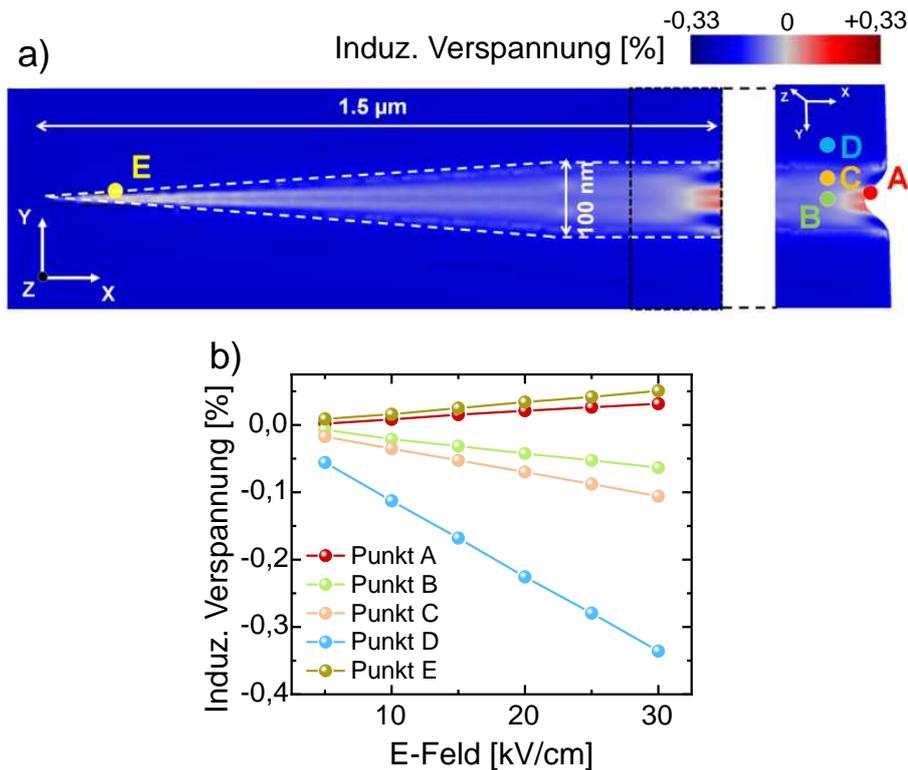


Abbildung 6.6: a) FEM-Simulationen der relativen Änderung des Spannungsfeldes bei 30 keV/cm verglichen mit einer Monolage ohne Feld für einen (001)-Piezo. Eine gaußförmige Falte mit einem Höhen-Basis-Verhältnis von 2,5 wird angenommen. Beide Arten der Verspannung (Zug und Kompression) sind im selben Bereich innerhalb weniger Nanometer möglich. Der rechte Ausschnitt stellt die Faltekante unter einem 45° Blickwinkel mit den Punkten A-D dar. b) Die Entwicklung der Verspannung in Abhängigkeit vom angelegten E-Feld für die in a) benannten Punkte zeigt ein lineares Verhalten, das je nach Punkt gedehnt oder gestaucht sein kann.

nur der entsprechende Unterschied zur Ruhelage ($F_P = 0$) relevant. Weiterhin wird das Feld für ein (001) PMN-PT-Piezoelement simuliert, das zusätzlich auf einem isotropen Festkörper sitzt, um das Festkleben mittels Silberleitlack während des Experiments zu modellieren. Der genannte Piezo besitzt eine isotrope piezoelektrische Antwort, was bedeutet, dass die Oberfläche sich unter äußerem Einfluss in alle Richtungen in der Ebene gleichmäßig ausdehnt oder staucht. Wie erwartet zeigt sich auf den flachen Teilen der Monolage eine gleich große, komprimierende Verspannung (Punkt D). Demgegenüber steht eine signifikante Abweichung entlang der Falte. Insbesondere das Vorzeichen hängt stark davon ab, welcher Ort genau betrachtet wird. So zeigt die Spitze der Verwerfung die maximale Dehnung, die entlang der Punkte B bis D abnimmt

und zu einer Stauchung wird. Die Steigung der Abhängigkeit der Verspannung an den unterschiedlichen, benannten Punkten A bis E (Abb. 6.6b) offenbart für alle einen linearen Zusammenhang, wobei die stauchende Verspannung mit bis zu -0,35% etwa 7-mal höher als die streckende mit +0,05% ausfallen kann. Aus dieser Simulation lässt sich zwar schließen, dass eine entsprechende spektrale Verschiebung direkt mit dem Ort zusammenhängt, allerdings kann jene nur unzureichend die vielen Möglichkeiten einer realen Verwerfung der Monolage abbilden. Zudem wird ersichtlich, dass sich das Vorzeichen der Verspannung – und damit auch der Verschiebung – innerhalb nur weniger Nanometer ändert. Dies konnte von unseren Kooperationspartnern aus Rom⁴ auch bestätigt werden, was im Anhang A.5 für einen (001)- und (110)-Piezo näher erörtert wird.

6.5 Zusammenfassung

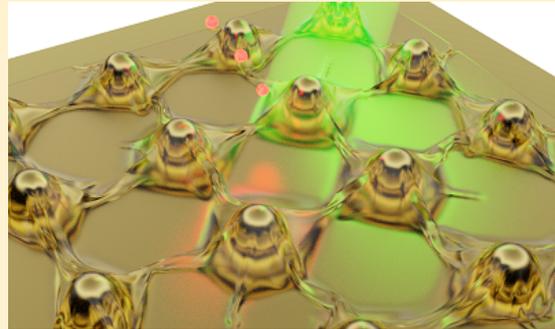
Zusammenfassend wurde gezeigt, dass es möglich ist, die Energie der Quantenemitter in einer WSe₂-Monolage im Bereich von mehreren Millielektronenvolt einzustellen. Dies wird durch die Implementierung eines Piezoelements und einer Monolage in dem gleichen Bauteil realisiert, wobei Verspannungen innerhalb der ML-Ebene von bis zu $\approx 0,15\%$ direkt auf die SPEs übertragen werden können, ohne deren optische Qualität wie etwa Intensität oder Linienbreite signifikant zu beeinflussen. Eine maximale Durchstimbarkeit von bis zu 18 meV wird erreicht, die somit größer als in anderen 2D-Materialien [Gro17b] ausfällt. Zudem bleibt sie auch über mehrere Wiederholungen hinweg linear und reversibel reproduzierbar. Darüber hinaus erweist sich die Polarisation und der Einzelphotonencharakter während des Vorgangs als stabil. Letzteres wird anhand der Autokorrelationsmessungen für unterschiedliche, angelegte Felder mit einem Wert von $g^{(2)}(0) \approx 0,13$ eindeutig belegt. Einen weiteren Einblick bieten Finite-Element-Simulationen der relativen Verspannung einer ML-Falte mit angelegtem E-Feld. So kann sich die Verspannung innerhalb weniger Nanometer sowohl in Stärke als auch im Vorzeichen (dehnen/stauchen) ändern, wodurch auch die betroffenen SPEs ein entsprechend anderes Verhalten an den Tag legen. Die konkreten Auswirkungen hängen somit stark von der exakten Position eines Emitters ab und lassen sich aktuell nur bedingt kontrollieren. Dennoch ermöglichen diese Resultate die Umsetzung von auf 2D-Materialien basierten, durchstimmbaren

⁴Prof. Dr. Ronaldo Trotta, Sapienza Universität in Rom, Italien

Einzelphotonenquellen sowie verschränkter Photonen [He16c] und dienen ebenso als Anregung für den weiteren Einsatz von spannungsinduzierten Emitttern. Hierfür ist zu erwarten, dass durch Piezoelemente ausgehende, anisotrope Felder [Tro16, MS16] von großer Bedeutung sein werden.

7 Kopplung von Einzelphotonenquellen in WSe₂-Monolagen an Metallstrukturen

Kurzfassung. Die Kombination von Monolagen mit einer strukturierten Oberfläche stellt eine neue Plattform für das Design von äußerst kompakten Lichtquellen dar, die auf Verspannung der dünnen Schichten basiert. Im Folgenden wird dieses Grundprinzip mittels WSe₂-Monolagen auf deren Einzelphotonenemitter angewandt, indem diese auf zwei unterschiedliche Probenstrukturen platziert werden. Im ersten Unterkapitel ist dies ein Silbersubstrat, das eine Oberfläche mit zufällig verteilten Nanopartikeln besitzt. Dort entstehen Quantenemitter mit Lebenszeiten von wenigen Hundert Pikosekunden. Zum besseren Verständnis wird anhand numerischer Berechnungen die Stärke der Kopplung der Emitter an die plasmonische Metalloberfläche untersucht. Im zweiten Unterkapitel finden deterministisch platzierte Goldnanotürmchen Anwendung, an denen ebenfalls Quantenemitter auftreten. Deren Polarisierung richtet sich dabei nach der Orientierung der rechteckigen Nanotürmchen. Dies wird ebenso durch numerische Simulationen unterstützt. Beides eröffnet neue Möglichkeiten, die Eigenschaften von TMDC-Quantenemitter anzupassen.



Kapitel 7.1 beruht auf der Veröffentlichung *Spontaneous Emission Enhancement in Strain-Induced WSe₂ Monolayer-Based Quantum Light Sources on Metallic Surfaces*, 2018, ACS Photonics [Tri18], und Kapitel 7.2 auf *Deterministic coupling of quantum emitters in WSe₂ monolayers to plasmonic nanocavities*, 2018, Optics Express [Iff18].

7.1 Verstärkung der spontanen Emission an Silbernanostrukturen

Die Einzelphotonenquellen in Übergangsmetall-Dichalkogenide können durch die Modulation der Substratoberfläche gezielt erzeugt werden. Wird eine Monolage auf eine entsprechende Struktur transferiert, so entstehen an den Orten hoher Verspannung Potentialtöpfe. Dies bietet die Möglichkeit, das Entstehen der Einzelphotonenquellen zu erzwingen und somit Kontrolle über deren Position zu erlangen [Ker16, Bra16a, PB17].

Ein grundlegendes Problem dieser Herangehensweise liegt in der nur unzureichenden Verstärkung der Emission der Quantenemitter. Bedingt durch den schichtartigen Aufbau und die hohe Robustheit einzelner Lagen bietet sich eine quantenelektrodynamische Kopplung an eine geeignete Substratoberfläche wie etwa Metalle an. Hierbei kann ein dipolartiger Emitter durch die Nähe zu einem plasmonischen Nanopartikel, der als optische Antenne dient [Nov10a, Bia12], eine Modulation der optischen Zustandsdichte erfahren. Dies wiederum führt zu einer drastischen Änderung vieler Charakteristiken des Emitters, wie etwa einer gesteigerten strahlenden Zerfallsrate, und erhöht so letztlich die spontane Emission. Konkret verstärken die Resonanzen der stark lokalisierten Oberflächenplasmonen der Metallpartikel die Intensität des elektrischen Felds [Ker16, Har11, Egg15].

Die Modulation optischer Eigenschaften von Molekülen durch den Einsatz der Plasmonik wird bereits seit den 1980er Jahren untersucht. Eine ausgeprägte Kopplung von zum Beispiel Farbmolekülen an dünne Silberfilme wurde in Lumineszenz- [Gla80] und Absorptionsstudien [Gar81] nachgewiesen. Während zwar eine Verstärkung der Fluoreszenz durch Silberinseln beobachtet wurde [Wei82], gibt es auch Hinweise auf deren Reduktion an Farbmolekülen oder auch kolloidalen CdSe Quantenpunkten, die sich sehr nahe an Metalloberflächen befinden [Dul02, Tri15]. Entsprechend kann es nötig sein, den direkten Kontakt der Emitter mit Metallschichten mittels einer nichtleitenden, nur wenige Nanometer dünnen Pufferschicht wie Al_2O_3 zu unterbinden. Darüber hinaus ist eine Photolumineszenzverstärkung nicht nur einer besseren Emissionsrate mittels Purcell-Effekts geschuldet, sondern wird ebenso durch eine erhöhte Anregungsrate gesteigert [Khu09].

Angelehnt an diese Ergebnisse wurde die gezielte Kopplung von Einzelphotonenemittern in dünnen, hexagonalen Bornitridschichten an einer Anordnung plasmonischer Nanopartikel demonstriert [Tra17b]. Ähnlich konnte auch die nahezu komplette

Lichtabsorption durch die Kopplung einer WSe₂-ML und eines Silberfilms beobachtet werden, die auf eine signifikante optische Verstärkung schließen lässt [Jar16]. Ebenso ist eine Steigerung der Photolumineszenz diverser TMDCs an metallischen Oberflächen belegt [Che17b, Zho17, Loh17]. Metallische Substrate besitzen weiterhin den Vorteil, dass der Großteil der Photonen senkrecht zur Oberfläche in Richtung des Sammelobjektivs gestreut wird. Demgegenüber stehen unerwünschte Verluste durch die Transmission und Absorption innerhalb des Substrats. Zusätzlich können kleinste, zufällig verteilte Partikel auf der Oberfläche als Nanoantennen dienen [Nov10a, Gia11, Ang06], mit deren Hilfe Quantenemitter nahe der Oberfläche moduliert werden können [And06, Cro03, Ang06, Nov12, Nov10b, Boz16, Boz17]. Basierend auf diesem Konzept werden im Folgenden die Auswirkungen eines solchen Silbersubstrats mit Nanopartikeln auf die Einzelphotonenquellen innerhalb einer WSe₂-ML untersucht.

7.1.1 Probenaufbau und optische Charakterisierung

Der zugrunde liegende Probenaufbau ist in Abb. 7.1a) dargestellt. Auf einem 600 µm dicken Saphirsubstrat (Al₂O₃) ist zunächst eine 10 nm dünne Chromschicht aufgebracht, die als Haftvermittler für die darüber liegende 200 nm dicke Silberschicht dient. Um den direkten Kontakt mit dieser Schicht zu vermeiden und entsprechend die photonischen Verluste in den folgenden Experimenten zu verringern, ist eine abschließende, isolierende Schicht Al₂O₃ mit einer Dicke von 3 nm aufgebracht. In den Rasterelektronenmikroskopbildern Abb. 7.1b) - d) ist eine Flocke WSe₂ zu sehen, die auf die Struktur, wie in Kapitel 3.1 beschrieben, transferiert wurde. Die helleren Teile in b) entsprechen Multilagen, wohingegen die dunkelsten und daher kontrastreichsten Stellen eine Monolage darstellen. Auf den Bildern lässt sich deutlich die raue Oberflächenstruktur des Substrates erkennen, die durch viele, einige hundert Nanometer großen Silbernanopartikel entsteht. Die Monolage legt sich über die vorhandene Beschaffenheit der Oberfläche und nimmt deren Morphologie komplett an. Ebenso entstehen hierbei typische Falten, welche zu einer stark lokalisierten, zufälligen Verspannung der ML und deren Potential führen.

Um den konkreten Einfluss einer solchen Verspannung näher zu untersuchen, wird die Tieftemperatur-PL (4 K) in dem Gebiet der ML näher betrachtet. Hierfür wird die Oberfläche systematisch in 250 nm-Schritten abgefahren und nach jedem Schritt ein Spektrum aufgenommen. Die so resultierende Karte der über den kompletten Wellenlängenbereich (710 nm - 830 nm) integrierten PL in Abb. 7.2a) vermittelt einen Eindruck der Emission der ML. Interessanterweise lässt sich keine deutliche Kontur

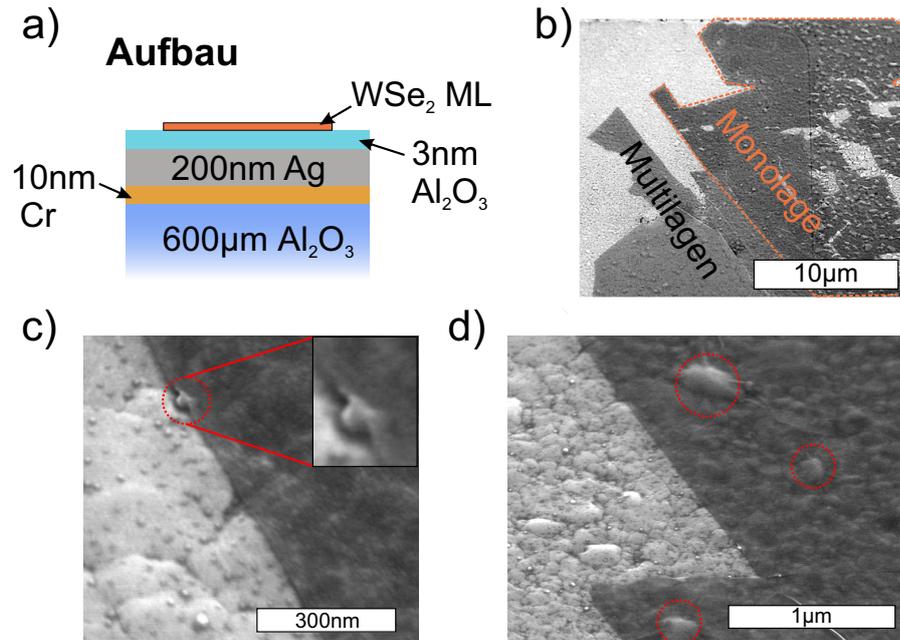


Abbildung 7.1: a) Schematischer Aufbau der Probe: Auf einem $600\ \mu\text{m}$ Saphirsubstrat ist eine $10\ \text{nm}$ dünne Chromschicht als Haftvermittler aufgebracht. Darauf befindet sich eine, mittels Elektronenstrahlverdampfung aufgebraute, $200\ \text{nm}$ dicke Silberlage, die mit einer $3\ \text{nm}$ -Schicht Al_2O_3 geschützt wird. b-d) SEM-Bilder der Probenoberfläche nach dem Transfer einer WSe_2 -Flocke. Der dunkelste Bereich in b) stellt eine Monolage dar, die sich sehr gut über die mit Nanopartikeln bedeckte Silberoberfläche in c) und d) legt. An den Partikeln (rot) kommt es zu einer Verspannung der Monolage.

der ML erkennen, was dem stark unterdrückten Signal des freien Exzitons und Trions geschuldet ist. Stattdessen werden viele unregelmäßig verteilte, helle Punkte im Bereich von $740\ \text{nm}$ und höher ersichtlich, die sich aus der Morphologie der Probe ableiten. Die einzelnen Spektren verschiedener heller Stellen aus der PL-Karte sind in b) geplottet und offenbaren ein charakteristisches, spektrales Bild: alle diese Punkte stehen in Verbindung mit der Emission scharfer Linien, wohingegen das sonst für WSe_2 typische Signal (vgl. Kap. 5.1) gänzlich fehlt. Der Grund hierfür ist vermutlich, dass die Exzitonen der ML durch das Spannungsfeld primär zu den Potentialeinschlüssen hingeleitet und dort gefangen werden, statt über ihre üblichen Kanäle zu zerfallen. Die stark strukturierte Oberfläche sorgt gewissermaßen auf Kosten der normalen WSe_2 -Emission für eine erhöhte Konzentration der Emission in vorhanden Oberflächendefekten und Falten der Monolage. Um die spektrale Qualität der scharfen Linien einordnen zu können, ist die Statistik der Linienbreite

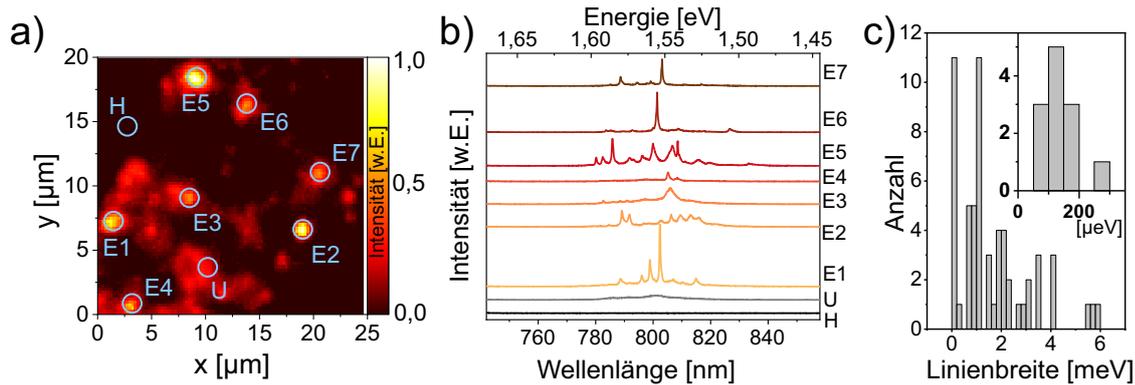


Abbildung 7.2: a) Photolumineszenzkarte der Monolage, integriert über den Bereich 710 nm - 830 nm. Es sind viele zufällig verteilte Emissionspunkte zu erkennen. b) Spektren der in a) markierten Positionen. Die mit E1-E7 definierten Punkte offenbaren schmale Quantenemitter, wohingegen die freie WSe₂-Emission komplett unterdrückt wird. U stellt die unverspannte Monolage sowie H den Hintergrund ohne Monolage dar. c) Linienbreitenstatistik der gefundenen Emmitter, die sich zu einem großen Teil am Auflösungslimit des Setups (100 μeV) befindet.

in Abb. 7.2c) dargestellt. Hierfür wurde die Laserleistung so weit reduziert, dass eine inhomogene Verbreiterung der Linien sowie Erhitzungseffekte durch den Laser stark verringert sind (708 W/cm²). Um die geringe Laserleistung zu kompensieren, beträgt die Integrationszeit der Spektren zehn statt üblicherweise einer Sekunde. Die Statistik offenbart eine durchaus starke Streuung über einen Bereich von bis zu 6 meV, wobei der Hauptteil der Emmitter bei weniger als 2 meV liegt. Nähere Betrachtung der schmalen Spektren macht deutlich, dass sich viele Emmitter nahe des spektralen Auflösungslimits des Setups von etwa 100 μeV einordnen lassen.

Diese Art von Emmitern unterliegt üblicherweise einem spektralen Zittern sowie Blinken über Zeit, das beides Ausdruck einer sich ständig ändernden Ladungsträgerumgebung [Pie13] oder auch spektraler Diffusion [Seu00] ist. Zur Überprüfung dieses Verhaltens ist im vorliegenden Fall eine Zeitserie in Abb. 7.3a) dargestellt. Hierfür werden Spektren ($t_{Int} = 1s$) über einen Zeitraum von 10 Minuten für einen ausgewählten Emmitter aufgenommen. Zwei Punkte lassen sich ausmachen: 1) Der Emmitter zeigt keinerlei Anzeichen für Blinken, sondern leuchtet durchgehend. 2) Ein spektrales Wandern auf einer Zeitskala von einigen Sekunden ist vorhanden. Eine genauere Untersuchung der spektralen Position in Abhängigkeit von der Zeit in dem Histogramm der Abb. 7.3b) gibt Aufschluss über die Größenordnung des Zitterns. So

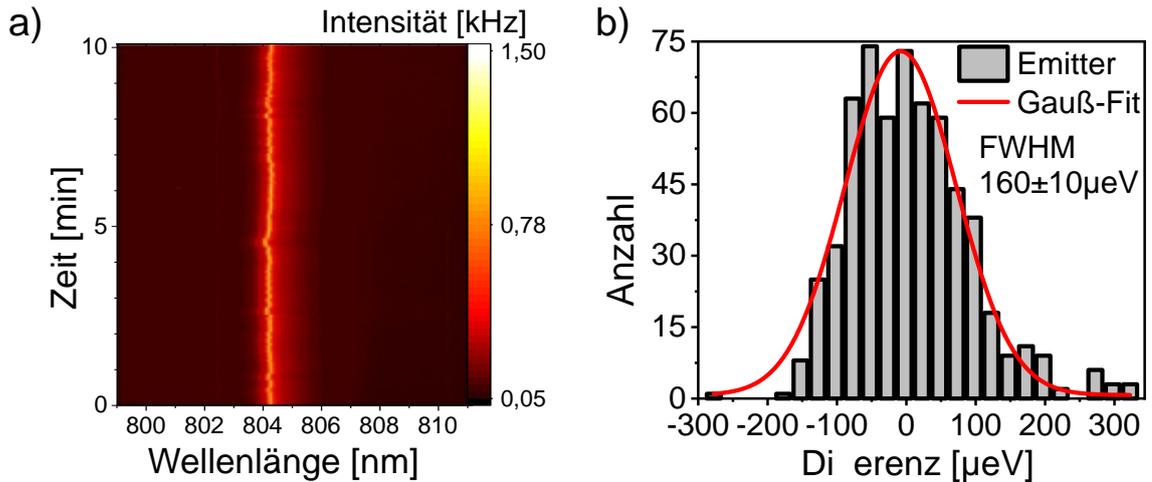


Abbildung 7.3: a) Leistungsserie eines Quantenemitters. Der Sprung bei $27 \mu\text{W}$ kommt durch eine erneute Optimierung der Emittorposition zustande. Fit_{Max} entspricht der Anpassung oberhalb, Fit_{Start} unterhalb von $27 \mu\text{W}$. b) Die zu a) zugehörige Linienbreite in Abhängigkeit von der Anregungsleistung lässt eine Stabilität gegenüber der Laserleistung erkennen. Zur besseren Übersicht ist die Leistung logarithmisch aufgetragen. c) Spektrales Verhalten eines Emitters im Verlauf von 10 Minuten zeigt kein Blinken, jedoch die Zeichen spektralen Wanderns. d) Aus c) extrahiertes Histogramm der Position des Emitters, angepasst mit einer Gaußfunktion ($\text{FWHM} = 160 \pm 10 \mu\text{eV}$).

lassen sich die gefundenen Schwankungen sehr gut mit einer Gaußverteilung anpassen, die als FWHM^1 einen Wert von $(160 \pm 10) \mu\text{eV}$ ergibt.

7.1.2 Diskussion des Einzelphotonencharakters und der Lebensdauer

Von besonderem Interesse ist der Quantencharakter der Emittor und ob es sich um Einzelphotonenquellen handelt. Die wie in Kap. 3.3 beschriebenen Autokorrelationsmessungen zweiter Ordnung in Abb. 7.4a) geben hierüber Aufschluss. Für die Messung wird ein grüner Laser ($\lambda_{Anr} = 532 \text{ nm}$) im Dauerstrichbetrieb auf einen Emittor hinreichender Helligkeit gerichtet (Abb. 7.4b) und das Signal anschließend spektral selektiert an den HBT-Aufbau weitergeleitet. In der vorliegenden $g^{(2)}(\tau)$ -Messung lässt sich ein klares Minimum für $\tau = 0$ erkennen, das den Einzelphotonencharakter bereits vermuten lässt. Außerdem wird auch ein langsames Bunching für größere Zeitdifferenzen ersichtlich. Um die Daten wie in a) gezeigt anpassen zu können,

¹engl.: full-width half-maximum

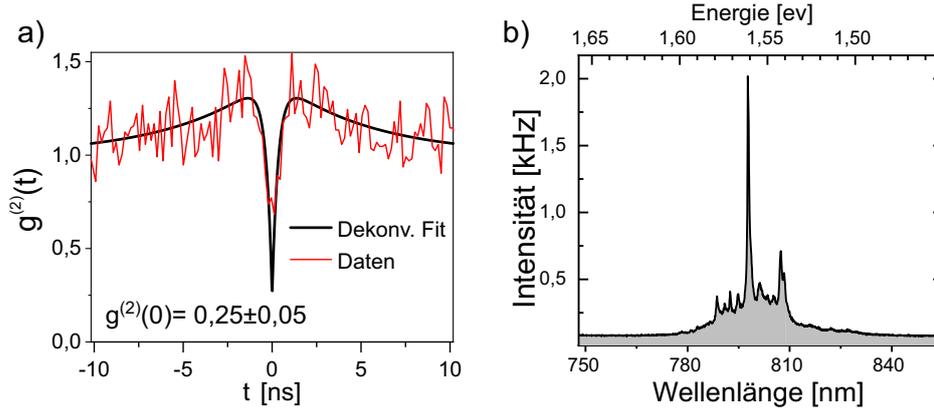


Abbildung 7.4: a) Autokorrelationsmessung zweiter Ordnung eines Quantenemitters. Für $\tau = 0$ ist ein deutliches Anti-Bunching zu erkennen ($g^{(2)}(0) = 0,25 \pm 0,05$). Dem Ganzen ist jedoch ein langlebiges Bunching-Signal überlagert, das bei der Anpassung (schwarz) berücksichtigt wurde. Zudem lässt sich eine Lebensdauer von etwa 300 ps extrahieren, die eine Größenordnung kürzer als vergleichbare Einzelphotonenemitter in dielektrischer Umgebung ist. b) Spektrum des Quantenemitters, der in a) verwendet wurde.

muss zusätzlich zu diesem Verhalten auch noch die endliche Zeitaufösung des Messaufbaus von etwa 350 ps beachtet werden [He16b]. Diese ist durch die verwendeten Einzelphotonendetektoren gegeben und kann mit einer gaußschen Antwortfunktion g_{Ant} berücksichtigt werden. Die gesamte Fitfunktion ergibt sich wie folgt zu:

$$g^{(2)}(\tau) = g_{Ant} \times \left(1 - \left(a \cdot e^{-|\tau|/\tau_1} \right) + (1 + g^{(2)}(0) - a)e^{-|\tau|/\tau_2} \right) \quad (7.1)$$

Der Parameter a stellt das Verhältnis der beiden beteiligten Bunching- und Anti-Bunchingverhalten dar, woraus sich direkt die Zeitskalen der zugehörigen Mechanismen zu $\tau_1 = (5,3 \pm 0,8)$ ns respektive $\tau_2 = (0,3 \pm 0,1)$ ns ergeben. Da die Messung unterhalb der Sättigungsanregungsleistung stattfand, lässt die aus der Korrelationsmessung gewonnene Zeit τ_2 Rückschlüsse auf die eigentliche Zerfallsrate der beteiligten Exzitonen zu. Diese unterscheidet sich mit einigen hundert Picosekunden um eine ganze Größenordnung von den in der Literatur typischerweise gefunden Lebenszeiten der Emitter von wenigen Nanosekunden. Eine entsprechende Gegenüberstellung ist in Tabelle 7.1 zu finden. Die signifikante Verkürzung der Lebensdauer deutet auf eine Verbesserung der spontanen Rekombinationsrate durch eine Kopplung der Emitter an die plasmonische Silberoberfläche hin. Aus dem langsamen Bunching-Verhalten

Referenz	Lebensdauer [ns]	Substrat
[Kum15]	4,1	blankes Silizium ^a (Si)
[He15]	3,6	SiO ₂ auf Si
[Sri15]	1,5 - 2,5	SiO ₂ auf Si
[Ton15]	1,8	SiO ₂ auf Si
[Ama15]	19,3 ^b	SiO ₂ auf Si
[Ye17]	10,3	SiO ₂ auf Si ^c
[PB17]	3 - 8	Si-Nanotürmchen auf Si
[Bra16a]	2,8	Feld aus Polymertürmchen auf Si

Tabelle 7.1: Literaturvergleich der Lebenszeiten von ungekoppelten Einzelphotonenquellen in WSe₂ auf dielektrischen Substraten. Alle bewegen sich in der Größenordnung einiger Nanosekunden. ^aGeätztes Feld aus Löchern. ^bLebenszeiten ermittelt aus Quantenausbeute. ^cDurch Druck in situ erzeugte Verspannung

wiederum ergibt sich der Verdacht, dass langlebigere, metastabile Zustände einen signifikanten Einfluss auf die Zerfallsdynamik besitzen. Eine wichtige Größe in diesem Zusammenhang könnte ein dunkler Zustand sein, der in Einzelphotonenquellen dieser Art nachgewiesen wurde [He16a]. Aus der Existenz solcher langlebiger Einflüsse leitet sich direkt ab, dass rein nicht-strahlende Rekombination nicht der alleinige Grund für die reduzierte Lebensdauer sein kann. Weiterhin lässt sich aus der Anpassung ein Wert für $g^{(2)}(0)$ von $0,25 \pm 0,05$ extrahieren, der eindeutig den Einzelphotonencharakter der Quelle bestätigt.

Zur genaueren Untersuchung der Lebenszeiten wurden 20, an zufälligen Stellen auf der Monolage gefundene Emitter hinsichtlich ihrer Zerfallsrate in zeitlichen Korrelationsmessungen untersucht. Zum Einsatz kam ein gepulster Laser mit einer Anregungswellenlänge von 445 nm und einer Pulsrate von 76 MHz. Auch hierbei ist wie schon bei den Autokorrelationsmessungen zuvor zu beachten, dass die gemessenen Zeiten nahe an der Zeitaufösung des Messaufbaus liegen und entsprechend berücksichtigt werden müssen. Folglich ergibt sich jeder gemessene Zerfall aus einer Faltung der intrinsischen Antwortfunktion AF des Aufbaus mit der eigentlichen Probenemission E . Dies wird

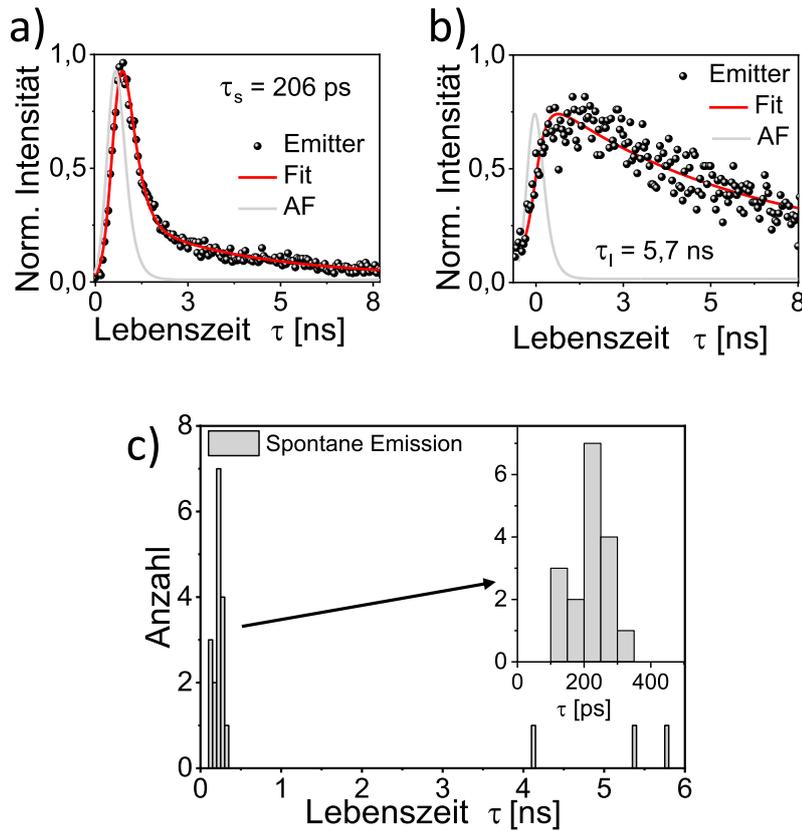


Abbildung 7.5: a) Typische zeitaufgelöste Lebensdaueremessung eines schnellen Emitters mit $\tau_s = 206$ ps. Der exponentielle Abfall ist rot, die Antwortfunktion AF des Setups grau gekennzeichnet. b) Langsamer Emitter mit gewöhnlicher Lebenszeit $\tau_l = 5,7$ ns. c) Die Lebensdauerstatistik 20 individueller Emitters zeigt einen klaren Schwerpunkt bei unter 400 ps, der auf eine plasmonische Kopplung hindeutet.

für jede einzelne Messung durch eine iterative Entfaltung der Antwortfunktion mit E gewährleistet, die wiederum durch die Biexponentialfunktion

$$E(\tau) = a \cdot e^{-\tau-\tau_0/\tau_1} \cdot \Theta(\tau - \tau_0) + (1 - a) \cdot e^{-\tau-\tau_0/\tau_2} \quad (7.2)$$

mit der Heaviside-Funktion² $\Theta(\tau - \tau_0)$ gegeben ist. Die Systemantwort AF lässt sich experimentell direkt aus der Messung des Lasersignals bestimmen und wird für die Entfaltung mit einer Gauß-Funktion modifiziert. Die Auswertung der 20 Emitters ergibt eine grundsätzliche Einteilung in zwei Gruppen, die exemplarisch in Abb. 7.5a) und b) dargestellt sind. Zum einen kann ein schneller Zerfall im Bereich < 500 ps beobachtet werden, der mit der eingangs erwähnten Autokorrelationsmessung

²Stufenfunktion

übereinstimmt. Zum anderen sind aber auch langsamere Zerfälle von mehreren Nanosekunden vorhanden, die sich gut mit den in der Literatur bereits bekannten Daten der Tab. 7.1c) decken. Abbildung 7.5 zeigt eine detaillierte Aufstellung aller gemessenen Lebensdauern. Es ist davon auszugehen, dass die Lebensdauer direkt mit der Kopplung der Emitter an die Plasmonen korreliert. Entsprechend koppeln nicht alle Emitter, die sich als Dipole beschreiben lassen, mit einer Resonanz des Metalls, was aufgrund der zufälligen Verteilung und Ausrichtung der Nanopartikel auf der Oberfläche schlüssig scheint. Die langsamen Einzelphotonenquellen stellen somit den Standardfall einer verspannten Monolage dar.

Von experimenteller Seite sei hier noch erwähnt, dass sich die gesamte Probenstruktur über mehrere Monate hinweg als stabil erwies. Die transferierte Monolage und insbesondere die Emitter hielten vielen wiederkehrenden Einkühlzyklen von Raumtemperatur bis hinab zu 4 K stand, ohne sichtbare Verschleißerscheinungen zu zeigen.

7.1.3 Simulation der Probenstruktur

Um neben der experimentellen Seite auch einen Vergleich zur Theorie ziehen zu können, dass es zu einer Kopplung der Quantenemitter an die Plasmonen der Silberoberfläche kommt [Jar16], sind im Folgenden die Ergebnisse entsprechender FDTD-Simulationen des Kooperationspartners aus Seoul³ aufgeführt. Konkret ist der Fall eines Dipols von Bedeutung, der an eine kegelförmige Silberspitze unterschiedlicher Dimensionen koppelt und hierdurch seine spontane Emission erhöht. Als Vergleich dient ein Dipol nahe eines Saphirkegels oder einer glatten Oberfläche. Da sich die Behandlung der spontanen Emission innerhalb der Quantenelektrodynamik analog zum klassischen Fall verhält, korreliert deren Rate direkt mit der Emissionsleistung in Luft und der Nanostruktur [Eng05, Xu99].

In Abb. 7.6a) ist eine solche idealisierte Struktur aus Silberkegeln, die von einer Monolage bedeckt ist, gegeben. Der Kegel hat eine Höhe von 20 nm sowie einen Durchmesser von 23 nm, um die Nanopartikel des Experiments abzubilden. Weiterhin ist die komplette Struktur von einer 3 nm dünnen Al_2O_3 -Schicht überzogen, für die ein Brechungsindex von 1,671 angesetzt wird. Das Saphirsubstrat besitzt im Bereich von 800 nm keine Absorption bei einem Brechungsindex von 1,7522. Nun wird ein horizontaler Dipol mit einer Resonanz bei 800 nm an der Spitze eines Kegels platziert

³Prof. Dr. Soon-Hong Kwon, Chung-Ang Universität, Südkorea

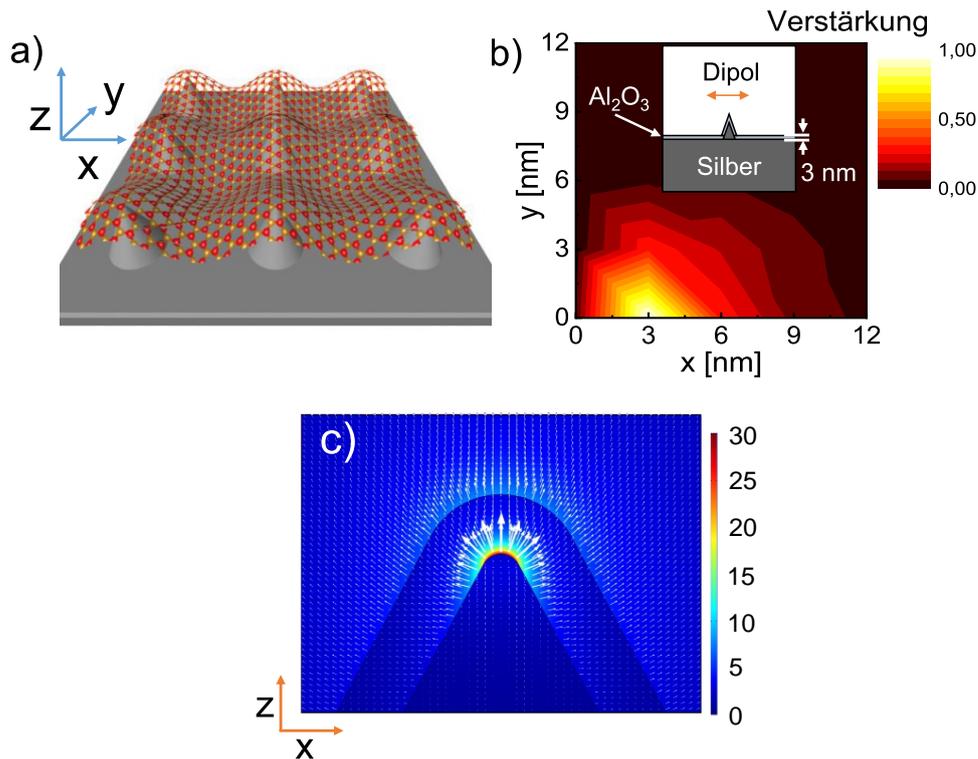


Abbildung 7.6: FDTD-Simulationen: a) Vereinfachte Darstellung der Probenstruktur durch eine Monolage, die sich über Kegel auf der Oberfläche legt. b) Zusätzliche Verstärkung der Zerfallsrate eines horizontal ausgerichteten Dipols, in Abhängigkeit von seiner Distanz zu einer Kegelspitze (0-12 nm). Der Dipol wird in 3 nm Schritten parallel zur Probenoberfläche vom Kegel entfernt. Das Maximum liegt bei einem Abstand von 3 Nanometern, die Auflösung des Feldes bei 1 nm. c) Vektorplot der Feldverteilung und Verstärkung des Feldes E/E_0 an der Spitze eines Silberkegels. Die größte Verstärkung erfolgt direkt an der Spitze.

und in 3 nm-Schritten horizontal von dem Kegel weg bewegt. Die Abstrahlungsleistung des Dipols wird relativ zu der Leistung ohne Nanostruktur angegeben, wodurch sich eine Steigerung der Zerfallsrate wie in Abb. 7.6b) ergibt. Die Gitterauflösung der Simulation beträgt 1 nm. Es wird deutlich, dass der Dipol seine maximale Verstärkung der Zerfallsrate um einen Faktor 100 bei einem Abstand von etwa 3 nm erfährt, wohingegen an einem reinen Saphirkegel keine signifikante Änderung auftritt.

Die Verteilung des Vektorfeldes sowie der Feldverstärkung E/E_0 für den mit einer Schicht Al_2O_3 überzogenen Metallkegel, welcher durch ein Feld der Stärke 1 V/m angeregt wird, ist in c) geplottet. Direkt um den Kegel ergibt sich eine Verstärkung um einen Faktor 30 verglichen mit dem Ausgangsfeld, was wiederum die erhöhte

Zerfallsrate unterstützt. Weiterhin zeigt das Vektorfeld direkt an der Spitze des Kegels in eine zur Oberfläche senkrechte Richtung, wodurch eine Kopplung an einen perfekt horizontalen Dipol nicht möglich ist. Demgegenüber besteht eine Überlappung zwischen der horizontalen Komponente des Feldes und des Dipols entlang der Kante des Kegels, mit der eine starke Zunahme der Zerfallsrate einhergeht. Der Dipol ist zudem in der Realität nicht perfekt horizontal ausgerichtet und erfährt somit noch eine weitere Verstärkung durch die vertikale Komponente. Weitere Simulationen in Abhängigkeit unterschiedlicher Kegelgeometrien werden im Folgenden diskutiert.

In Abb. 7.7a) wird die Höhe eines Kegels mit einem Kegelwinkel von 60° von 10 nm bis 40 nm in 10er Schritten variiert. Mit abnehmender Höhe ist eine zunehmende Blauverschiebung der Absorption zu erkennen, wie es bereits aus der Literatur zu erwarten ist [Sch13]. Demgegenüber zeigt eine Veränderung der Kegelbasis bei konstanter Höhe in Abb. 7.7b) ein konträres Verhalten. So nimmt die Absorptionswellenlänge bei einer Verkleinerung des Durchmessers von 23 nm bis 10 nm stetig zu, wobei die Verschiebung stärker ausfällt, je schmaler der Kegel ist. Konkret ergibt sich für einen Kegel mit 10 nm eine Absorptionswellenlänge von 650 nm. Neben der Kegelgeometrie werden auch halbkugelförmige Silberstrukturen in Betracht gezogen. Die entsprechende Simulation der Absorption für zwei unterschiedliche Basisdurchmesser von 12 nm und 24 nm bei einer festen Höhe von 12 nm ist in Abb. 7.7 dargestellt. Tatsächlich entspricht die Größenordnung dieser Geometrie sehr gut den kleinsten real auf der Probe gefundenen Partikeln, die noch eine Auswirkung auf die Monolage besitzen (vgl. Abb. 7.1c). In all den gezeigten Simulationen ist der Einfluss der Monolage auf die dielektrische Umgebung und somit auf die konkrete Absorptionswellenlänge noch nicht berücksichtigt. Es ist davon auszugehen, dass diese eine weitere Rotverschiebung um mehrere 10 nm beiträgt [Kra18, Abi16]. Dadurch wiederum liegen die erwähnten halbkugelförmigen Strukturen mit dem kleinsten Durchmesser in dem spektral für WSe₂-Quantenemitter relevanten Bereich von etwa 730 nm. Weiterhin weisen solche plasmonische Strukturen eine primäre Verstärkung der spontanen Emission auf ihrer niederenergetischen Seite auf [Tho04, Bha07, Ang06]. Ursächlich hierfür ist, dass direkt an der Plasmonenfrequenz sowohl radiative wie auch nicht-radiative Zerfälle signifikant verstärkt werden, wohingegen bei höheren Wellenlängen die erwünschten radiativen – und somit die Gesamtverstärkung – überwiegen.

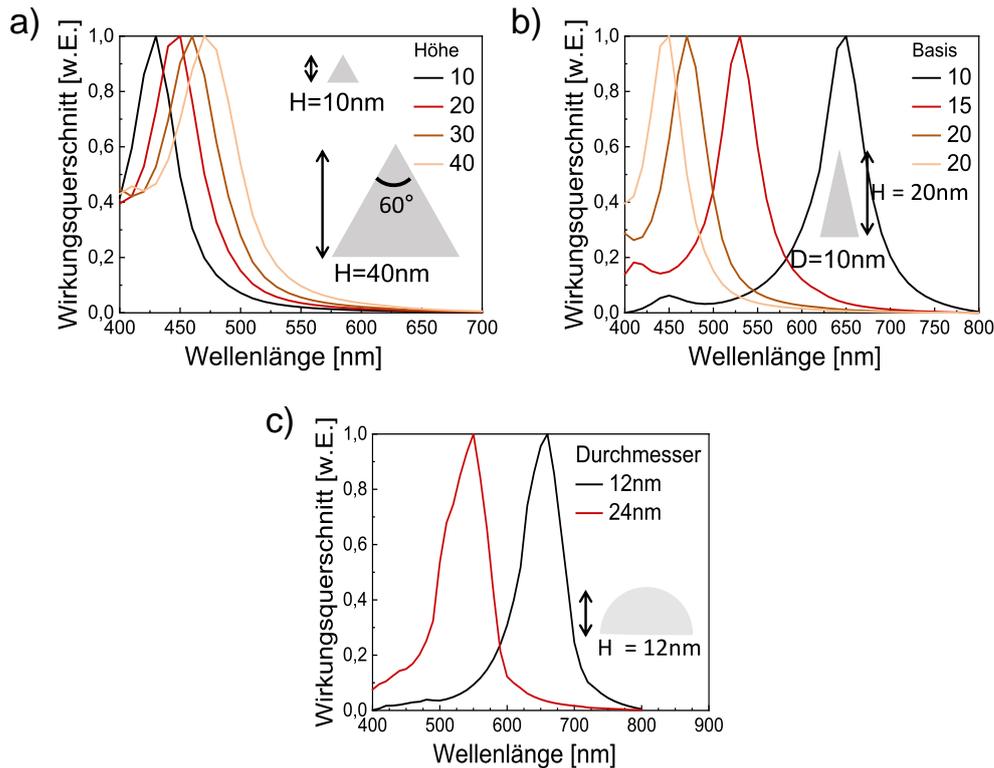


Abbildung 7.7: Simulationen des Absorptionsquerschnitts verschiedener Geometrien: a) Die Höhe eines Kegels mit einem Öffnungswinkel von 60° zeigt eine Blauverschiebung mit abnehmender Höhe. b) Eine Verkleinerung des Kegeldurchmessers bewirkt eine Rotverschiebung um bis zu 200 nm. c) Ein halbkugelförmiger Nanopartikel mit 12(24) nm Durchmesser und Höhe zeigt eine Resonanz bei 660(550) nm.

7.1.4 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurde gezeigt, dass sich eine raue Metalloberfläche, die mit einer dünnen Al_2O_3 -Schicht überzogen ist, gut dafür eignet, Einzelphotonenemitter in einer Monolage WSe_2 zu aktivieren. Zum einen wird durch die Morphologie der Oberfläche die zufällige Entstehung der Emitter begünstigt, indem lokalisierte Verspannungen die Potentiallandschaft entsprechend modulieren. Zum anderen verhalten sich die metallischen Nanopartikel als plasmonische Nanoverstärker, welche zu lokalisierten, hohen elektrischen Feldern führen. Diese wiederum erhöhen die spontane Emissionsrate der Quantenemitter, die an sie koppeln können. Dies belegen Lebensdauermessungen von 20 individuellen Quellen, die aufzeigen, dass eine Verkürzung der Lebensdauer um mehr als eine Größenordnung möglich ist. Statt der für SPEs in TMDC-Monolagen üblichen Lebenszeiten von wenigen Nanosekunden bewegen sie sich für die gekop-

pelten Emitter konstant unter 500 ps. In Autokorrelationsmessungen wurde zudem der Einzelphotonencharakter mit einem $g^{(2)}(0)$ -Wert von $0,25 \pm 0,05$ bestätigt. Numerische Simulationen bestätigen den grundsätzlichen Einfluss der Nanopartikel auf die Emissionscharakteristik der Quantenemitter und belegen eine Verstärkung der Emission je nach vorliegender Geometrie. Entsprechend stellen Konzepte, die auf einer Kombination aus Einzelphotonenemitter in TMDCs und plasmonischer Strukturen basieren [Cha20], ein vielversprechendes Forschungsgebiet in der Quantenphotonik dar.

7.2 Kopplung verspannungsinduzierter Quantenemitter an Goldnanotürmchen

Nachdem im vorherigen Unterkapitel 7.1 die grundlegende Möglichkeit untersucht wurde, Einzelphotonenquellen an metallischen Strukturen zu erzeugen, steht nun die gezielte Beeinflussung der Emittereigenschaften im Fokus. Statt zufällig verteilter Silberpartikel kommt ein Gitter aus rechteckigen Goldnanotürmchen zum Einsatz, auf das eine WSe_2 -Monolage transferiert wurde. Mit Hilfe solcher plasmonischen Nanostrukturen lässt sich die optische Zustandsdichte am Ort der Emitter beeinflussen, was wiederum zu einer Änderung der optischen Eigenschaften führt [Ker16, PB17, Bra16a]. Verglichen mit der bisherigen Integration von positionierten Quantenemittern [Gal08, Sch09, Sün08], die nur in Forschungseinrichtungen realisiert wurde, stellen TMDCs eine leicht zugängliche Möglichkeit dar, Quantenemitter den eigenen Wünschen anzupassen. Metallische Nanostrukturen bieten ein sehr kleines Modenvolumen, an das Emitter koppeln können, wodurch deren Emissionsrate verbessert wird [Rus12, Kon18]. Zudem kann die Polarisation eines Emitters über die Wahl der richtigen Geometrie der Nanostruktur den eigenen Wünschen angepasst werden [Li15].

Basierend auf dieser Erkenntnis und der unter anderem in Kapitel 7.1 aufgezeigten Möglichkeit, die Einzelphotonenquellen an plasmonische Moden der Substratoberfläche koppeln zu lassen, wurde das nun folgende Experiment entworfen. Hierbei wird die signifikante Feldverstärkung der metallischen Nanostrukturen in Kombination mit der deterministischen Positionierung der Emitter ausgenutzt [Kra18, Lal18, Tra17b, Cha18, Muk17]. Zeitgleich wurde diese Idee in ähnlichen Veröffentlichungen vorgestellt [Cai17, Luo18].

7.2.1 Probenstruktur und -herstellung

Die Probe besteht aus einem kommerziell erworbenen Siliziumwafer, der mit einer 200 nm dünnen Siliziumdioxidschicht überzogen ist, wie schematisch in Abb. 7.8,a) dargestellt. Für die Strukturierung der Oberfläche kommen Goldnanotürmchen unterschiedlicher Abmessungen und Formen zum Einsatz. Hierfür wird zunächst eine dünne PMMA-Schicht auf die Oberfläche aufgeschleudert, die anschließend mittels Elektronenstrahlithografie an den gewünschten Stellen belichtet wird. Die Dimensionen der prozessierten Nanotürmchen bewegen sich zwischen 20 nm - 240 nm und beinhalten sowohl quadratische als auch rechteckige Grundrisse. Nach der Entwicklung des

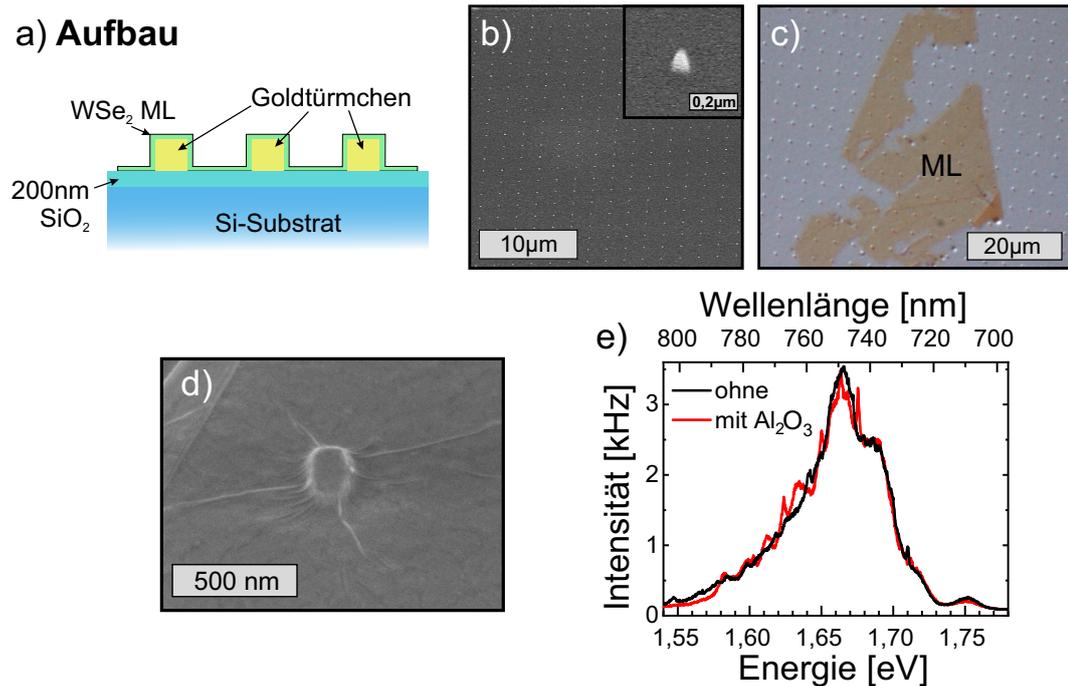


Abbildung 7.8: a) Schematischer Aufbau der verwendeten Struktur. Auf einer 200 nm dünnen SiO₂-Schicht werden Goldstrukturen mittels Elektronenstrahlithografie aufgebracht und anschließend eine WSe₂-ML transferiert. b) und c) SEM-Bilder der Probenoberfläche vor und nach dem Transfer einer Monolage. d) Nahaufnahme eines rechteckigen Nanotürmchens (90 nm x 30 nm), das von der Monolage bedeckt ist. Die ML passt sich der Oberfläche an und offenbart Falten, an denen Verspannungen entstehen. e) Der Vergleich der Emission einer ML auf einem Substrat mit und ohne eine 5 nm dünne Al₂O₃-Schicht zeigt keinen signifikanten Einfluss.

Photolacks wird eine 80 nm dicke Goldschicht aufgedampft, sodass nach dem folgenden Lift-off⁴-Prozess nur die Goldtürmchen auf der Oberfläche übrig bleiben. Das Ergebnis eines solchen Gitters, bestehend aus den Nanostrukturen mit einer Periode von 2 μm, ist in dem SEM-Bild in Abb. 7.8b) zu sehen. Anschließend wird eine WSe₂-Monolage wie in Kap. 3.1 beschrieben auf die Probe transferiert. Wie in Abb. 7.8c) erkennbar, überdeckt eine Monolage typischerweise mehrere Türmchen. Die Nanostrukturen bilden die Morphologie der Substratoberfläche, an die sich die Monolage anpasst. Insbesondere legt sich diese eng über die Goldtürmchen, wodurch sich zum einen an den Kanten, aber ebenso durch die Falten der ML starke Verspannungen bilden können. Die Auswirkungen dieses Effekts stellt Abb. 7.8d) deutlich dar. Des Weiteren ist auf

⁴engl.: Abheben der verbliebenen Fotomaske

einem Teil der Proben testweise auch noch eine 5 nm Schicht Al_2O_3 aufgebracht, um die mögliche Unterdrückung der strahlenden Rekombination durch den direkten Kontakt mit Metall wie in Kap. 7.1 zu reduzieren. Im direkten Vergleich der Emissionsintensität zweier WSe_2 -MLen vor und nach der Aufbringung dieser Schutzschicht zeigt sich jedoch kein signifikanter Unterschied in den Spektren in Abb. 7.8e) bei sonst nahezu identischen Bedingungen. Dies lässt darauf schließen, dass die Abwesenheit einer dielektrischen Deckschicht nicht zu einer Zunahme der Verluste in den Türmchen oder dem Substrat führt.

7.2.2 Optische Charakterisierung und Einfluss der Verspannung

Die Photolumineszenzmessungen wurden mit einem 532 nm Laser in dem in Kap. 3.2 beschriebenen Aufbau bei 4 K durchgeführt. Da hierbei im Weiteren eine hohe Ortsauflösung nötig ist, kam der faserbasierte konfokale Aufbau zum Einsatz, um eine Ortsauflösung von 500 nm zu erreichen. Die Leistungsserie einer Monolage von 0,5 μW bis 100 μW in Abb. 7.9,a) gibt Aufschluss über die grundlegende Charakteristik der Photolumineszenz. So werden die Spektren selbst bei hohen Anregungsleistungen von den lokalisierten Emittern im Bereich unterhalb von 1,71 eV dominiert. Demgegenüber bleibt die Emission des Exzitons (X, 1,75 eV/710 nm) und des Trions (X-, 1,72 eV/720 nm) stark unterdrückt. Dies ist ein typisches Verhalten innerhalb der plasmonischen Umgebung, die durch die Goldtürmchen gegeben ist. Der leistungsabhängige Intensitätsverlauf I einer der lokalisierten Emitter (Abb. 7.9b) lässt sich ein einfaches Zwei-Niveau-Systems nach $I = I_S / (1 + P_n / P_{Anr})$ mit der Sättigungsintensität I_S und dem Normalisierungsparameter P_n anpassen [Kum15]. Der zunächst lineare Anstieg und dessen Sättigung ab etwa 50 μW ist Ausdruck der endlichen Lebenszeit des beteiligten Zustands, die ein beliebiges Neuanregen verhindert. Zur Bestätigung des Einzelphotonencharakters dient die Autokorrelationsmessung zweiter Ordnung der Abb. 7.9c), die an einem geeigneten Emitter (Einschub) durchgeführt wurde. Konkret befand sich dieser an einem 140 nm x 140 nm Türmchen, das mittels des in Kap. 3.3 aufgeführten Aufbaus untersucht wurde. Das Ergebnis der Autokorrelationsmessung ergibt einen Wert von $g^{(2)}(0) = 0,17 \pm 0,15$, der die vorliegenden Emitter als Einzelphotonenquellen klassifiziert.

Weiterhin ist der Einfluss der Nanotürmchen auf die Entstehungsorte der Quantenemitter von Interesse. Hierzu wurde für den in Abb. 7.10,a) gezeigten Teil einer Monolage eine Karte der Photolumineszenz erstellt. Der 25 μm x 16 μm große Bereich überdeckt viele Türmchen mit einem quadratischen Grundriss der Kantenlänge 140 nm

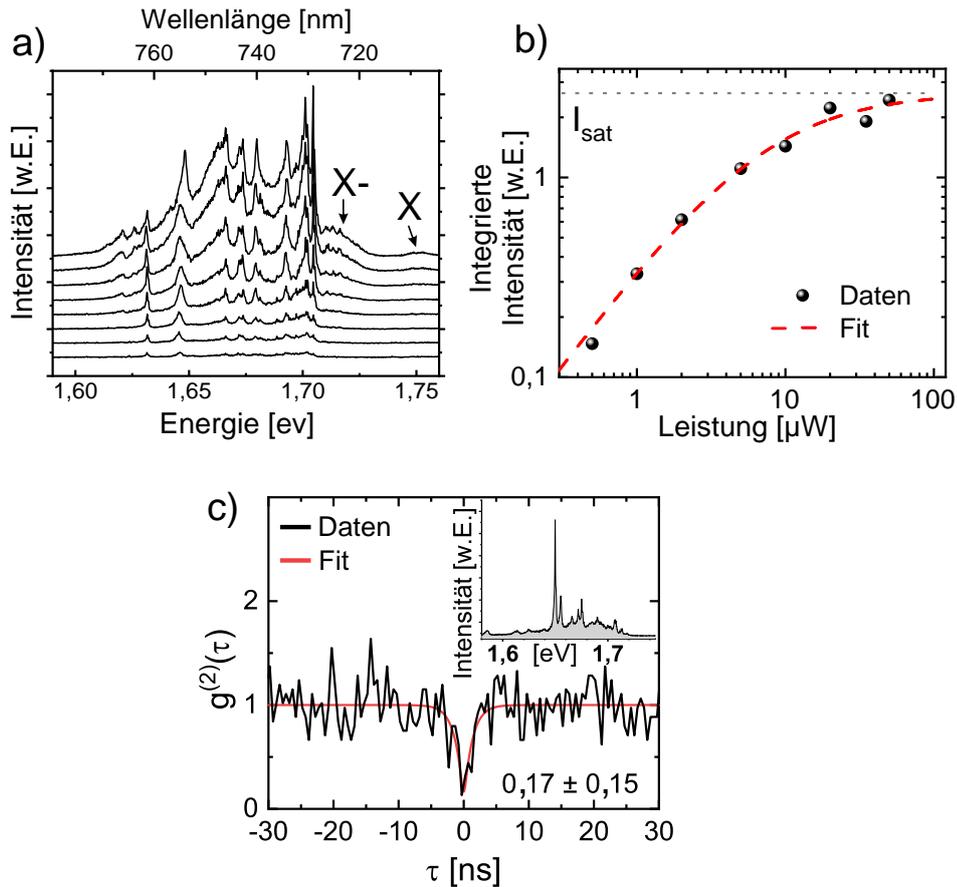


Abbildung 7.9: Charakterisierung der ML, die auf einem Gitter aus Nanotürmchen transferiert wurde: a) In der Leistungsserie dominieren die lokalisierten Emitter unterhalb 1,71 eV klar die Emission, und selbst bei höheren Anregungsleistungen bleiben das Exziton (X) und Trion (X-) unterdrückt. b) Beispielhafte Anpassung der leistungsabhängigen Intensität eines Emitters mittels eines Zwei-Niveau-Modells. Eine deutliche Sättigung setzt bei etwa 10 μW ein. c) Die Autokorrelation zweiter Ordnung bestätigt den Einzelphotonencharakter mit einem Wert von $g^{(2)}(0) = 0,17 \pm 0,15$.

sowie einem Abstand von je 4 μm und wurde in 500 nm Schritten abgetastet. Die entsprechende Karte der integrierten Photolumineszenz (1,55 eV - 1,76 eV) in Abb. 7.10b), die mit dem Gittermuster der zugrunde liegenden Türmchen (schwarze Striche) überlagert wurde, zeigt die eindeutige Korrelation zwischen der spektralen Intensität und dem Ort der Nanostrukturen. Zur Verdeutlichung dieses Sachverhaltes ist eine Pixelspalte der PL-Karte (blaue Pfeile) als Konturplot der zugehörigen Spektren in Abb. 7.10c) sowie deren Summe der Intensität dargestellt. Die Photolumineszenz innerhalb des ausgewählten, eindimensionalen Bereichs nimmt in regelmäßigen Abständen

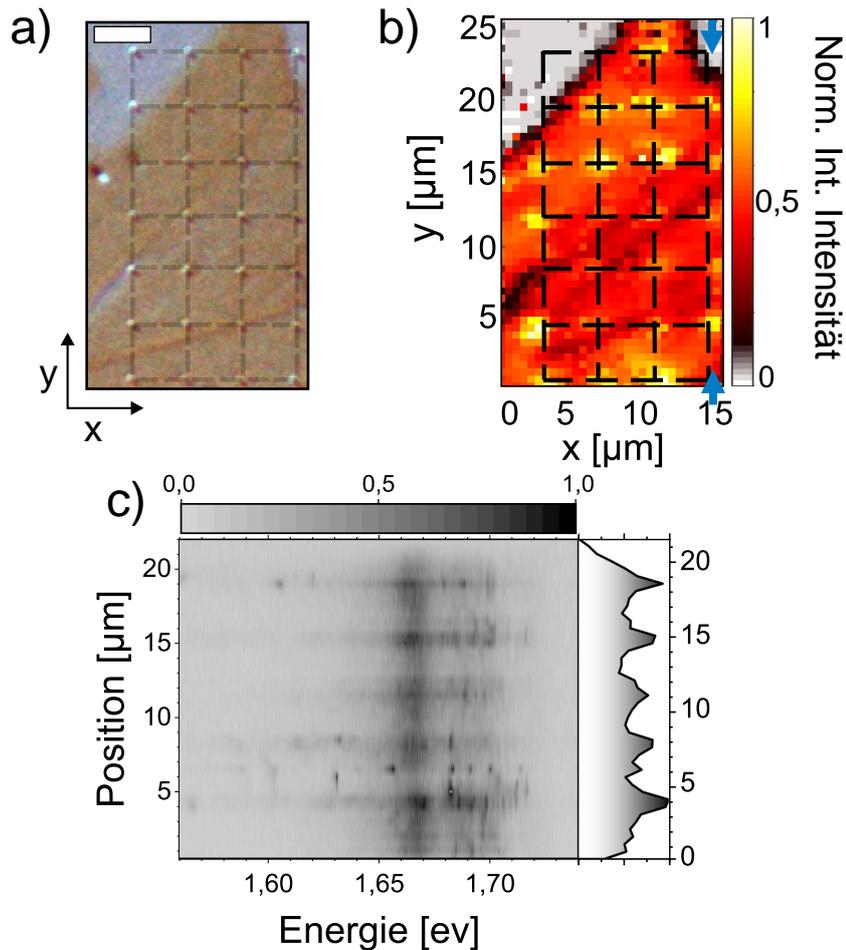


Abbildung 7.10: Erstellen der ortsaufgelösten PL-Karte einer ML: a) SEM-Ausschnitt des relevanten Bereichs der ML mit Türmchen im Abstand von $4\ \mu\text{m}$. Maßstabsleiste: $4\ \mu\text{m}$. b) Die ortsaufgelöste PL-Karte (integriert über $1,55\ \text{eV} - 1,76\ \text{eV}$) enthüllt regelmäßige, helle Punkte, die mit der Position der Nanotürmchen (schwarzes Gitter) übereinstimmen. c) Serie der Spektren zwischen den blauen Pfeilen in b). An den Positionen der Nanotürmchen (alle $4\ \mu\text{m}$) ist eine Zunahme der lokalisierten Emission sowohl an Intensität als auch an Häufigkeit zu erkennen.

von $4\ \mu\text{m}$ zu, die genau der realen Distanz zwischen den Goldtürmchen entsprechen. Ebenso ist ersichtlich, dass die Intensität insbesondere an diesen Positionen von den lokalisierten Emittoren – aktiviert durch die Verspannung innerhalb der ML – unterhalb von $1,71\ \text{eV}$ dominiert wird. Dies alles deutet auf eine Kopplung zwischen den Quantenemittern und Goldstrukturen hin [Hug18].

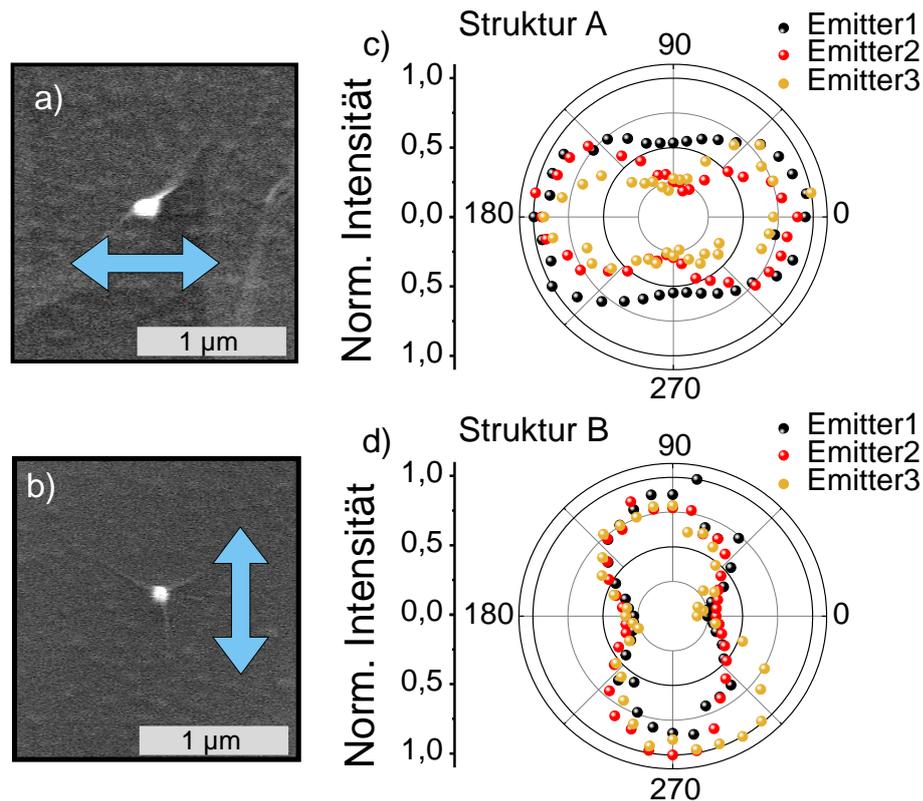


Abbildung 7.11: Polarisationsmessungen an zwei rechteckigen, zueinander orthogonalen Goldstrukturen (90 nm x 30 nm): a)-b) SEM-Bilder der von einer Monolage bedeckten Strukturen deren lange Achse jeweils entlang der blauen Pfeile verläuft. c)-) Zu a) und b) gehörige Polarisationsserien verschiedener Emitter an den jeweiligen Strukturen, normiert auf die jeweils maximale Intensität. Alle Emitter zeigen eine Ausrichtung der Polarisation, die der Richtung der Struktur folgt.

7.2.3 Einfluss der Nanotürmchen auf die Polarisation der Quantenemitter

Bisher wurden in diesem Kapitel nur die quadratischen Nanotürmchen diskutiert. Betrachtet man stattdessen die rechteckigen Strukturen, so ist ein Einfluss der daraus resultierenden Vorzugsrichtung auf die optischen Eigenschaften zu erwarten. Hierfür exemplarisch sind in Abb. 7.11,a) und b) zwei Goldtürmchen mit jeweils einer Größe von 90 nm x 30 nm dargestellt, die um 90° zueinander verdreht und mit der selben Monolage überdeckt sind (Pfeile dienen zur Verdeutlichung der Orientierung). Auf beiden SEM-Bildern lassen sich wieder die individuellen Falten der Monolage

erkennen, die sich unabhängig von der Ausrichtung der darunterliegenden Struktur in verschiedene Richtungen ausbilden. Zugehörige polarisationsaufgelöste Messungen verschiedener Emitter an den beiden Türmchen in Abb. 7.11c) und d) demonstrieren eine ausgeprägte, lineare Polarisation, wie es für solche lokalisierten Emitter zu erwarten ist (vgl. Kap. 5.2). Auffälligerweise zeigen alle Emitter des gleichen Ortes die gleiche Polarisationsrichtung, die zwischen den Messungen der verschiedenen Türmchen zueinander um etwa 90° verdreht ist. Weiterhin stimmt sie mit der Ausrichtung der langen Achse jeder Nanostruktur überein. Tatsächlich wird für rechteckige, plasmonische Strukturen erwartet, dass sie die Polarisation in der Nähe befindlicher Dipole beeinflussen und entsprechend ausrichten [Luo17, Cai17]. Etwaige Abweichungen hängen von der ursprünglichen Orientierung der Dipole und somit der Überlappung mit der plasmonischen Mode sowie der konkreten Art, wie sich die Monolage um die Struktur legt, ab.

7.2.4 Simulation der Nanotürmchen

Um den Mechanismus der Kopplung besser verstehen zu können, werden im Folgenden FDTD-Simulationen der beteiligten plasmonischen Moden vom Kooperationspartner aus Seoul⁵ diskutiert. Zunächst erfolgt die Betrachtung der quadratischen Geometrie von $140\text{ nm} \times 140\text{ nm}$ in Abb. 7.12,a). Die gezeigte Verstärkung des elektrischen Feldes E/E_0 an der Oberseite des Goldtürmchens, an der ein Emitter in WSe_2 platziert werden kann, erreicht einen Wert von bis zu 20. Insbesondere ergibt sich für die gezeigte Anregung in x-Richtung (Pfeil) eine konstante Verstärkung von mindestens 10 entlang der orthogonalen Kante (y-Achse) der Struktur. Ebenso ist natürlich der umgedrehte Fall bei einer y-Anregung möglich. Weiterhin zeigt der enthaltene Vektorplot, dass die Feldlinien typischerweise der Ausrichtung des Dipols folgen, der als Anregung dient (hier x-Richtung). Da ein lokalisierter Emitter in der Ebene der Monolage oszilliert, ist eine entsprechende Kopplung dessen an die plasmonische Mode an den Ecken und Kanten des Goldtürmchens zu erwarten. Die Spektren des Streuquerschnitts in Abb. 7.12b) demonstrieren die Abhängigkeit der spektralen Position von der Größe des zugrunde liegenden quadratischen Goldtürmchens. Gezeigt sind Kantenlängen von 40 nm bis 140 nm , wobei Letztere der im experimentellen Teil untersuchten Struktur entspricht. Es ist ersichtlich, dass die für 140 nm ausbildende Mode bei etwa 730 nm ihr Maximum erreicht sowie eine große FWHM von 230 nm

⁵Prof. Dr. Soon-Hong Kwon, Chung-Ang Universität, Südkorea

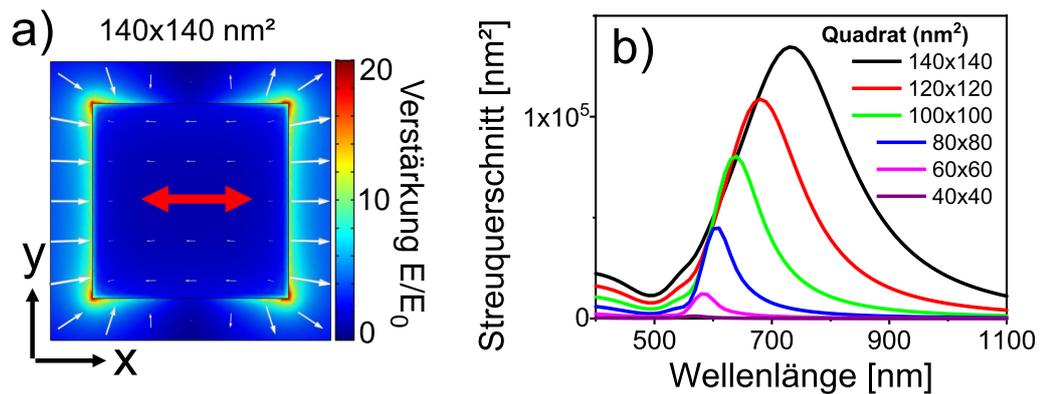


Abbildung 7.12: FDTD-Simulationen für ein $140 \text{ nm} \times 140 \text{ nm}$ großes Quadrat: a) Vektorkarte der Feldverteilung sowie die Verstärkung des elektrischen Feldes E/E_0 an der Oberseite der Goldstruktur für eine Anregung in x-Richtung (roter Pfeil) bei 740 nm . b) Resultierender Streuquerschnitt für Quadrate unterschiedlicher Größe. Für $140 \mu\text{m}$ ergibt sich eine Resonanz bei 730 nm mit einer FWHM von 230 nm . Mit Abnahme der Kantenlänge kommt es zu einer Blauverschiebung der Resonanz.

besitzt. Folglich besteht die Möglichkeit, dass die Quantenemitter der Monolage, die in einem Bereich von $730 \text{ nm} - 800 \text{ nm}$ liegen, sehr gut an diese Mode koppeln können und die strahlende Emission entsprechend verstärkt wird. Weiterhin zeigt die Variation eine Blauverschiebung der Resonanz bis unter 600 nm .

Neben den quadratischen Strukturen sind rechteckigen Geometrien von Interesse, um deren Einfluss auf die Polarisation der Emitterdipole wie in Abb. 7.11 zu untersuchen. Hierfür sind in Abb. 7.13 das Modenprofil sowie der Streuquerschnitt eines $90 \text{ nm} \times 30 \text{ nm}$ großen Rechtecks, wie er auch eingangs verwendet wird, dargestellt. Die elektrische Feldverteilung bei einer Anregung in x-Richtung entspricht der gleichen wie für das Quadrat. Konkret erfolgt eine Verstärkung an den Kanten senkrecht zur Anregung, während die Feldvektoren dem ursprünglichen Dipol folgen. Der einzige Unterschied zu dem Quadrat besteht darin, dass sich das Feld wie erwartet der Geometrie anpasst und somit stärker an den beiden kurzen Kanten ausbildet. Im Plot des Streuquerschnitts 7.13b) wird der Unterschied zwischen den beiden orthogonalen Anregungsrichtungen (x und y) dargestellt. Im Detail besitzt die plasmonische Nanostruktur mit einem in x-Richtung polarisierten Dipol eine Resonanz bei 690 nm , die noch weit in den roten Bereich bis zu 900 nm relevant bleibt. Diese stellt gegenüber einer Anregung senkrecht zur langen Achse des Rechtecks (y-Richtung) eine um zwei Größenordnungen größere Möglichkeit zur Anregung dar. Dieses Ergebnis verdeutlicht

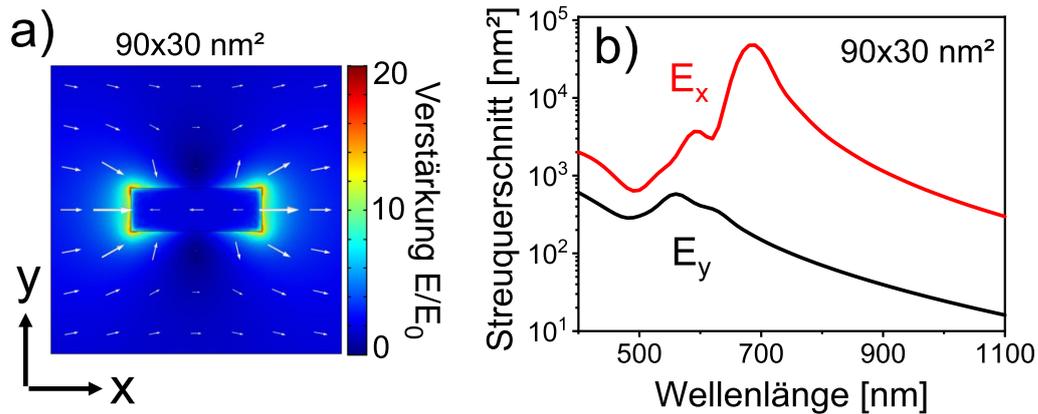


Abbildung 7.13: FDTD-Simulationen für ein 90 nm x 30 nm Rechteck. a) Vektorkarte der Feldverteilung sowie die Verstärkung des elektrischen Feldes E/E_0 an der Oberseite der Goldstruktur für eine Anregung in x-Richtung. b) Wirkungsquerschnitt in Abhängigkeit von der Anregungsrichtung. Bei paralleler Ausrichtung der Struktur und der Anregung kommt es zu einer um zwei Größenordnungen höheren Verstärkung als bei einer orthogonalen Orientierung.

die starke Richtungsabhängigkeit der Struktur in Bezug darauf, welche Komponente eines Dipols verstärkt wird und kann somit die Ergebnisse der Polarisationsmessung erklären.

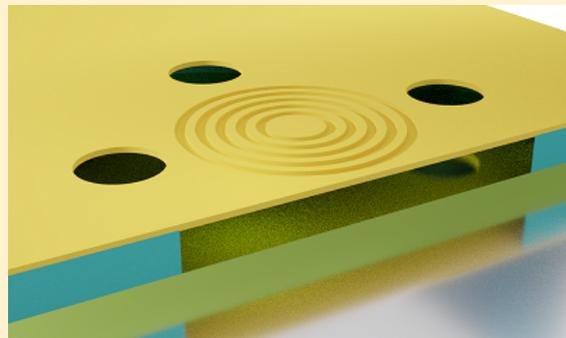
7.2.5 Zusammenfassung

Zum Ende dieses Kapitels lassen sich folgende Punkte festhalten: Eine vorstrukturierte Oberfläche eignet sich hervorragend, um Einzelphotonenquellen in WSe₂-Monolagen zu aktivieren, wobei deren Entstehung durch die Verspannung der ML gezielt induziert werden kann. Sowohl die Intensität als auch die Häufigkeit der auftretenden Quantenemitter wird hierdurch erhöht. Ebenso zeigen sie das für TMDC-Quantenemitter übliche Verhalten eines Zwei-Niveau-Systems und einen $g^{(2)}(0)$ -Wert von $0,17 \pm 0,15$. Die benötigten Dimensionen der Nanostrukturen liegen im Bereich von 100 nm und können über die Wahl der richtigen Geometrie an die Anforderungen angepasst werden. Außerdem eröffnet die Verwendung von Metall die Möglichkeit, mittels der Plasmonik noch weiteren Einfluss auf die optischen Eigenschaften der Emitter zu nehmen. So kommt es bei der Wahl der richtigen Parameter zu einer theoretischen Verstärkung des elektrischen Feldes um einen Faktor von bis zu 20 an den Kanten der Nanostrukturen. Für ein Rechteck der Kantenlänge 140 nm ergibt sich eine Verstärkung im Bereich von

700 nm bis 800 nm, die vorrangig Auswirkungen auf die lokalisierten Emitter in WSe_2 hat. Zudem konnte gezeigt werden, dass auch die konkrete Ausrichtung der Strukturen eine wichtige Rolle für die resultierende Polarisierung der Einzelphotonenquellen spielt. Koppelt ein Emitter an eine rechteckige Nanostruktur, so folgt dessen Polarisierung der Richtung der langen Rechtecksachse. Dies wird durch FDTD-Simulationen belegt, die eine stark anisotrope Verstärkung des elektrischen Feldes aufweisen, die je nach Ausrichtung des Dipols unterschiedlich hoch ausfällt.

8 Kopplung einer WSe_2 -Monolage an frei hängende, zirkulare Bragg-Gitter

Kurzfassung. Zirkulare Bragg-Gitter bieten eine vielversprechende Plattform für photonische Anwendungen und Schnittstellen, die zur Kontrolle der Licht-Materie-Kopplung in zweidimensionalen Materialien dienen können. In diesem Kapitel geht es vorrangig um das grundlegende Studium frei hängender InGaP-Membranen, in die zirkulare Bragg-Gitter geätzt wurden. Zunächst stehen



das Konzept und die Prozessierung der Membranen im Vordergrund. Die nötigen Parameter werden mit Hilfe von Quantenpunkten ermittelt, die in die Membran eingebracht wurden. Anschließend wird eine WSe_2 -Monolage auf ein Bragg-Gitter ohne Quantenpunkte transferiert und die resultierende Kopplung erörtert. Hierfür wird auf hyperspektrale Messtechniken zurückgegriffen, die die Charakteristiken des zweidimensionalen Systems beleuchten und eine klare Abhängigkeit der Emission der Monolage von deren Position auf dem Gitter aufzeigen. So kann eine Zunahme der Intensität im Zentrum der Kavität innerhalb derer Moden festgestellt werden. Dies stellt einen wichtigen Schritt zum kombinierten Einsatz von 2D-Materialien und optischen Kavitäten dar.

Dieses Kapitel basiert in Teilen auf der Veröffentlichung *Hyperspectral study of the coupling between trions in WSe_2 monolayers to a circular Bragg grating cavity*, 2021, Comptes Rendus Physique [If21b].

8.1 Einleitung

In den letzten Jahren wurden bereits eine Vielzahl an Strukturen hergestellt, in denen Licht-Materie-Wechselwirkung mit Übergangsmetall-Dichalkogeniden erforscht wurden. Darunter fallen Systeme, in denen zum Beispiel die schwache [Ker15, But15, Noo16] oder starke Kopplung von Exzitonen und Photonen [Liu14, Lun16a, Wan16, Sch18] ausgenutzt wird. Nach dem Transfer der Monolagen stellt sich die weitere Prozessierung mittels nicht-metallischer Schichten oftmals als schwierig heraus [Sch18]. Lösungsansätze können unter anderem offene Kavitäten [Sch14], photonische Kristalle [Wu14] oder Gittergeometrien, die große elektrische Felder an der Oberfläche ausnutzen [Zha18] sein. Letztere bieten in der eindimensionalen Anordnung die Option auf starke Kopplung, können jedoch auch als radialsymmetrische Konfiguration ausgenutzt werden, um eine optische Mode in sehr kleinen Volumen zu ermöglichen. Ein solches zirkulares Bragg-Gitter wurde bereits in Verbindung mit III-V-Halbleitern zum Designen von effizienten Einzelphotonenquellen [Ate12] sowie Paarquellen [Liu19b] erfolgreich eingesetzt. Es wird nun auch versucht, diesen Ansatz auf TMDCs mit ihren verschiedenen exzitonischen Resonanzen anzuwenden [Duo18, Luo18].

In diesem Kapitel wird diese Idee und deren Ausführung genauer erläutert. Zunächst folgt eine Charakterisierung der hergestellten, frei hängenden CBGs mit Hilfe von Quantenpunkten, die in der CBG-Membran eingebettet sind. Die interessante Möglichkeit, ganze CBG-Strukturen ähnlich einer Monolage auf ein gänzlich neues Substrat zu transferieren, wird ebenso erkundet. Danach kommen Membranen zum Einsatz, die zur Kopplung an WSe₂-Monolagen statt an Quantenpunkten ausgelegt sind. Diese Kopplung zwischen den exzitonischen Komplexen des TMDCs und der optischen Kavität wird anhand von Photolumineszenzkarten demonstriert und somit ein erster Schritt für weitere Anwendungsmöglichkeiten aufgezeigt.

8.2 Probenstruktur

In diesem Abschnitt werden zwei Proben verwendet, die sich in ihrem Aufbau stark ähneln (siehe Kap. 4.1). Die beiden Proben A und B besitzen eine 120 nm respektive 190 nm dicke InGaP-Schicht, in der bei letzterer mittig InP-Quantenpunkte (QDs) gewachsen wurden. Die Idee dahinter besteht darin, dass sich Probe B bereits direkt nach dem Prozess für μ PL-Messungen eignet, da das Quantenpunktensemble die Kavität ausleuchten kann. In Abb. 8.1a) ist der Herstellungsprozess

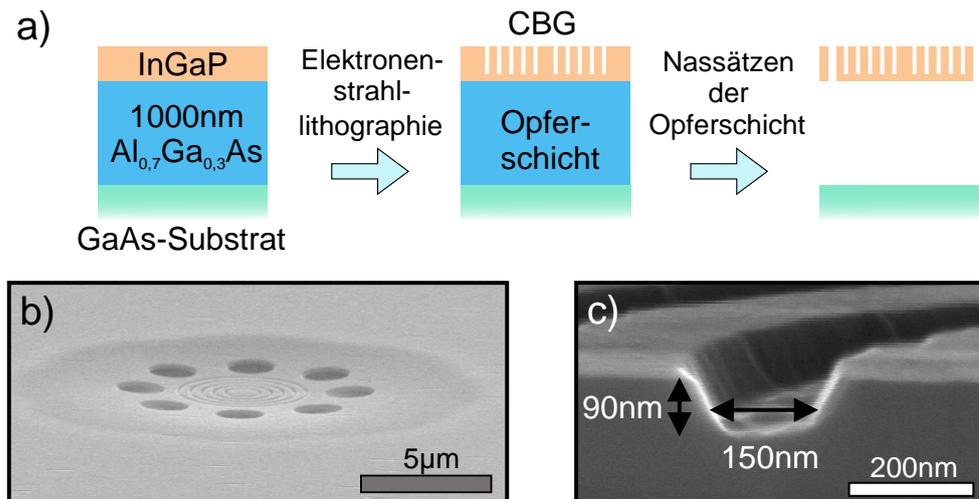


Abbildung 8.1: a) Schematische Probenstruktur: Eine InGaP-Membran befindet sich auf einer AlGaAs-Opferschicht und dem GaAs-Substrat. Durch Wegätzen der Opferschicht bleibt eine frei hängende Membran übrig. Zwei Varianten mit 120 nm (A) und 190 nm (B) Dicke wurden verwendet, wobei B noch eine mittige Quantenpunktschicht besitzt. b) SEM-Bild der gesamten Struktur. Ein deutliches Durchhängen sowie die Löcher für das Unterätzen sind gut erkennbar. c) SEM-Bild einer Spaltkante, die ein CBG mittig teilt und das Seitenprofil freilegt. Die Ätztiefe beträgt 90 nm und die Ringbreite 150 nm.

kurz skizziert. Die InGaP-Schichten werden auf einem GaAs-Substrat und einer 1 µm Opferschicht aus AlGaAs gewachsen, das durch Elektronenstrahl-Lithographie mit dem zirkulären Bragg-Gitter strukturiert und anschließend unterätzt wird. Eine detaillierte Beschreibung des gesamten Prozesses ist in Kapitel 4.1 aufgeführt. In Abb. 8.1b) und c) zeigen SEM-Bilder die fertig prozessierte Struktur. Die das CBG umgebenden Löcher, die für das Ätzen der Opferschicht benötigt werden, erlauben auch spektroskopischen Zugriff auf das GaAs-Substrat. Zudem wird in b) deutlich sichtbar, wie die Membran ungestützt zwar leicht durchhängt, aber dennoch stabil ist. Bei näherer Betrachtung der Ätzkanten an einer Spaltkante (c) erkennt man die leicht schrägen, nicht optimal geätzten Gräben mit einer Tiefe von rund 90 nm und einer Breite von mindestens 150 nm. Das ursprüngliche Design war für eine Periode $\Lambda = 460$ nm, Ringbreite $w = 110$ nm und einer Ätztiefe t von 130 nm ausgelegt. Um prozessbedingte Unsicherheiten ausgleichen zu können, wurden weitere Strukturen mit einem Skalierungsfaktor $S = [0,8 - 1,2]$ in Schritten von 0,1 gefertigt. Der Faktor wird auf alle Breiten (Durchmesser, Periode) angewandt. Eine Abweichung der Ätztiefe

führt lediglich zu einer reduzierten Asymmetrie in der Auskopplung nach oben. Die Ungenauigkeit in der Ringbreite hingegen hat direkten Einfluss auf die Modenposition und -form, wie sich im Folgenden herausstellt.

8.3 Optische Charakterisierung mittels Quantenpunkten und Transfer

Zur Charakterisierung des Prozesses sind in Abb. 8.2a) die Photolumineszenzmessungen auf der Probe B für verschiedene Skalierungsfaktoren abgebildet. Je nach Dimensionen der CBGs bilden sich die optischen Moden an verschiedenen Positionen im Bereich um 700 nm unterschiedlich stark aus. Ein Vergleich mit den FDTD-Simulation

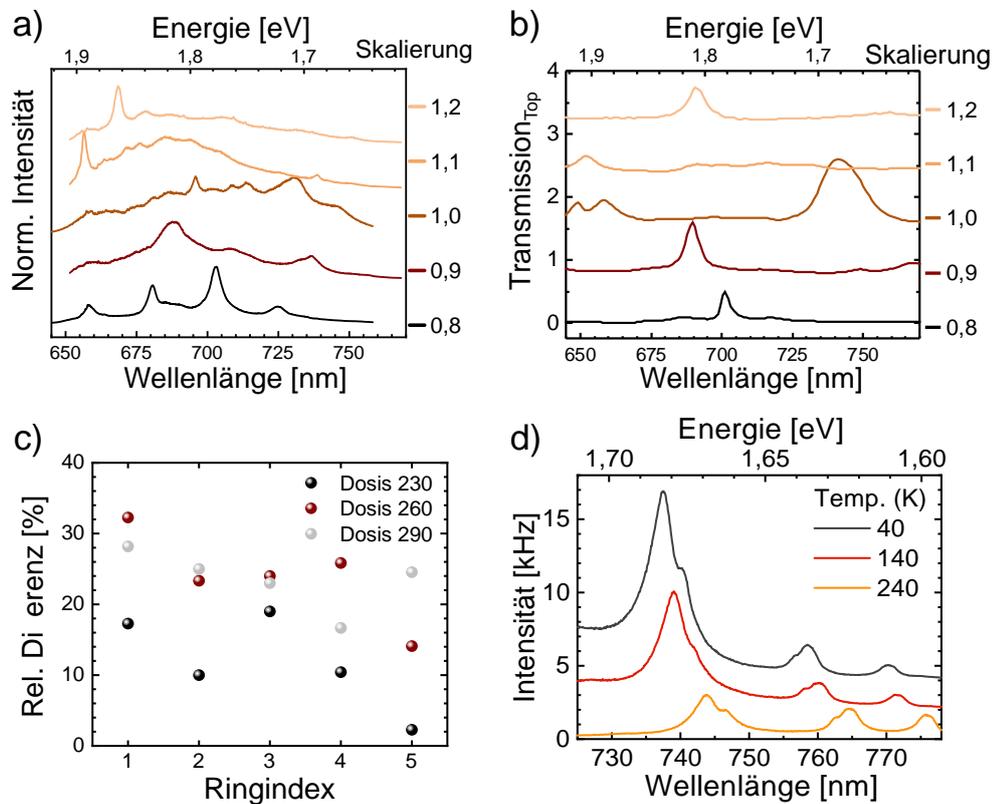


Abbildung 8.2: a) Spektren der CBGs zeigen die Ausbildung von Moden für unterschiedliche Skalierungsfaktoren S . b) FDTD-Simulation der Moden, die prozessbedingte Ungenauigkeiten berücksichtigt. c) Relative Abweichungen der Ringbreiten für unterschiedliche Belichtungsstärken. Je stärker die Belichtung ausfällt, umso größer ist die Abweichung durch Überbelichtungseffekte. d) Die Temperaturabhängigkeit der Modenpositionen offenbart eine Verschiebung von etwa 10 nm.

in Abb. 8.2b), in denen prozessbedingte Ungenauigkeiten wie die schrägen Ätzkanten berücksichtigt sind, zeigt eine hinreichende Übereinstimmung mit den experimentellen Daten. Neben dem Skalierungsfaktor wurde auch die Belichtungsstärken in drei Schritten variiert. Das Ergebnis in Abb. 8.2c) stellt die prozentuale Abweichung von bis zu 30% der geätzten Ringbreiten vom gewünschten Sollwert dar. Mit höherer Belichtungsstärke nimmt auch der Fehler wie erwartet zu. Unabhängig davon lässt sich das Verhalten der Moden bei verschiedenen Temperaturen weiter untersuchen (Abb. 8.2d). So weisen die Moden mit steigender Temperatur eine Rotverschiebung auf, die sich durch die Änderung des Brechungsindex der Membran ergibt. Die Änderung der CBG-Geometrie ist vernachlässigbar klein, sodass mit steigenden Brechungsindex die Modenwellenlänge nach Gleichung 2.20 auch zunehmen muss. Absolut beträgt der Unterschied zwischen 40 K und 240 K etwa 10 nm. Zudem wird auch ersichtlich, dass die Intensität des QD-Ensembles bei steigender Temperatur um eine ganze Größenordnung abnimmt.

Der weitere Verwendungszweck der CBGs besteht in der Kombination mit TMDCs. Im Zuge dessen ist eine hinreichende Stabilität der gesamten Struktur erforderlich, damit sie den Belastungen des Transferprozesses (Kap. 3.1) standhält. Wie sich herausstellt, bleibt die Membran nicht nur intakt, sondern eignet sich sogar selbst zum Transfer. So kann, wie in Abb. 8.3a) gezeigt, mit demselben Transferverfahren ein komplettes CBG auf ein beliebiges Substrat aufgebracht werden. Hierbei wird der PDMS-Stempel auf die Struktur aufgedrückt und schnell abgezogen. Dabei reißt die Membran genau dort, wo der Übergang der unterätzten zur übrig gebliebenen Opferschicht liegt. Die Membran kann anschließend auf ein neues Substrat transferiert werden. Um zu zeigen, dass dabei die optischen Eigenschaften des CBGs erhalten bleiben, ist ein Vorher-Nachher-Vergleich in Abb. 8.3b) abgebildet. Im Wesentlichen gibt es keine signifikanten Unterschiede. Den Größten stellt hierbei die Verteilung und der Spektralbereich der Emission dar. Durch den Transfer und das Herauslösen der Membran sowie durch das flache Aufliegen auf der Substratoberfläche (statt frei zu hängen) kommt es zu Änderungen in der Verspannung der gesamten Membran. Da Quantenpunkte sensitiv auf solche Änderungen reagieren, ist eine Verschiebung der Emission des Ensembles nicht verwunderlich. Die eigentlichen Moden der Kavität hingegen zeigen nur minimale Verschiebungen und Änderungen. Dies spricht für eine Transfervariante, die die ursprünglichen Dimensionen des CBGs weitestgehend erhält.

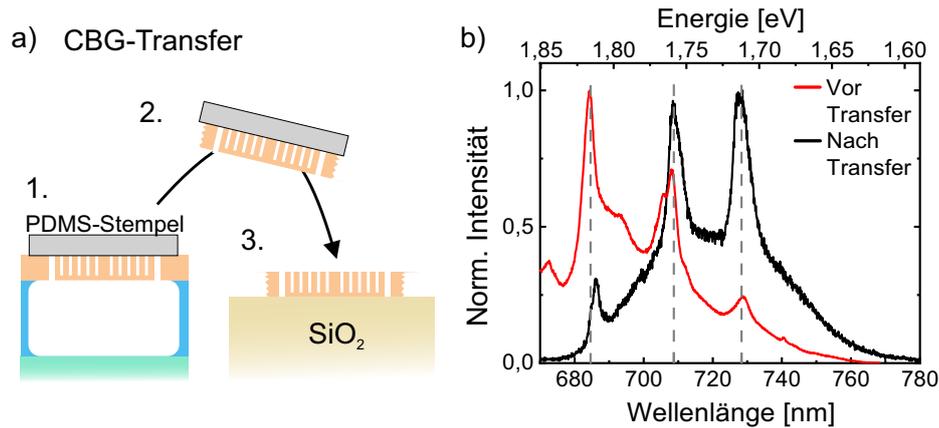


Abbildung 8.3: a) Schematische Darstellung des CBG-Transfers. Analog zum trockenen Transfer einer Monolage wird die Membran durch Kontakt mit einem PDMS-Stempel herausgelöst. Anschließend kann sie auf ein beliebiges Substrat platziert werden. b) Vorher-Nachher-Vergleich einer transferierten Membran. Die Moden des CBGs bleiben weitestgehend erhalten, was für eine nahezu unveränderte Gittergeometrie spricht. Die Verschiebung des QD-Ensembles lässt sich durch Änderungen in der Verspannung der Membran erklären, die zu anderen Emissionswellenlängen führt.

Diese Methode lässt sich somit für zukünftige Bauteile ausnutzen, in denen zum Beispiel ein direktes Wachsen und Ätzen der zirkularen Bragg-Gitter nicht möglich ist.

8.4 Kopplung einer WSe_2 -Monolage an ein zirkulares Bragg-Gitter

In diesem Teil wird nun die Probe A verwendet, die eine Membrandicke von 120 nm und keine Quantenpunkte besitzt. Das QD-Ensemble wäre für die weiteren Messungen in Kombination mit TMDC-Monolagen nur hinderlich, da es deren Emission überdecken würde. Aufgrund der geänderten Dicke sind neue Simulationen nötig, da sie einen wesentlichen Einfluss auf die Modenpositionen hat. In Abb. 8.4a) und b) zeigen die unterschiedlichen CBG-Ansichten des Betrags des Dipolfeldes die klare Konzentration auf das Zentrum. Im Anhang A.6 sind weitere Simulationen der einzelnen Komponenten des E-Feldes aufgeführt. Alle hier gezeigten Simulationen stammen von unserem Kooperationspartner¹. Der Dipol ist 10 nm über der Membran platziert und strahlt

¹Dr. Marcelo Davanço, National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, USA

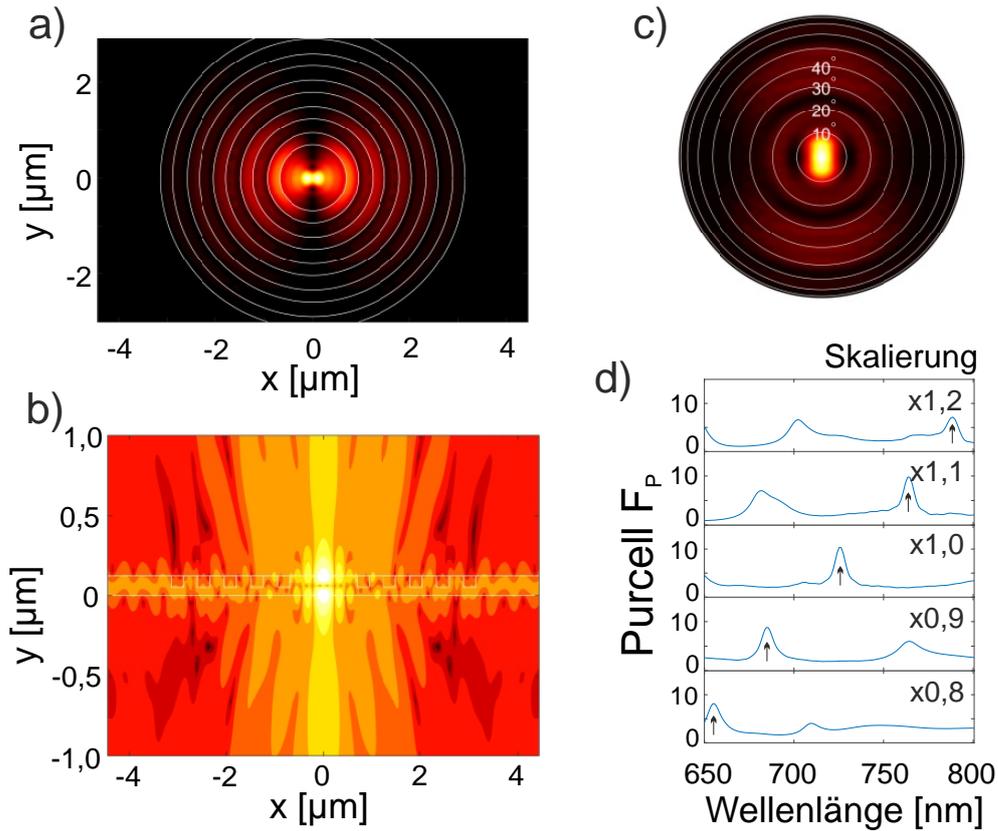


Abbildung 8.4: FDTD-Simulationen zur Probe A: a) Draufsicht des elektrischen Feldes eines CBGs bei 726 nm, das von einem im Zentrum in 10 nm Abstand platzierten Dipol ausgeht. Das Feld ist hauptsächlich in der innersten Scheibe konzentriert. b) Seitenansicht des Feldes in a). Es zeigt sich eine starke Feldstärke senkrecht zur Ebene. c) Das Fernfeld des CBGs wird primär innerhalb eines 10°-Winkels ausgestrahlt. d) Durchstimmbarkeit der Moden in Abhängigkeit vom Skalierungsfaktor. Es wird ein Purcell-Faktor von bis zu 10 simuliert.

hauptsächlich senkrecht zur Membranebene ab, wodurch eine effiziente Auskopplung ermöglicht wird. Dies wird auch durch das Fernfeld in Abb. 8.4c) bestätigt, das nahezu komplett in einem Winkel $<10^\circ$ liegt. Weiterhin lassen sich die gefundenen Moden in Abb. 8.4d) durch die Wahl der Parameter in einem Wellenlängenbereich von 650 nm bis 800 nm durchstimmen. So besitzt die mit dem Pfeil markierte Mode abhängig vom gewählten Skalierungsfaktor einen Purcell-Faktor von bis zu 10 sowie eine Linienbreite von knapp über 10 nm. Eine solche relativ breite Mode eignet sich gut, um einen weiten Bereich für eine mögliche Kopplung mit einer WSe₂-Monolage abzudecken.

Zur Charakterisierung der prozessierten Probe wurden zunächst Reflexionsmessungen in Abb. 8.5a) durchgeführt. Dargestellt ist die Reflexion $\Delta R = R_{CBG} - R_{Ref}$, die sich

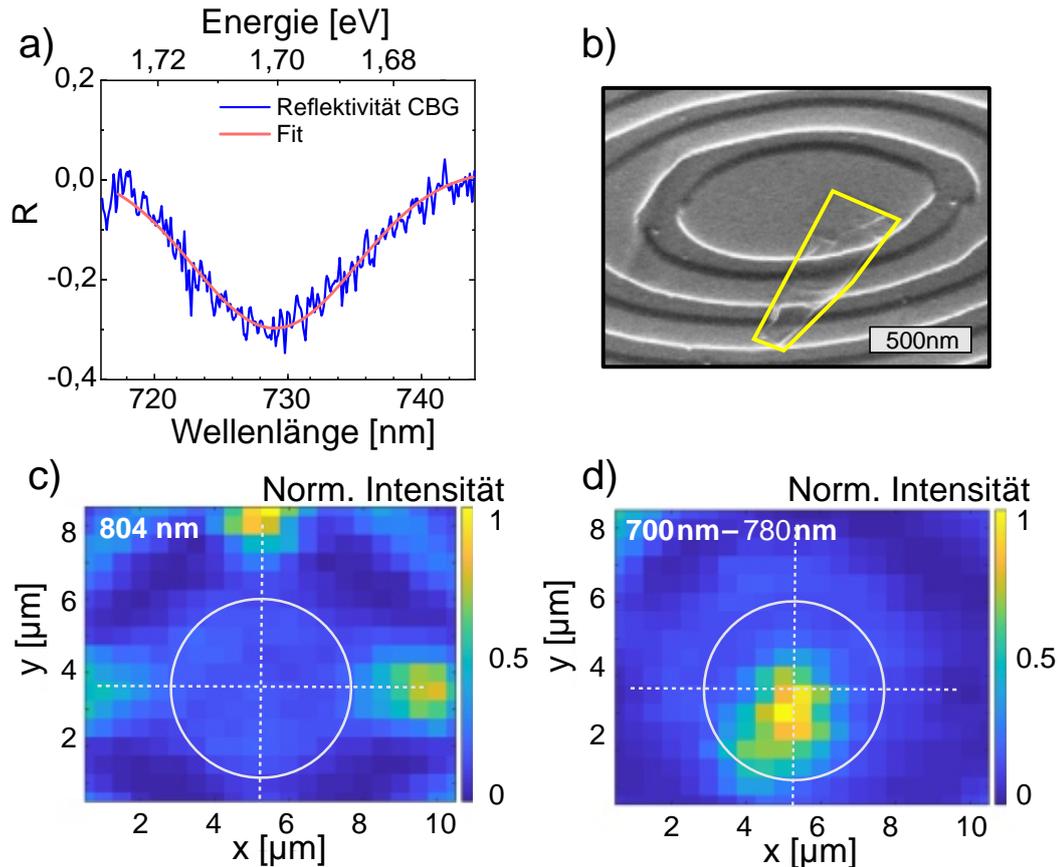


Abbildung 8.5: a) Reflexionsspektrum eines CBGs offenbart eine Mode bei 730 nm. Die Reflektivität ΔR bestimmt sich aus $\Delta R = R_{CBG} - R_{Ref}$, wobei R_{CBG}/R_{Ref} der jeweils normierten Reflexion auf dem CBG bzw. einem Silberspiegel entspricht. Die rote Linie stellt einen Lorentz-Fit dar. b) SEM-Bild eines CBGs mit einer transferierten WSe₂-Monolage (gelb). Das Bild ist um 180° rotiert, um mit den PL-Karten in c) und d) übereinzustimmen. c) Die PL-Karte (Pixelgröße: 0,5 μm x 0,5 μm) des DBGs in b) zeigt für 804 nm (GaAs-Substrat) deutlich die Position der Ätzlöcher, die das DBG umgeben. Dies dient zur Positionsbestimmung (weißes Fadenkreuz). d) PL-Karte der integrierten Intensität für 700 nm bis 780 nm, die der Emission der WSe₂-Monolage entspricht.

aus der Differenz der CBG-Reflexion R_{CBG} und der Referenz R_{Ref} eines Silberspiegels ergibt. Ein deutlicher Einbruch des Signals um 730 nm offenbart eine optische Resonanz mit einer Linienbreite von 18 nm. Somit ergibt sich der Q-Faktor zu etwa 38, was im unteren Bereich der typischen Werte für CBGs liegt. Ursächlich hierfür sind die prozessbedingten Ungenauigkeiten, wie man sie auch auf dem SEM-Bild in Abb. 8.5b) erkennen kann. Darauf dargestellt ist auch eine transferierte WSe₂-Monolage (gelb

markiert), die Teile des CBGs bedeckt. Grundsätzlich gestaltet sich der Transfer auf eine frei hängende Membran schwierig, da sie leicht durchhängt und somit der Transferkontakt weniger stark ausfällt. Dies zeigt sich auch direkt während des Transfers, bei dem bevorzugt Teile des WSe₂-Materials leichter am Rande als im Zentrum der unterätzten Fläche liegen bleiben. Um nun den Einfluss des CBGs auf Emissionseigenschaften der Monolage näher zu untersuchen, sind in Abb. 8.5c) und d) orts aufgelöste Photolumineszenz-Karten der Kavität dargestellt. In c) kann man anhand der umgebenden Ätzlöcher die GaAs-Emission des Substrats bei 804 nm einfach detektieren. Das CBG liegt genau im Zentrum dieser Löcher, wodurch sich dessen Position nach einem Abgleich im optischen Mikroskop bestimmen lässt (weißes Fadenkreuz). Diese Identifikation ist wichtig, denn die Kavität selbst besitzt kein PL-Abbild. Die örtliche Auflösung dieser Karten liegt unterhalb der Größe des CBG-Zentrums (< 1600 nm) und erlaubt somit eine hinreichende Lokalisierung. Die integrierte PL-Intensität von 700 nm bis 780 nm in d) offenbart anhand der Emission der WSe₂-Monolage, wie sie über dem CBG liegt. Darin lässt sich bereits eine leichte Intensitätsverschiebung zum Zentrum des CBGs hin erkennen, was eine selektive Kopplung der ML an die Kavität nahelegt.

Diese Möglichkeit der schwachen Kopplung zwischen der WSe₂-Monolage und der optischen Kavität wird nun näher untersucht. Hierfür sind ausgewählte Spektren in Abb. 8.6a) dargestellt, die von den in c) markierten Positionen stammen. Der Vergleich dieser Spektren zeigt eine klare Steigerung der Intensität um 730 nm für die typischen WSe₂-Emissionen des Trions (X-) sowie P0 und P1 (vgl. Kap. 5.1) im Zentrum des CBGs. Offensichtlich fällt dies in den Bereich des Reflexionseinbruchs aus Abb. 8.5a) (rot), der der optischen Mode zugeordnet wurde. Ein Spektrum außerhalb des CBGs ohne Monolage dient als Referenz. Zur quantitativen Gegenüberstellung der ortsabhängigen Emission werden die Resonanzen als mehrere kombinierte Gauß-Anpassungen (siehe Anhang A.7) betrachtet. Das Verhältnis der integrierten Intensität einer Emission im Zentrum $A_{Zentrum}$ und am Rande des CBGs A_{Kante} ist in Abb. 8.6b) dargestellt. Während P2 keinerlei Änderungen aufweist, demonstrieren die anderen Resonanzen eine klare Verstärkung der Emission. Legt man darüber die Kavitätsmode, stellt sich eine sehr gute Korrelation zwischen ihr und dem Grad der Verstärkung heraus. Dieser Sachverhalt lässt sich dank der PL-Karten in Abb. 8.6c) und d) noch weiter verdeutlichen. In der ersten ist die gesamte Emission im Bereich der Kavität von 720 nm bis 740 nm dargestellt. Verglichen mit dem Bereich von 750 nm bis 780 nm ist die Emission vorwiegend im Zentrum des CBGs lokalisiert. Für letztgenannten Bereich

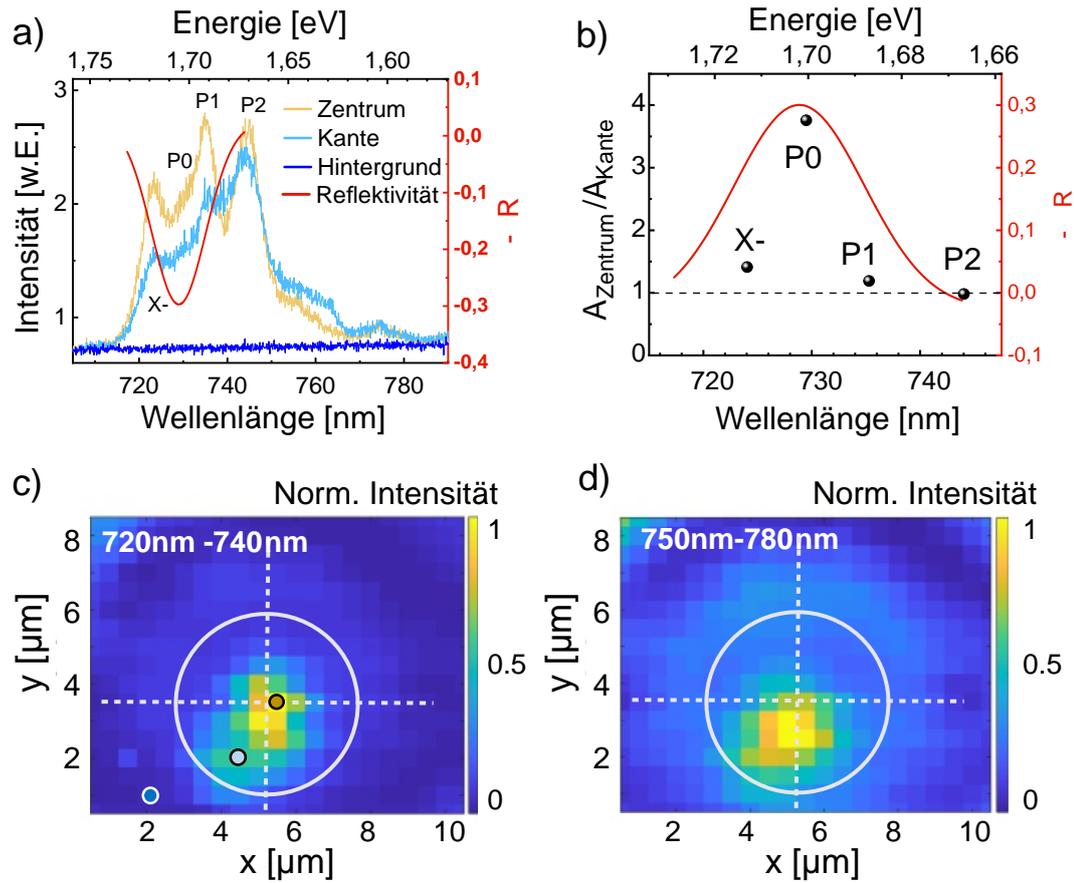


Abbildung 8.6: a) Ausgewählte Spektren an verschiedenen Punkten des CBGs, wie in c) eingezeichnet. Die dominanten Emissionen X- (Trion), P0, P1 und P2 entsprechen typischen WSe₂-Signalen. Die Anpassung der Reflexion ist rot eingezeichnet. b) Verhältnis $A_{\text{Zentrum}}/A_{\text{Kante}}$ der integrierten Fläche zwischen der Rand- und Zentrumsposition ergibt eine starke Korrelation mit der Modenposition. Für P0 zeigt sich eine Erhöhung der Intensität von bis zu 3,8. Die Reflexion ist zur besseren Veranschaulichung negativ dargestellt ($-\Delta R$). c) Integrierte PL-Karte von 720-740 nm, die der Kavitätsmode entspricht. Die Emission liegt vorwiegend im Zentrum des CBGs. d) Integrierte PL-Karte von 750-780 nm, die hauptsächlich der Monolage folgt, unabhängig vom CBG.

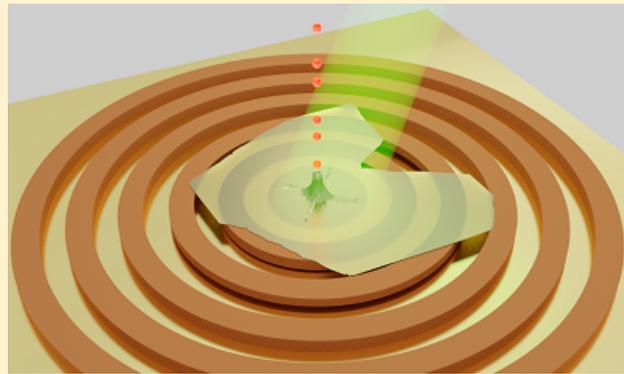
hingegen zeigt sich eine Intensitätsverteilung, die im Wesentlichen der ML folgt. Die logische Schlussfolgerung lautet somit, dass die Monolage an die Kavität koppelt und die Intensität in Folge des Purcell-Effekts zunimmt.

8.5 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurden erste Erfahrungen mit frei hängenden, zirkularen Bragg-Gittern und deren Anwendung aufgezeigt. Das grundlegende Verhalten sowie die benötigten Prozesse wurden zunächst anhand von Proben mit Quantenpunkten untersucht, die als optisch aktive Schicht in die CBG-Membran gewachsen wurden. Es zeigt sich, dass bereits kleine Abweichungen um wenige Nanometer von den gewünschten Parametern zu einer spektralen Verschiebung der resultierenden Moden um ebenfalls mehrere Nanometer führen. Ebenso hat die Temperatur Einfluss auf die Modenposition, die von 40 K auf 240 K um mehr als 10 nm zunehmen kann. Weiterhin wurde die ausreichende Stabilität der dünnen Membranen demonstriert, indem sich ganze CBG-Membranen analog zu 2D-Materialien transferieren lassen, ohne an optische Qualität einzubüßen. Anschließend wurde die Licht-Materie-Wechselwirkung dieser Kavitäten mit einer WSe₂-Monolage näher untersucht. Hierzu erfolgte der Entwurf einer passenden CBG-Struktur, deren optische Mode sich im Bereich der freien Emission der Monolage von 730 nm befindet. Es zeigt sich eine klare positionsabhängige Verstärkung der Resonanzen innerhalb des Modenbereichs der Kavität, wohingegen diese im restlichen spektralen Fenster ausbleibt. Eine Verstärkung bis um den Faktor 3 konnte erzielt werden. Diese Erkenntnisse liefern eine gute Basis für das folgende Kapitel, in dem CBGs an Einzelphotonenquellen gekoppelt werden.

9 Kopplung von Einzelphotonenquellen in einer WSe₂-Monolage an zirkulare Bragg-Gitter

Kurzfassung. Die Eigenschaften von Einzelphotonenquellen gezielt gestalten zu können, bedeutet einen wichtigen Schritt hin zu konkreten Anwendungen. Die Existenz solcher Quantenemitter in WSe₂-Monolagen eröffnet deren Kopplung an zirkulare Bragg-Gitter, die direkt auf einem Substrat liegen. Zunächst werden anhand von Simulationen die Parameter



und experimentell deren Einfluss auf die Kopplung einer WSe₂-Monolage an die Gitter ermittelt. Basierend auf diesen Ergebnissen wird eine solche Monolage auf eine entsprechende Kavität mit einem Nanotürmchen im Zentrum transferiert. Dort entstehen verspannungsinduzierte Quantenemitter, die an die Kavität koppeln können. Autokorrelationsmessungen beweisen den Einzelphotonencharakter mit $g^{(2)}(0) < 0,25 \pm 0,05$. Zudem zeigen Quantenemitter, die in der Nähe des Zentrums liegen, eine signifikante Verkürzung ihrer Lebenszeiten um mehr als den Faktor 5. Zusammen genommen führt dies zur einer neuen Klasse von deterministischen Einzelphotonenquellen, deren Eigenschaften dank der breitbandigen zirkularen Bragg-Gitter modifiziert werden können.

Dieses Kapitel basiert auf der Veröffentlichung *Purcell-Enhanced Single Photon Source Based on a Deterministically Placed WSe₂ Monolayer Quantum Dot in a Circular Bragg Grating Cavity*, 2021, Nano Letters, 21, 11 [Iff21a].

9.1 Einleitung

Einzelphotonenquellen müssen in der heutigen Zeit wachsenden Anforderungen für den Einsatz in der Quantenoptik gerecht werden, ohne an Skalierbarkeit einzubüßen. Zur Quantifizierung der Eigenschaften solcher Quantenemitter werden üblicherweise deren Helligkeit, Qualität des Einzelphotonensignals sowie Ununterscheidbarkeit [Sen17] herangezogen. Diesbezüglich bieten zum Beispiel InAs-Quantenpunkte, die entweder in monolithischen [Uns16, Som16, Din16] oder offenen Kavitäten [Tom21] platziert sind, die aktuell ausgereifteste Plattform. Neben den reinen Qualitätsmerkmalen einer solchen Quelle spielt aber auch deren Einfachheit bezüglich Herstellung, Umsetzung und Skalierbarkeit eine wesentliche Rolle bei der Frage, ob sich eine Technologie auch als Anwendung durchsetzen kann. Idealerweise lässt sie sich in bereits bestehende Bauteile und deren Infrastruktur implementieren, ohne die Komplexität weiter zu steigern. Angesichts dieser Anforderungen stellen halbleiterbasierte Quantenpunkte zwar ein interessantes, aber gleichzeitig nur schwierig integrierbares Gebiet dar [He17, Oll20]. In den letzten Jahren haben Einzelphotonenquellen in TMDCs [He15, Ton15, Sri15, Kum15, Kop15, Cha16] gezeigt, dass sie sich als ideale Grundlage zur Modifikation bestehender Systeme eignen. SPEs dieser Art wurden, wie unter anderem in Kapitel 7.2 aufgezeigt, erfolgreich in plasmonische Nanostrukturen gekoppelt [Cai17, Luo18], deren ohmsche Verluste sich aber nur schwer gänzlich unterdrücken lassen. Demgegenüber erweist sich der Ansatz der offenen Kavität als gute Alternative, um schwache Kopplung zu erreichen [Fla18]. Dieser besitzt jedoch wie die eingangs erwähnten InAs-Quantenpunkte das Problem der einfachen Skalierbarkeit. Eine ideale optische Kavität zur Kombination mit TMDC-Monolagen erstreckt sich über einen relativ weiten Spektralbereich, der die Verstärkung der spektral zufällig verteilten Quantenemitter mittels des Purcell-Effekts ermöglicht. Folglich muss die Kavität zur Erfüllung dieser Ansprüche einen geringen Qualitätsfaktor, aber auch ein kleines Modenvolumen vorweisen können. Ersteres führt zu einer breitbandigen Kavität, während Letzteres einen starken Purcell-Effekt bedingt. Beides gewährleisten zum Beispiel photonische Kristalle [Liu18] oder die im Kapitel 8 beschriebenen, zirkularen Bragg-Gitter, die aus konzentrischen Ringen in einer dünnen Membran bestehen. Insbesondere CBGs ermöglichen bereits mit kleinen Modifikationen Zugang zum optischen Bereich (600 nm) bis hin zu Telekomwellenlängen (1550 nm). Gleichzeitig bündeln sie das gekoppelte Licht aus der Membranebene, was das Aufsammeln und Weiterleiten des Lichts wesentlich vereinfacht.

Hier wird ein solches zirkulares Bragg-Gitter benutzt, um an SPEs in einer WSe₂-Monolage zu koppeln. Die dafür benötigten Parameter werden zunächst durch Simulation ermittelt und anschließend experimentell verifiziert. Um die Entstehung der Emitter aktiv zu unterstützen, wird ein Nanotürmchen in der Mitte des CBGs platziert, das dort die darauf transferierte Monolage deterministisch verformt. Dies unterstützt die verspannungsbedingte Aktivierung [Bra16a, PB17] von SPEs im Zentrum der Bragg-Gitter, um durch die resultierende schwache Kopplung eine Verkürzung der Emitterlebenszeiten zu erreichen.

9.2 Design und Simulation der zirkularen Bragg-Gitter

Zirkulare Bragg-Gitter eignen sich sehr gut, um die Emission eines Emitters senkrecht zu einer Ebene umzulenken. Die Details ihrer Funktionsweise wurden in Kapitel 2.3 genauer erörtert. Um die gewünschten Parameter zu finden, die zu einer Kopplung zwischen den Emittlern und der Kavität führen, wurden FDTD-Simulationen benutzt. Die entsprechende Struktur ist in Abb. 9.1a) dargestellt: Eine 230 nm dünne Al_{0,31}Ga_{0,69}AS-Membran wird mit dem in Kapitel 4.2 vorgestellten Prozess auf eine 430 nm dicke Schicht SiO₂ aufgebracht. Darunter wiederum befindet sich ein Goldspiegel, der das Licht wieder nach oben reflektiert. Die Dicke des SiO₂ ist darauf optimiert, diese Auskopplung zu maximieren. Das eigentliche zirkulare Bragg-Gitter besteht aus einer, im Durchmesser 1600 nm breiten, inneren Scheibe ($R = 800$), die nach außen konzentrisch von 100 nm weiten Ringen mit einer Periode von 350 nm umgeben ist. In Abb. 9.1b) zeigt die Seitenansicht eines zentral im CBG platzierten Dipols in 10 nm Abstand zur Oberfläche die Verteilung seines elektrischen Feldes. Da die Ringe komplett durchgeätzt sind und die SiO₂-Schicht einen höheren Brechungsindex als Luft besitzt, ist das E-Feld in Richtung SiO₂ verschoben. Dies wird jedoch durch den Goldspiegel wieder ausgeglichen.

Die Simulation des E-Feldes in Abb. 9.1c) senkrecht zur Oberfläche offenbart das für CBGs typische, stark konzentrierte Fernfeld, das sich optimal zur weiteren Kopplung an Optiken mit geringer numerischer Apertur eignet. Die Parameter wurden so gewählt, dass sich Moden im Bereich von 740 nm - 770 nm ausbilden, die sich zum Beispiel noch über den inneren Durchmesser in Abb. 9.1d) anpassen lassen. Bei größeren Durchmessern wird zwar die Mode stärker, allerdings stellte sich bei den betrachteten Monolagen der Bereich um 740 nm als zuverlässige Quelle für Quantenemitter heraus. Der Purcell-Faktor beträgt zum Beispiel bei 750 nm immer

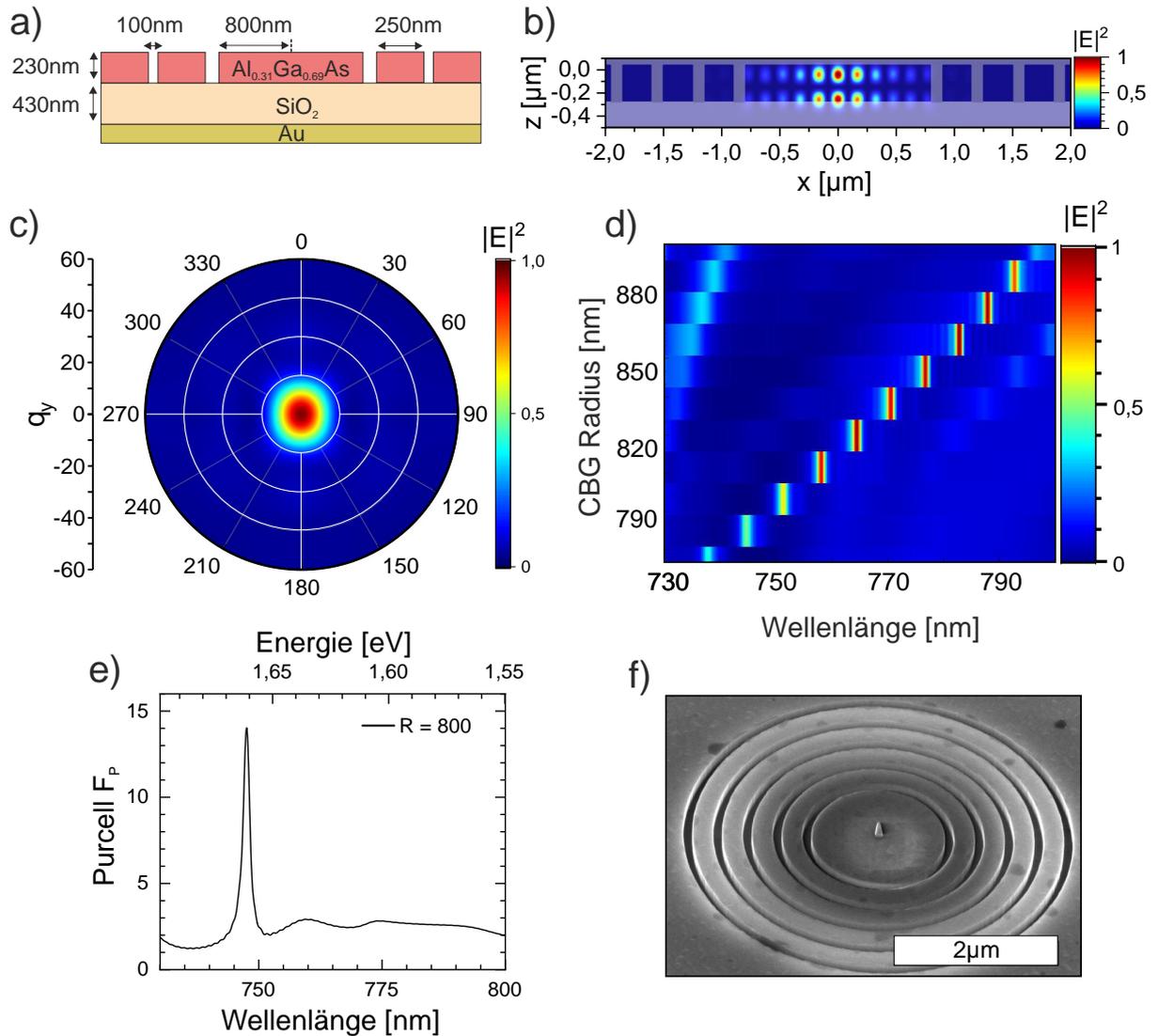


Abbildung 9.1: a) Aufbau eines CBGs. Die Goldschicht dient als Spiegel, um das Licht in Richtung Membran zu reflektieren. b) FDTD-Simulation der Seitenansicht des E-Feldes eines Dipols im Zentrum des CBGs. c) FDTD-Simulation des Fernfeldes eines CBGs. Die Emission wird in einem kleinen Winkel ($<15^\circ$) senkrecht zur Membranebene gelenkt. d) FDTD-Simulation der Intensität des E-Feldes, wenn der innerste Radius R von 780 nm bis 900 nm variiert wird. Die ausgebildete Mode zeigt eine deutliche Rotverschiebung mit steigendem Radius. e) Purcell-Faktor F_P für $R = 800$ nm. f) SEM-Bild der prozessierten Struktur mit einem Nanotürmchen im Zentrum, das etwa 200 nm hoch ist.

noch 14 (Abb. 9.1e), weshalb als Kompromiss der entsprechende Durchmesser von 1600 nm gewählt wurde. Dies ergibt mit hoher Wahrscheinlichkeit eine spektrale

Überlappung zwischen den Quantenemittern und der resultierenden Kavität in diesem Bereich. Nach der Prozessierung des CBGs wird noch ein SiO₂-Nanotürmchen mittels elektronenstrahlgestützten Wachstums (siehe Kap. 4.3) in das Zentrum gesetzt, das zur lokalen Verspannung einer transferierten Monolage führt [Bra16b, PB17]. Das Endresultat des Prozesses ist in dem SEM-Bild in Abb. 9.1,f dargestellt. Die Türmchen können dabei beliebig positioniert und unterschiedlich hoch gewachsen werden.

Weiterhin ist es wichtig, den Einfluss der Nanotürmchen (NT) auf die Ausbildung der Moden im CBG zu kennen. Dieser wird in Abb. 9.2 aufgezeigt, in der vier verschiedene Szenarien für die Ausrichtung eines Dipols untersucht werden: 1) Ein Dipol im Zentrum des CBG ohne NT. 2) Ein Dipol, der am Fuße eines 50 nm hohen NTs 5 nm über der Membran sitzt. Der Dipol ist 25 nm vom Zentrum des CBGs entfernt und parallel zu seiner Abstrahlrichtung verschoben. 3) wie in 2), nur ist der Dipol diesmal senkrecht zu seiner Abstrahlrichtung versetzt. 4) Ein Dipol, der auf der Spitze des NTs sitzt und folglich 50 nm über der Membran liegt. Der Vergleich der resultierenden Purcell-Faktoren für alle vier Szenarien in Abb. 9.2b) für eine sonst identische CBG-Struktur zeigt, dass Fall 4 die geringste Verstärkung besitzt. Befindet sich der Dipol auf dem NT, so bricht die Kopplung an die Membran um etwa 90% ein. Dieser Effekt ist ein Resultat der Entfernung des Dipols zur Kavität, wobei der Einfluss des NTs selbst nur minimal ausfällt. Mit zunehmendem Abstand sinkt der Purcell-Faktor weiter. Die Fälle 2 und 3 hingegen deuten auf eine Abhängigkeit des Purcell-Faktors von dessen Ausrichtung hin. Ist dessen Fernfeld senkrecht zu seiner Verschiebung ausgerichtet, reduziert sich der Purcell-Faktor durch die Entfernung zum Zentrum um etwa 20%. Ist es hingegen parallel dazu orientiert, so zeigt sich sogar eine Zunahme der Verstärkung. Dies lässt sich anhand der Simulation des elektrischen Feldes für dieses Szenario in Abb. 9.2c) erklären. Zwar stellt das NT einen nicht-resonanten Streuer für das E-Feld dar, dennoch ergeben sich im Bereich weniger Nanometer um den Fuße des NTs winzige Brennpunkte mit hohen elektrischen Feldern. Liegt ein Dipol mit der passenden Orientierung an diesen Stellen, ist eine Zunahme des Purcell-Faktors möglich. Das NT hat hingegen kaum Auswirkungen auf das Fernfeld oder die konkrete Ausbildung des E-Feldes (siehe Anhang A.8). Ebenso ist der erläuterte Einfluss des Nanotürmchens im relevanten Spektralbereich weitestgehend unabhängig von den genauen CBG-Parametern. Die wichtigste Erkenntnis lautet, dass der Abstand des Dipols zur Membranoberfläche möglichst klein ausfallen sollte, um

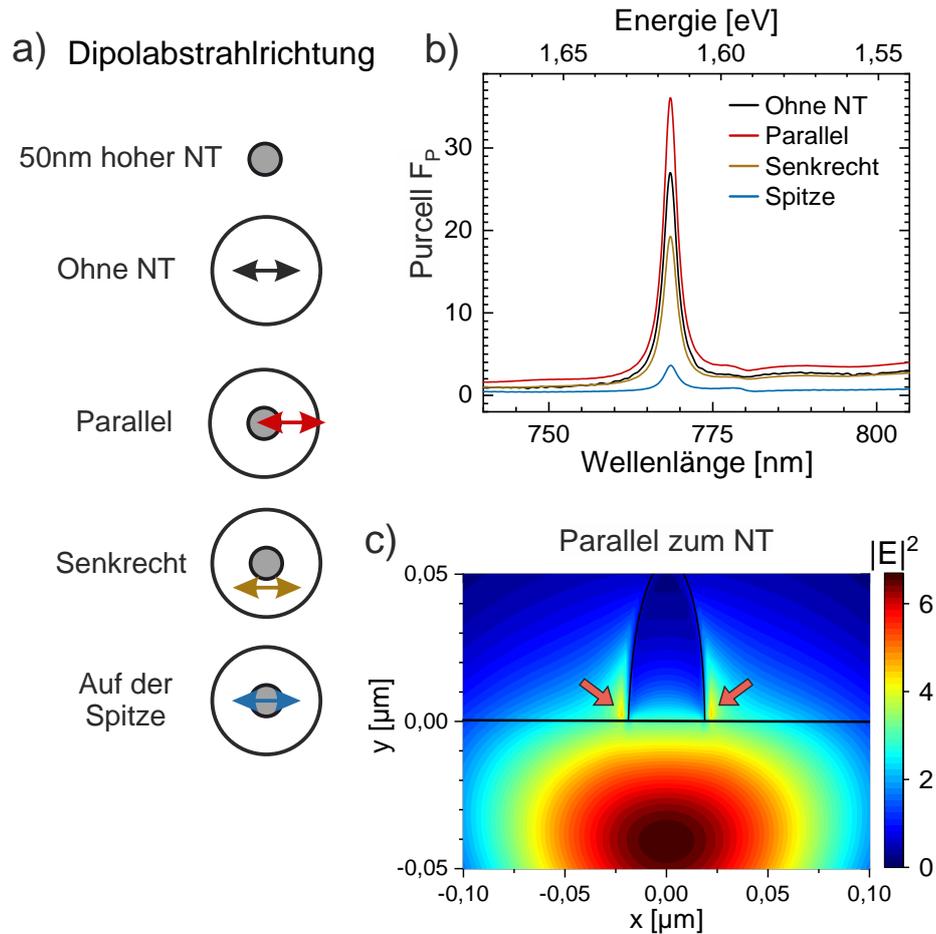


Abbildung 9.2: Abhängigkeit des Purcell-Faktors von der Ausrichtung des Dipols: a) Betrachtete Konfigurationen: 1) Ohne Nanotürmchen (NT). 2) Ein um 25 nm vom Zentrum verschobener Dipol, dessen Abstrahlrichtung parallel dazu verläuft. 3) Wie in 2), nur dass die Abstrahlrichtung senkrecht zur Verschiebung ausgerichtet ist. 4) Der Dipol sitzt auf dem 50 nm hohen NT. b) Vergleich der resultierenden Purcell-Faktoren. Im Gegensatz zum Aufbau ohne NT bricht F_P für den Dipol auf der Spitze massiv ein. Bei den beiden verschobenen Dipolen ergibt sich je nach Orientierung eine Verstärkung oder Abnahme um bis zu 20%. c) FDTD-Simulation des E-Feldes für den parallelen Fall. Es zeigen sich hohe Intensitäten am Fuße des NT (Pfeile), in denen es zu einer Verstärkung kommen kann.

eine gute Kopplung zu ermöglichen. Dies wird durch eine Monolage gewährleistet, die sich eng über die gesamte Struktur legt. Durch das NT und die resultierenden Verspannungen können Quantenemitter nahe der Oberfläche des CBGs entstehen.

9.3 Variation der Kavitätsparameter der zirkularen Bragg-Gitter

Um den qualitativen Einfluss der einzelnen Parameter experimentell bestimmen zu können, wurden neben den oben genannten Abmessungen zusätzlich Ringbreiten b von 60 nm - 100 nm und innere Radien r von 780 nm - 820 nm hergestellt. Die Ringbreiten liegen alle wenige Nanometer unterhalb vom angestrebten Wert, da im Prozess diese tendenziell zu breit geätzt bzw. überbelichtet werden. So zeigt sich durchschnittlich eine Abweichung der angepeilten Größen von etwa (7) nm. Die Ringe sind stets komplett durchgeätzt, da die Membran im Vergleich zu Kap. 8 nicht frei hängt, sondern fest auf dem Substrat aufliegt.

Die prozessierten CBGs werden zunächst mittels Reflexionsmessungen charakterisiert. Hierfür wird eine breitbandige Weißlichtquelle anstelle des Lasers in den sonst gleichen Messaufbau aus Kapitel 3.2 eingekoppelt. So ergeben sich in Abb. 9.3a) Spektren, die abhängig von den Resonanzen der untersuchten Struktur Einbrüche des reflektierten Lichts aufweisen. Für deren Auswertung wird noch eine Referenzmessung benötigt, die auf der unprozessierten Membran durchgeführt wurde. Aus deren Differenz kann anschließend der Einfluss der Kavität ermittelt werden. Somit berechnet sich der Kontrast k zu

$$k = \frac{I_{CBG} - I_{Ref}}{I_{Ref}}, \quad (9.1)$$

der die auf die Referenz I_{Ref} normierte Differenz der Intensität auf dem CBG I_{CBG} darstellt. Beispielhaft zeigt Abbildung 9.1b) für die Parameter $r = 780$ nm und $b = 80$ nm den resultierenden Kontrast. Die Auswertung wird durch die extreme Positionsabhängigkeit der Spektren erschwert, die sich bereits bei Abweichungen von wenigen hundert Nanometern stark ändern können. Dieses Verhalten ist bei CBGs zu erwarten, da die simulierten Moden immer von einem Dipol im Zentrum ausgehen. Betrachtet man stattdessen Punkte, die weiter davon entfernt liegen, so wird der Einfluss weiterer Moden sichtbar. Aufgrund der Radialsymmetrie des CBGs jedoch lässt sich das Zentrum durch dessen wiederholtes Anfahren an den Spektren festmachen, um eine konsistente Auswertung zu ermöglichen. Die in a) gezeigte, dominante Mode bei 774 nm besitzt einen Q-Faktor von 55 ± 6 . Trägt man die Ergebnisse für alle anderen Parametervariationen wie in Abb. 9.3c) zusammen auf, so lassen sich die Abhängigkeiten der CBGs klar erkennen. Mit zunehmendem Radius

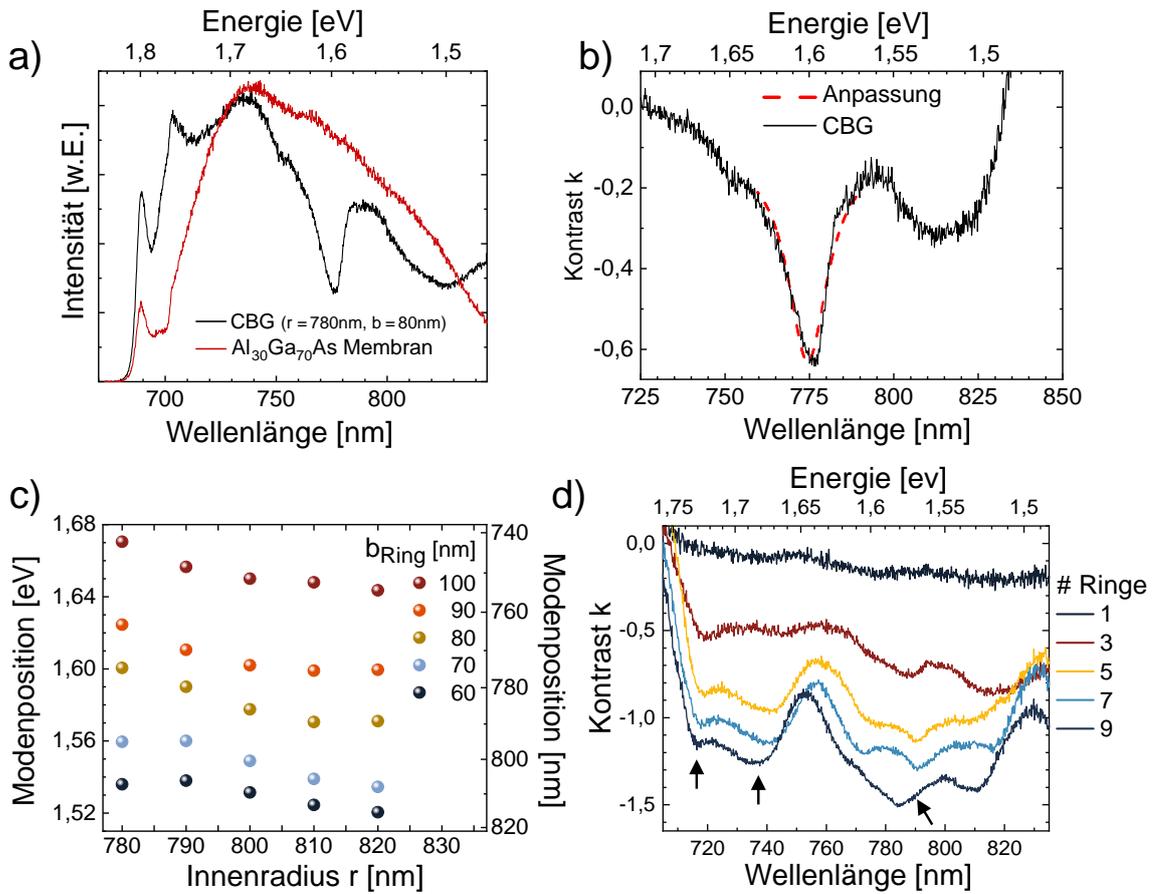


Abbildung 9.3: a) Reflexionsmessungen eines CBGs mit einem inneren Radius von 780 nm und einer Ringbreite von 80 nm sowie einer Referenzmessung auf der nackten Membran. b) Die Anpassung des Einbruchs der Reflektivität, die sich aus dem Kontrast k der in a) gezeigten Spektren ergibt. c) Variation der Modenposition in Abhängigkeit von der Ringbreite b_{Ring} und dem inneren Radius r . Mit zunehmender Breite sinkt der effektive Brechungsindex, der zu einer Blauverschiebung führt. d) Abhängigkeit der Modenausbildung von der Ringanzahl des CBGs. Mit Zunahme dieser steigt auch die Ausprägung der Moden (Pfeile).

der inneren Scheibe ergibt sich eine Rotverschiebung um etwa 10 nm, bedingt durch die größere Kavität. Die Ringbreiten hingegen besitzen einen wesentlich stärkeren Einfluss auf die Position der resultierenden Mode. Nach Gleichung 2.20 aus Kapitel 2.3 ist der

wichtigste Faktor der effektive Brechungsindex n_{eff} der Membran, der sich in erster Näherung zu

$$n_{eff} = a \cdot n_{Luft} + (1 - a)n_{AlGaAs}, \quad (9.2)$$

mit dem Volumenverhältnis $a = V_{Luft}/V_{AlGaAs}$ ergibt. Wird die Ringbreite erhöht, so steigt der relative Anteil der Luft in der Membranebene, während infolgedessen der effektive Brechungsindex ($n_{Luft} \approx 1$, $n_{AlGaAs} \approx 3,52^1$) sinkt. Bei gleichbleibender Periode führt dies zu einer reduzierten Wellenlänge bzw. höheren Energie der Kavitätsmoden. Konkret ergibt sich aus den Daten für $r = 800$ nm von $b = 60$ nm nach $b = 100$ nm eine Änderung der Wellenlänge um 60 nm. Dies entspricht einer relativen Abnahme von 7,5%, die sehr gut mit der Änderung von n_{eff100}/n_{eff60} um 7,0% übereinstimmt.

Neben den zuvor genannten Parametern spielt auch die Anzahl der Ringe bei der Ausbildung der Moden eine Rolle. Das Ergebnis einer Variation von 1 - 10 Ringen einer anderen Probe mit nominell sonst gleichen Parametern für $r = 800$ nm und $b = 100$ nm ist in Abbildung 9.3d) dargestellt. Der qualitative Einfluss der Ringanzahl lässt sich gut erkennen. So bildet sich mit steigender Anzahl eine zunehmend ausgeprägte Modenstruktur aus. Bei nur einem Ring ist keine vorhanden, bereits bei 5 Ringen ist sie aber bei zum Beispiel 730 nm und 785 nm hinreichend ausgeprägt. Mit noch höherer Anzahl hingegen zeigen sich kaum noch Änderungen. Da sich im Transferprozess von TMDC-Monolagen eine möglichst große, unbehandelte Fläche als vorteilhaft herausstellte, werden im Folgenden immer 5 Ringe benutzt. Dies gewährleistet einen ausreichenden Q-Faktor, ohne den Transfer unnötig zu erschweren.

9.4 Einfluss der Kavität auf eine WSe₂-Monolage

Nach der obigen Charakterisierung der CBGs stellt sich der Parametersatz mit einer Ringbreite von 100 nm als beste Wahl für die Kopplung an eine WSe₂-Monolagen heraus. Die Reflexionsmessungen an einer solchen Struktur demonstrieren in Abb. 9.4a) je einen Einbruch des Signals bei 730 nm (A) und bei 760 nm (B), die beide mit zunehmendem inneren Radius R eine Rotverschiebung von bis zu 10 nm zeigen. Dies entspricht den Positionen, für die ein Einbruch der Reflexion erwartet wird (siehe Anhang A.9). Das Signal A (B) besitzt eine Bandbreite von 20 nm (30 nm),

¹Brechungsindex für 31% Aluminiumgehalt bei 750 nm [Ada85]

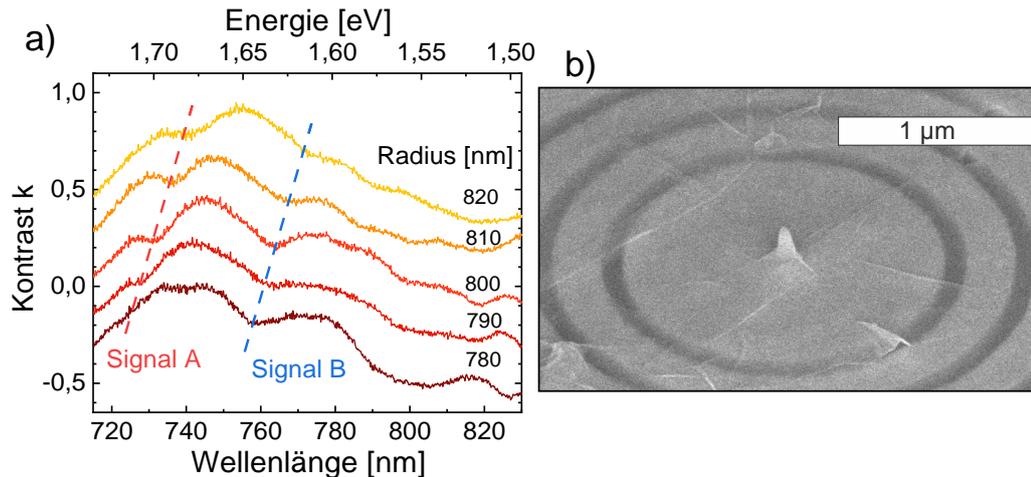


Abbildung 9.4: a) Reflexionsmessung von CBGs mit einer Ringbreite von 100 nm für verschiedene Radien. Die Signale A (730 nm) und B (770 nm) zeigen eine deutliche Rotverschiebung mit steigendem Radius. b) Die SEM-Aufnahme einer transferierten WSe_2 -Monolage auf das in a) genannte CBG belegen, dass sich die Monolage sehr gut über die gesamte Struktur legt. Am Fuß des Nanotürmchens sowie an zufällig verteilten Stellen kommt es zu Falten in der Monolage.

die zu einem Q-Faktor von ungefähr 40 (30) führt. Beide liegen im Bereich der Einzelphotonenemitter in WSe_2 -Monolagen von 720 nm bis 800 nm und eignen sich somit zur Kopplung der Emitter an das CBG.

Basierend hierauf erfolgt der Transfer einer Monolage auf die Bragg-Gitter ($R = 800$ nm), die zuvor mit einem Nanotürmchen versehen wurden. Das Endergebnis des Herstellungsprozesses ist ein Nanotürmchen, das inmitten eines CBGs von einer WSe_2 -Monolage bedeckt wird (siehe Abb. 9.4b). Bemerkenswerterweise schmiegt sich die ML sehr gut über die Nanostruktur und nimmt deren Morphologie an. Hierdurch entstehen insbesondere an deren Basis des Türmchens Verspannungen, die Quantenemitter induzieren können. Daneben kommt es auch durch den Transferprozess über das gesamte CBG zu zufällig verteilten Falten der ML, die allesamt nur wenige Nanometer hoch sind. Der wichtige Abstand zwischen Emitter und Membranoberfläche fällt somit sehr klein aus – ideal für eine gute Kopplung.

In Abb. 9.5a) stellt die gelbe Kontur eine transferierte Monolage dar, die mehrere CBGs bedeckt (blaue Kreise). Die Monolage selbst überspannt eine Fläche von mehr als $20 \mu\text{m} \times 80 \mu\text{m}$. Betrachtet man nun in Abb. 9.5b) die Photolumineszenzkarten der integrierten Intensität dieses Gebiets im Bereich der freien WSe_2 -Emission von 710 nm bis 730 nm, wird die Form der ML auch spektral ersichtlich. Es zeigt sich nur eine leichte

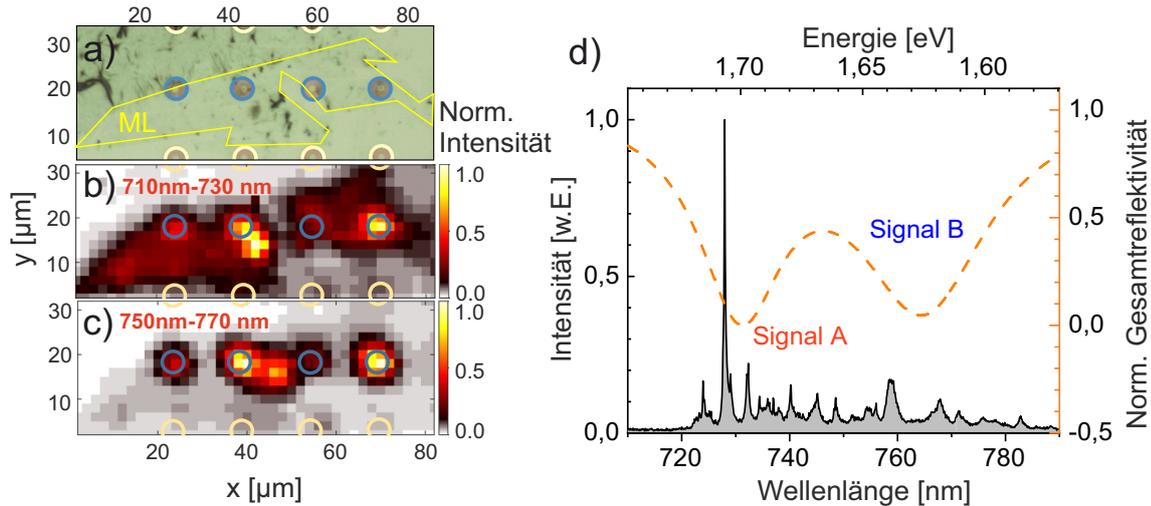


Abbildung 9.5: a) Optisches Bild einer Anordnung aus CBGs (Kreise), die mit einer WSe₂-Monolage bedeckt sind (blau). b) und c) PL-Karten für 710 nm bis 730 nm beziehungsweise 750 nm bis 770 nm. Erstere verdeutlicht dank der freien WSe₂-Emission den Verlauf der Monolage, wohingegen in letzterer die Quantenemitter dominieren. d) Exemplarisches Spektrum auf einem bedeckten CBG. Die Emission ist von lokalisierten Emittoren dominiert. Eine Überlagerung mit der normierten Gesamtrefektivität der beiden Signale A und B aus Abb. 9.4a) zeigt eine deutliche Überlappung der schärfsten Linie mit dem Signal A.

Verstärkung der Intensität an den Positionen der CBGs. Im Bereich des Signals B in c) von 750 nm bis 770 nm dominiert hingegen eine lokal begrenzte Intensitätszunahme die PL genau an den Stellen, an denen sich CBGs befinden. Dieser spektrale Teilbereich ist besonders empfindlich für Defektemission, da dort das übliche WSe₂-Monolagensignal kaum vorhanden ist und somit der Kontrast wesentlich höher ausfällt. Die Bragg-Gitter eignen sich folglich gut, um das Licht in Richtung des Sammelobjektivs zu leiten. Ein Spektrum an der Position eines CBGs ist in Abb. 9.5d) zu sehen. Die komplette Photolumineszenz wird von lokalisierten Emittoren mit unterschiedlicher Intensität dominiert. Überlagert man damit die Ergebnisse der Reflexionsmessung aus Abb. 9.4a), so zeigt sich, dass der hellste Emitter sehr gut mit der Position von Signal A übereinstimmt. Dies deutet auf die Verkürzung der Lebensdauer des Emitters durch den Purcell-Effekt hin. Ein weiterer Indikator ist der Vergleich der Intensität mehrerer Emittoren in Abhängigkeit von der Anregungsleistung (siehe Anhang A.10), da Emittoren auf dem CBG erst bei wesentlich höheren Leistungen Sättigungseffekte zeigen.

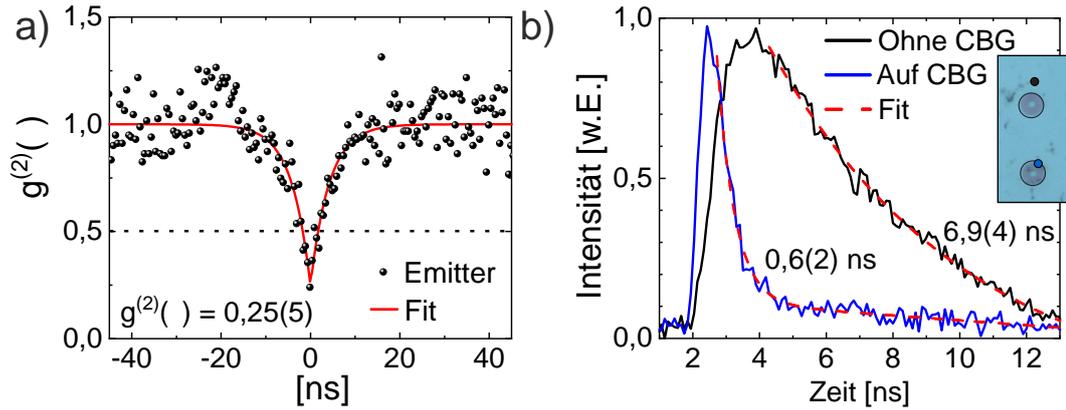


Abbildung 9.6: a) Autokorrelationsmessung eines Quantenemitters auf einem CBG. Die Anpassung ergibt einen Wert von $g^{(2)}(0) = 0,25 \pm 0,05$, der eindeutig den Einzelphotonencharakter bestätigt. b) Vergleich der Lebenszeiten zweier verschiedener Emittter (Einschub) auf und neben einem CBG. Auf dem CBG kann mit $(0,6 \pm 0,2)$ ns eine wesentlich kürzere Lebensdauer (blau) im Vergleich zu daneben (schwarz) mit $(6,9 \pm 0,4)$ ns gemessen werden.

9.5 Lebenszeitverkürzung von Einzelphotonenquellen durch schwache Kopplung

Der Einzelphotonencharakter der Emittter wird mittels der Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung $g^{(2)}(\tau)$ bestimmt (siehe Kap. 2.4). Hierfür wird ein hinreichend heller Emittter im HBT-Setup in Abb. 9.6a) vermessen. Für $\tau = 0$ wird das Aussenden eines weiteren Photons stark unterdrückt. Das Ergebnis von $g^{(2)}(0) = 0,25 \pm 0,05$ bestätigt klar, dass es sich um eine Einzelphotonenquelle handelt.

Nun erfolgt die Untersuchung der Quantenemittter hinsichtlich einer Verkürzung ihrer Lebenszeit, falls sie an ein CBG koppeln. Üblicherweise werden die Emittter hierfür durch den spektralen Bereich der Kavität durchgestimmt, indem ein äußerer Parameter wie etwa die Temperatur oder die mechanische Verspannung geändert wird. Im vorliegenden Szenario jedoch fällt die Bandbreite der CBGs mit mehreren zehn Nanometern zu breit aus, um denselben Emittter innerhalb und außerhalb der Resonanz zu vergleichen. Entsprechend erfolgt in Abb. 9.6b) ein Vergleich der Lebenszeit unterschiedlicher SPEs, die einmal auf (blau) und einmal neben (schwarz) einem CBG liegen. Der Vergleich demonstriert je nach Position einen signifikanten Unterschied in der Lebensdauer der untersuchten Emittter. Die Anpassung beider durch exponentielle Zerfälle ergibt für den Emittter auf dem CBG eine Lebenszeit von $(0,6 \pm 0,2)$ ns, wohingegen der langsamere mit $(6,9 \pm 0,4)$ ns eine um den Faktor

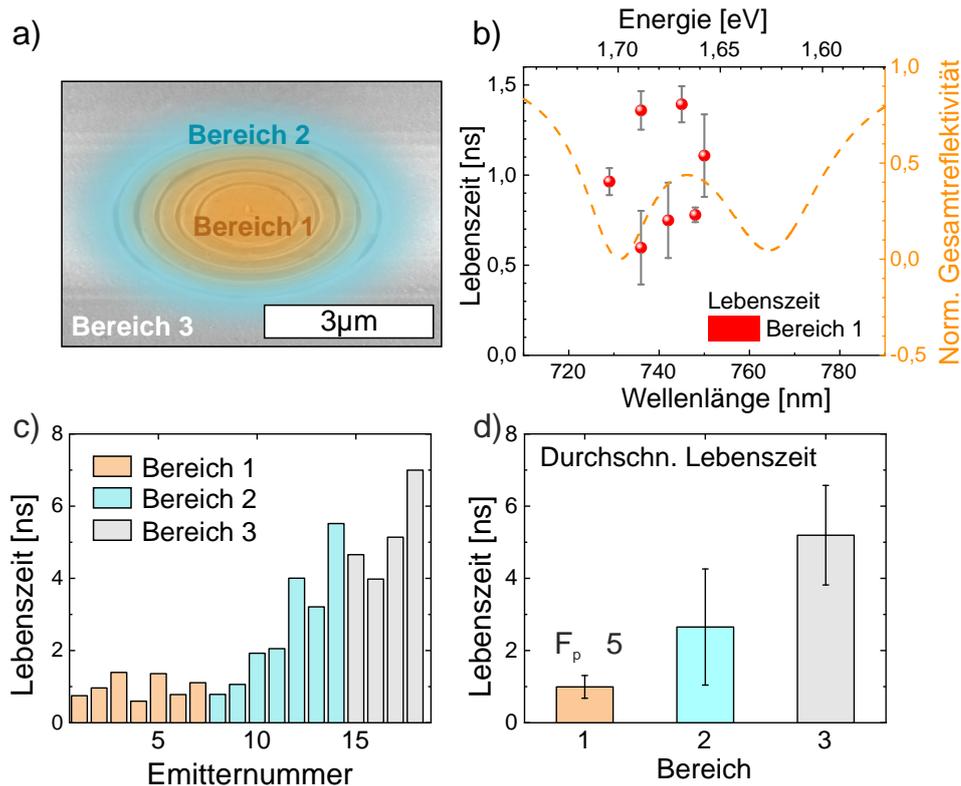


Abbildung 9.7: a) Einteilung des CBG-Gebiets in drei Bereiche: 1. Zentrum, 2. Randbereich, 3. Außerhalb des CBGs. b) Lebenszeiten der 7 Emittler im Bereich 1. Die spektrale Position überlappt gut mit denen der Reflexionsmessungen des CBGs. c) Histogramm aller vermessenen 18 Quantenemitter und deren zugehöriger Einteilung. Im Bereich 1 und Bereich 3 ist eine deutliche Unterscheidung der Lebenszeiten möglich. Bereich 2 hingegen weist eine große Streuung auf, die der schwierigen Zuordnung der genauen Position geschuldet ist. d) Histogramm der durchschnittlichen Lebenszeiten der Bereiche 1, 2 und 3: $(1,0 \pm 0,3)$ ns, $(2,7 \pm 1,4)$ ns und $(5,2 \pm 1,9)$ ns. Verglichen mit Bereich 3 lässt sich für Bereich 1 ein Purcell-Faktor F_P von etwa 5 abschätzen.

10 höhere Lebensdauer besitzt.

Für eine ausführlichere Analyse der Lebensdauern wird das CBG wie in Abb. 9.7a) in drei Bereiche aufgeteilt. Bereich 1 stellt das innere Gebiet des CBGs dar, wohingegen Bereich 3 eindeutig außerhalb davon liegt. Bereich 2 beschreibt einen etwa $2,5 \mu\text{m}$ breiten Übergang zwischen den ersten beiden. Diese Einteilung wurde unter Berücksichtigung der experimentell möglichen Auflösung während der Versuchsdurchführung von etwa $2,5 \mu\text{m}$ (Laserspot) gewählt. Emittler, die den Bereichen 1 und 3 zugeordnet sind, lassen sich deutlich unterscheiden. Solche, für die das nicht möglich ist, werden

dem Bereich 2 zugerechnet. Insgesamt konnten 18 individuelle SPEs ausgewertet werden, von denen 7 in den Bereich 1 fallen. Die entsprechenden Lebenszeiten in Abb. 9.7b) bewegen sich zwischen 0,6 ns und 1,4 ns. Ebenso liegen die zugehörigen Energien mit 730 nm bis 750 nm im Bereich der Moden des CBGs. Eine Übersicht aller gemessener Lebenszeiten sowie deren Zuordnung in Abb. 9.7c) ermöglicht eine Aussage über die Zuverlässigkeit der offensichtlichen Lebensdauerverkürzung. Die Übersicht zeigt deutlich, dass Emitter in den Bereichen 1 und 3 signifikant unterschiedliche Lebensdauern besitzen. Demgegenüber lässt sich in Bereich 2 mit 0,8 ns bis 5,5 ns eine große Streuung der Lebenszeiten erkennen. Dies ist ein starker Indikator dafür, dass es sehr auf die genaue Position des Emitters im Randgebiet des CBGs ankommt, ob er koppelt oder nicht. Bildet man die Mittelwerte pro Bereich wie in Abb. 9.7d), so ergeben sich die Werte für die Bereiche 1, 2 und 3 zu $(1,0 \pm 0,3)$ ns, $(2,7 \pm 1,4)$ ns und $(5,2 \pm 1,9)$ ns. Aufgrund der geringen Stichprobengröße n wird die Ungenauigkeit (95% Konfidenzintervall) mittels der Student-t-Verteilung ermittelt, die für große n in die Normalverteilung übergeht. Wird die Annahme zugrunde gelegt, dass ein Emitter auf der nackten AlGaAs-Membran ohne CBG keine Verstärkung erfährt, so lässt sich ein Purcell-Faktor im Bereich 1 von etwa 5 abschätzen. Ungekoppelte Quantenemitter, die mit der gezielten Verspannung einer WSe₂-Monolage in Verbindung stehen, zeigen üblicherweise Lebenszeiten im Bereich von 3 ns bis 8 ns [PB17, Bra16a]. Die hier gemessenen Lebenszeiten von etwa einer Nanosekunde für Emitter auf einem zirkularen Bragg-Gitter deuten hingegen auf eine Beschleunigung des strahlenden Zerfalls hin. Als Ursache hierfür kommt folglich die Verstärkung der Emitter im Bereich der schwachen Kopplung in Frage, die sie durch die Modulation der Zustandsdichte durch das CBG erfahren.

9.6 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurde die Möglichkeit erkundet, Einzelphotonenquellen in einer WSe₂-Monolage deterministisch an ein zirkulares Bragg-Gitter zu koppeln. Die Auswertung der Modenpositionen für unterschiedliche Parametersätze bestätigt deren Abhängigkeit vom effektiven Brechungsindex, der wiederum durch den Anteil der Ringbreiten an der Gitterperiode gegeben ist. So führt eine Abnahme des Brechungsindex zu einer Blauverschiebung der Kavitätsmoden.

Zudem bietet die Positionierung eines dielektrischen Nanotürmchens im Zentrum des CBGs die Option, dort oberflächennahe Verspannungen und Falten der Monolage zu

generieren. Wie die Simulationen zeigen, kann eine solche Nanostruktur sogar die Kopplung zwischen einem Dipol und der Membran erhöhen, wenn er direkt am Fuße des Nanotürmchens positioniert ist und die passende Ausrichtung besitzt. Befindet sich ein Dipol direkt auf der Spitze des Türmchens, so fällt die erwartete Kopplung nur gering aus, was allerdings lediglich der Distanz des Dipols zur Membranoberfläche geschuldet ist. Darüber hinaus hat die Struktur keinen signifikanten Einfluss auf die optischen Eigenschaften der Kavität. Die Kavitätssignale, die in Reflexionsmessungen bestimmt wurden, liegen in dem gewünschten spektralen Bereich von 730 nm bis 770 nm. Sofern die Quantenemitter, die durch die induzierten Verspannungen auf einem CBG entstanden, von der Kavität verstärkt werden, kann eine signifikante Verkürzung der Lebenszeit nachgewiesen werden. Konkret ergeben sich für Emittoren, die sich nicht im zentralen Bereich eines CBGs befinden, Lebensdauern von $(5, 2 \pm 1, 9)$ ns. Für solche innerhalb der Kavität hingegen kann ein Wert von $(1, 0 \pm 0, 3)$ ns ermittelt werden. Dieser Effekt, der im Rahmen der schwachen Kopplung auftritt, wird der Zunahme der optischen Zustandsdichte durch das CBG zugeordnet.

Somit konnte gezeigt werden, dass die Einzelphotonenquellen an die CBGs koppeln und ein Purcell-Faktor von bis zu 5 abgeschätzt werden. Basierend auf diesem grundlegenden Experiment lassen sich in Zukunft weitere Optimierungen durchführen. So könnte die Kombination mit äußeren Einflüssen wie etwa mechanischer Verspannung in Kapitel 6 oder elektrischen Feldern [Cha15] zu einer weiteren Verbesserung der optischen Eigenschaften führen.

Publikationen

Liste der Veröffentlichungen

Braun, T., Baumann, V., **Iff, O.**, Höfling, S., Schneider, C., Kamp, M. (2015). Enhanced single photon emission from positioned InP/GaInP quantum dots coupled to a confined Tamm-plasmon mode. *Applied Physics Letters*, 106(4), 041113. DOI: 10.1063/1.4907003

Lundt, N., Klemmt, S., Cherotchenko, E., Betzold, S., **Iff, O.**, Nalitov, A. V., Klaas, M., Dietrich, C. P., Kavokin, A. V., Höfling, S., Schneider, C. (2016). Room-temperature Tamm-plasmon exciton-polaritons with a WSe₂ monolayer. *Nature Communications*, 7(1), 13328. DOI: 10.1038/ncomms13328

He, Y.-M., **Iff, O.**, Lundt, N., Baumann, V., Davanco, M., Srinivasan, K., Höfling, S., Schneider, C. (2016). Cascaded emission of single photons from the biexciton in monolayered WSe₂. *Nature Communications*, 7(1), 13409. DOI: 10.1038/ncomms13409

Iff, O., He, Y.-M., Lundt, N., Stoll, S., Baumann, V., Höfling, S., Schneider, C. (2017). Substrate engineering for high-quality emission of free and localized excitons from atomic monolayers in hybrid architectures. *Optica*, 4(6), 669. DOI: 10.1364/OPTICA.4.000669

Lundt, N., Cherotchenko, E., **Iff, O.**, Fan, X., Shen, Y., Bigenwald, P., Kavokin, A. V., Höfling, S., Schneider, C. (2018). The interplay between excitons and trions in a monolayer of MoSe₂. *Applied Physics Letters*, 112(3). DOI: 10.1063/1.5019177

Iff, O., Lundt, N., Betzold, S., Tripathi, L. N., Emmerling, M., Tongay, S., Lee, Y. J., Kwon, S.-H., Höfling, S., Schneider, C. (2018). Deterministic coupling of quantum emitters in WSe₂ monolayers to plasmonic nanocavities. *Optics Express*, 26(20), 25944. DOI: 10.1364/OE.26.025944

Tripathi, L. N., **Iff, O.**, Betzold, S., Dusanowski, L., Emmerling, M., Moon, K., Lee, Y. J., Kwon, S.-H., Höfling, S., Schneider, C. (2018). Spontaneous Emission Enhancement in Strain-Induced WSe₂ Monolayer-Based Quantum Light Sources on Metallic Surfaces. *ACS Photonics*, 5(5), 1919 - 1926. DOI: 10.1021/acsp Photonics.7b01053

Iff, O., Tedeschi, D., Martín-Sánchez, J., Moczala-Dusanowska, M., Tongay, S., Yumigeta, K., Taboada-Gutiérrez, J., Savaresi, M., Rastelli, A., Alonso-González, P., Höfling, S., Trotta, R., Schneider, C. (2019). Strain-Tunable Single Photon Sources in WSe₂ Monolayers. *Nano Letters*, 19(10), 6931 - 6936. DOI: 10.1021/acsnanolett.9b02221

Moczala-Dusanowska, M., Dusanowski, L., **Iff, O.**, Huber, T., Kuhn, S., Czyszanowski, T., Schneider, C., Höfling, S. (2020). Strain-Tunable Single-Photon Source Based on a Circular Bragg Grating Cavity with Embedded Quantum Dots. *ACS Photonics*, 7(12), 3474 - 3480. DOI: 10.1021/acsp Photonics.0c01465

Iff, O., Buchinger, Q., Moczala-Dusanowska, M., Kamp, M., Betzold, S., Davanco, M., Srinivasan, K., Tongay, S., Antón-Solanas, C., Höfling, S., Schneider, C. (2021). Purcell-Enhanced Single Photon Source Based on a Deterministically Placed WSe₂ Monolayer Quantum Dot in a Circular Bragg Grating Cavity. *Nano Letters*, acsnanolett.1c00978. DOI: 10.1021/acsnanolett.1c00978

Iff, O., Davanco, M., Betzold, S., Moczala-Dusanowska, M., Wurdack, M., Emmerling, M., Höfling, S., Schneider, C. (2021). Hyperspectral study of the coupling between trions in WSe₂ monolayers to a circular Bragg grating cavity. *Comptes Rendus. Physique*, 22(S4), 1 - 9. DOI: 10.5802/crphys.76

Konferenzbeiträge (Contributed Talks)

Exciton-trion competition and single photon emission in hybrid III-V-monolayer devices, *DPG Frühjahrstagung Dresden*, 2017

Coupling of a monolayer of WSe₂ to an InGaP bullseye cavity, *DPG Frühjahrstagung Berlin*, 2018

Plasmonic Coupling and Engineering of Single Photon Emitters in WSe₂ Monolayers, *NOEKS Berlin*, 2018

Plasmonic Coupling and Engineering of Single Photon Emitters in WSe₂ Monolayers, *DPG Frühjahrstagung Regensburg*, 2019

Posterbeiträge

Exciton-trion competition and single photon emission in hybrid III-V-monolayer devices, *PLMCN*, 2017

Plasmonic coupling of single photon emitters in WSe₂, *ICPS Montpellier*, 2018

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich allen Leuten danken, die direkt oder indirekt zum Gelingen der Arbeit beigetragen und die vergangenen Doktorandenjahre erst ermöglicht haben. Besondere Erwähnung finden hierbei ...

- Prof. Dr. Christian Schneider für die erstklassige Betreuung als Doktorvater und Gruppenleiter. Sowohl in Würzburg als auch später von Oldenburg aus habe ich immer auf dein Wissen und hilfreichen Kommentare vertrauen können.
- Prof. Dr. Sven Höfling für die Aufnahme an den Lehrstuhl der Technischen Physik.
- Prof. Dr. Bert Hecht für die unkomplizierte Übernahme des Zweitgutachtens sowie Prof. Dr. Giorgio Sangiovanni als Drittprüfer.
- meine langjährigen Bürokollegen Johannes Beierlein und Monika Emmerling. Wir sind ein harmonisches Gespann gewesen, das neben den ganzen ECP-Problemchen eine sehr angenehme und lockere Büroatmosphäre aufbauen konnte, die zwischen produktiv und unterhaltsam oszilliert hat.
- alle Technikerinnen des Lehrstuhls, die mit ihrer Erfahrung und Fähigkeiten im Reinraum die Prozessierung verschiedenster Proben erst ermöglicht haben. Ohne euch stünde hier nicht viel.
- our many cooperations from all over the world. Specifically I would like to thank Prof. Dr. Sefaattin Tongay for delivering plenty of high-quality TMDCs on demand, Dr. Marcelo Davanço and Prof. Dr. Soon-Hong Kwon for various simulations and fruitful discussions regarding CBGs and plasmonic structures, as well as Dr. Javier Martín-Sánchez and Prof. Dr. Ronaldo Trotta for a successful joint project on the topic of tuneable single photon sources.
- mein IT-Mitstreiter Tristan Harder, mit dem ich in einer grandiosen Doppelspitze die (manchmal weniger) alltäglichen IT-Probleme neugestartet habe.

- die langjährigen Kollegen Stefan Gerhardt, Simon Betzold, Maximilian Waldherr und Martin Klaas, die in den Leiden und Freuden des Doktorandenlebens vereint waren.
- meine Masteranden Quirin Buchinger und Johannes Michl, die neuen Elan und Schwung für die Exfolierung mitgebracht hatten.
- alle weiteren Kollegen der Spektroskopie und des gesamten Lehrstuhls, die mich auf meiner wissenschaftlichen Reise begleitet haben.
- natürlich auch Anja, Svenja und vielen Weiteren für das fleißige Gegenlesen der Arbeit. Ohne euch stünde hier sehr viel falsch.
- mein Vater, der leider den Abschluss dieser Arbeit nicht mehr erleben durfte. Ruhe in Frieden.

Und zu guter Letzt meine Familie und Freunde, die mir Rückhalt und Unterstützung während meines gesamten Studiums gegeben haben. Ohne euch stünde ich nicht hier.

Danke.

Anhang A

A.1 Finite-Difference Time-Domain-Simulation

Die Methode der Finite-Difference Time-Domain-Simulation entwickelte sich in den vergangenen Jahrzehnten zu einer erfolgreichen Möglichkeit, die Maxwell-Gleichungen der Elektrodynamik in verschiedenen Geometrien zu berechnen. Die zugrunde liegende Idee besteht darin, die gewünschte Struktur durch ein versetztes Yee-Gitter [Yee66] zu diskretisieren und die partiellen Maxwell-Gleichungen

$$\frac{\partial \vec{D}}{\partial t} = \nabla \times \vec{H}, \quad (\text{A.1})$$

$$\vec{D}(\omega) = \epsilon_0 \epsilon_r(\omega) \vec{E}(\omega) \quad (\text{A.2})$$

$$\frac{\partial \vec{H}}{\partial t} = -\frac{1}{\mu_0} \nabla \times \vec{E} \quad (\text{A.3})$$

abwechselnd für die elektrischen und magnetischen Feldstärken zu berechnen [Taf05]. Die zeitliche Entwicklung des Magnetfeldes ergibt sich dabei aus der Rotation des elektrischen Feldes, woraus sich wiederum dessen zeitliche Entwicklung ableiten lässt. Das hierfür benutzte Gitter ist in Abb. A.1a) für den dreidimensionalen Fall dargestellt. Die einzelnen elektrischen Feldkomponenten werden zueinander versetzt zu einem beliebigen Startzeitpunkt $t = 0$ vorgegeben, woraus durch den Einsatz der finiten Differenzen-Methode die Ableitungen des magnetischen Feldes berechnet und somit die Differentialgleichungen gelöst werden. So kann etwa die zeitliche Entwicklung eines Dipolfeldes, das in der gewünschten Struktur platziert wurde, analysiert werden. Hierfür wird für das gesamte System im sogenannten Leapfrog-Verfahren (Abb. A.1b) zunächst aus dem E-Feld für $t = 0$ das B-Feld bei $t = 1/2$ berechnet. Aus diesem wiederum ergibt sich das E-Feld für $t = 1$, wobei Δt lediglich ein Iterator darstellt. Dies wird solange fortgesetzt, bis eine Abbruchbedingungen wie etwa eine

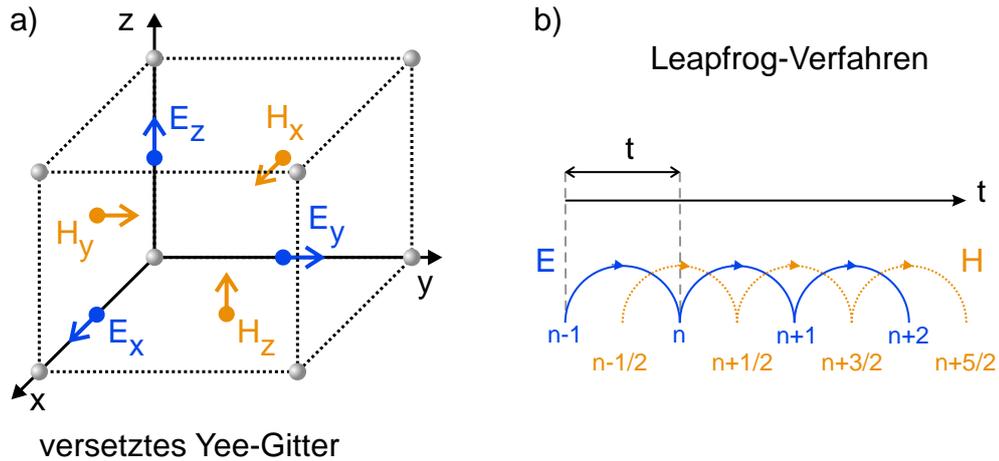


Abbildung A.1: a) Darstellung des versetzten Yee-Gitters für das elektrische und magnetische Feld in drei Dimensionen. b) Das Leapfrog-Verfahren ermöglicht die abwechselnde Berechnung des elektrischen und magnetischen Feldes innerhalb eines Zeitschritts Δt . Basierend auf dem einen Feld kann das jeweils andere für den nächsten Zeitschritt berechnet werden.

ausreichend geringe Änderung der Gesamtenergie des Systems erreicht wird. Für eine ausführliche mathematische Behandlung wird hier auf die Literatur von Taflove [Taf05] verwiesen. In dieser Arbeit kam die Lösungssoftware Lumerical Solution zum Einsatz, die ausgehend von einer gegebenen Geometrie die Differentialgleichungen für das gesamte Gitter löst. Hierbei ist zu beachten, dass das Gitter abhängig von der Struktur ausreichend fein gewählt wird, um insbesondere den Einfluss von Metallstrukturen im Nanometerbereich und die damit verbundenen hohen Feldstärken hinreichend erfassen zu können. Ebenso ist es wichtig, Symmetrien im System auszunutzen, um die benötigte Rechenzeit und den Speicherbedarf zu reduzieren. Für die konkrete Anwendung bietet sich ein Blick in die ausführliche [Online-Datenbank](#) von Lumerical an [Sol21].

A.2 Unterätzen der frei hängenden Membranen

Für die frei hängenden Membranen ist ein ausreichendes Unterätzen der InGaP-Schichten äußerst wichtig. Ob dies der Fall ist, lässt sich im optischen Mikroskop deutlich erkennen. Die Struktur in Abb. A.2a) ist nicht komplett unterätzt, da sich in der Mitte noch ein heller Kontrastbereich befindet. Der Bereich, in dem die

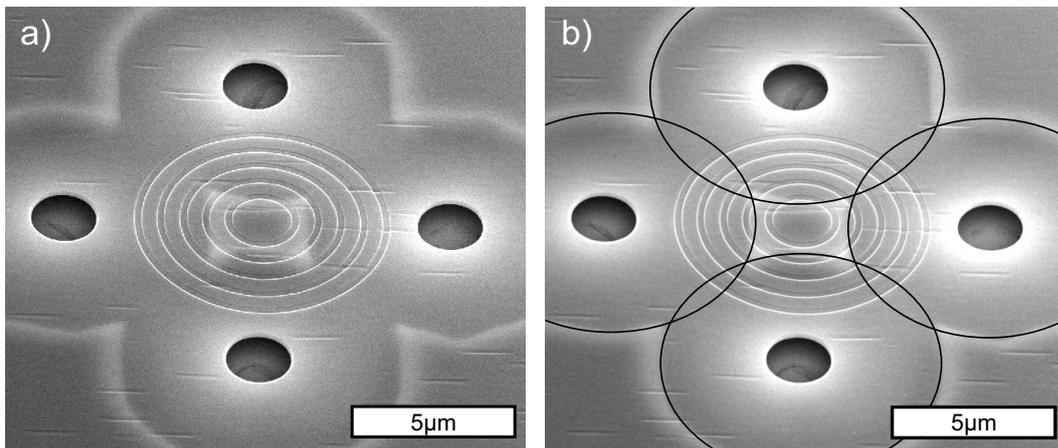


Abbildung A.2: a) SEM-Bild einer nicht komplett unterätzten, frei hängenden Membran mit 4 Ätzlöchern. b) Selbes SEM-Bild wie in a), allerdings sind die unterätzten Bereiche mit Ringen gleichen Durchmessers ($8,6\ \mu\text{m}$) eingezeichnet. Die Ringe erscheinen perspektivisch bedingt elliptisch.

AlGaAs-Opferschicht entfernt wurde, kann gut mit einem Ring pro Loch genähert werden. In Abb. A.2b) sind die unterätzten Regionen für alle vier Löcher eingezeichnet, die dies verdeutlichen. Eine längere Ätzdauer ($> 40\ \text{s}$) garantiert das komplette Unterätzen.

A.3 Piezoelektrische Parameter

Die in Kapitel 6 verwendeten Piezokeramiken lassen sich über je zwei Tensoren in der Matrixschreibweise charakterisieren. Die einzelnen Einträge stellen dabei materialspezifische Konstanten dar. Da sie für große mechanische Kräfte und elektrische Felder nicht mehr konstant bleiben, gelten die Werte nur für hinreichend kleine Veränderungen, wie sie in dieser Arbeit angewandt wurden. Im Folgenden werden für den (110) PMN-(28%)-Piezo und den (001) PMN-(28%)-Piezo der Verspannungstensor \mathbf{s} und der piezoelektrische Tensor \mathbf{d} aufgeführt:

$$\mathbf{s}_{(110)} = \begin{pmatrix} 14,16 & -17,11 & 8,63 & 0 & 0 & 0 \\ -17,11 & 58,13 & -33,31 & 0 & 0 & 0 \\ 8,63 & -33,31 & 31,81 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 15,1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 142,86 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 20,65 \end{pmatrix} \times 10^{-12} m^2/N, \quad (\text{A.4})$$

$$\mathbf{d}_{(110)} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 2446 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 13,1 & 0 & 0 \\ 448 & -2044,7 & 958 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \times 10^{-12} C/N, \quad (\text{A.5})$$

sowie

$$\mathbf{s}_{(001)} = \begin{pmatrix} 52,1 & -24,6 & -26,4 & 0 & 0 & 0 \\ -24,6 & 52,1 & -26,4 & 0 & 0 & 0 \\ -26,4 & -26,4 & 59,9 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 16,0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 16,0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 28,3 \end{pmatrix} \times 10^{-12} m^2/N, \quad (\text{A.6})$$

$$\mathbf{d}_{(001)} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 165 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 165 & 0 & 0 \\ -699 & -699 & 1540 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \times 10^{-12} C/N. \quad (\text{A.7})$$

A.4 Rasterkraftmikroskopmessungen einer Monolagenfalte

Nach dem Transfer kann eine Monolage aufgrund der auftretenden, mechanischen Kräfte zufällig verteilte Falten besitzen. Diese beeinflussen die lokalen Potentiale einer Monolage, sodass sich darin bevorzugt Einzelphotonenemitter ausbilden. Die Form solcher Falten wurde von unseren Kooperationspartnern aus Oviedo¹ mittels Rasterkraftmikroskopie (AFM) untersucht. In Abb. A.3a) sind entsprechende SEM-Bilder zweier Falten abgebildet. Beide zeigen eine langgezogene Struktur, die am Rand der Monolage endet. Die zugehörigen AFM-Messungen in Abb. A.3b) und c) zeigen gaußähnliche Querschnitte auf. Die Höhen betragen 80 nm und 40 nm, welche typisch für transferbedingte Verwerfungen sind.

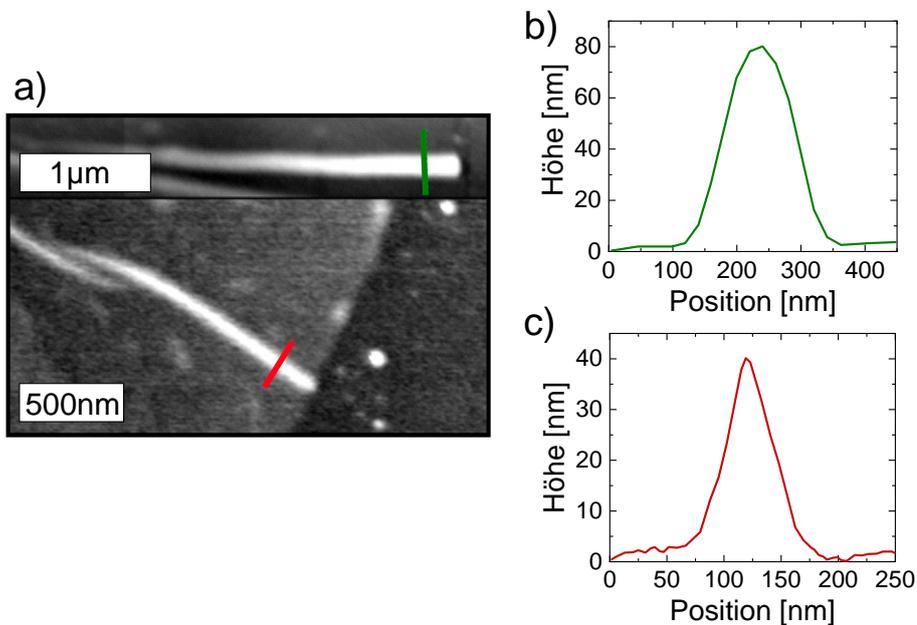


Abbildung A.3: a) SEM-Bilder transferierter Monolagen mit deutlich sichtbaren Verwerfungen. b) und c) AFM-Messungen der in a) markierten Falten (rot und grün) mit einer Höhe von 80 nm und 40 nm, die eine gaußähnliche Form besitzen.

¹Dr. Javier Martín-Sánchez, Universität von Oviedo, Spanien

A.5 Einfluss der Geometrie auf das Vorzeichen der Energieänderung

In Kapitel 6 wird eine Monolage auf ein Piezoelement transferiert. Bedingt durch die Dimensionalität einer Monolage findet eine hohe Übertragung der mechanischen Verspannung statt, wenn der Piezo durch ein äußeres, elektrisches Feld verformt wird. Diese Verspannung führt zu einer Veränderung der Potentiallandschaft der Monolage, wodurch sich die darin eingeschlossenen Quantenemitter in ihrer Energie beeinflussen lassen. Dabei kommt es sehr auf den konkreten Ursprung eines Emitters an, ob und wie er mit der eingestellten Verspannung reagiert. Da der Anregungslaser stets einen gaußförmigen Anregungspunkt mit endlicher Ausdehnung ($\approx 2\ \mu\text{m}$) aufweist und die Verwerfungen der Monolage im Nanometerbereich liegen, ist es möglich, gleichzeitig mehrere SPEs an verschiedenen Stellen anzuregen. Dies kann dazu führen, dass im selben Spektrum mehrere Emitter mit unterschiedlichem Verhalten gemessen werden. Dies wurde von unseren Kooperationspartnern aus Rom² für einen (001)-Piezo in Abb. A.4a) beobachtet.

So sind drei Emitterlinien zu sehen, die sich mit steigendem Feld von 0 bis 15 keV/cm unterschiedlich verhalten. Obwohl die Emitter gleichzeitig angeregt werden, schieben sie unterschiedlich stark in verschiedene Richtungen. Eine Erklärung hierfür ist, dass die induzierte Verspannung je nach Ort des Emitters anders auf die Monolage wirkt und somit ein anderes Verhalten der hierdurch aktivierten Photonenquellen bedingt. Dies wird auch aus den Finite-Element-Simulationen unseres Kooperationspartners aus Oviedo³ erwartet (siehe Kap. 6.4).

Um diese Aussage zu untermauern, führte die Gruppe aus Rom ein Kontrollexperiment mit einem (110)-PMN-PT-Piezo in Abb. A.4b) durch. Diese Art besitzt ein stark anisotropes Verhalten innerhalb der x-y-Ebene der Oberfläche, wobei x/y den Kristallrichtungen (100)/(01-1) entsprechen [Zha15a]. Auch hier offenbart sich wie schon für den (001)-Piezo die Möglichkeit, dass Emitter mit ihrer Energie in verschiedene Richtungen schieben können.

Dieses Mal zeigt ein Emitter eine leichte Blauverschiebung, wohingegen zwei bei geringeren Energien eine extreme Rotverschiebung um bis zu 18 meV für $F_P = 15\ \text{keV/cm}$ aufweisen.

Verglichen mit der vorangegangenen Geometrie des (001)-Piezos deutet die starke

²Prof. Dr. Ronaldo Trotta, Sapienza Universität in Rom, Italien

³Dr. Javier Martín-Sánchez, Universität von Oviedo, Spanien

Anisotropie auf eine entsprechend große Änderung des simulierten Spannungsfeldes in Abb. A.4c) hin. Die experimentell gefundene Situation ließe sich mit den Punkten A und B, die am Rand der Falte konträre Verspannungen besitzen, erklären. Die zugehörige Abhängigkeit vom angelegten E-Feld an diesen Orten (Abb. A.4 demonstriert wie schon für den (001)-Piezo einen linearen Verlauf. Hier sei noch einmal betont, dass die konkrete Geometrie einer Verwerfung einen sehr großen Einfluss auf das real vorhandene Spannungsfeld hat. Deswegen sind weitere Experimente nötig, um den genauen Zusammenhang zwischen Position und dem induzierten Verhalten eindeutig zu belegen.

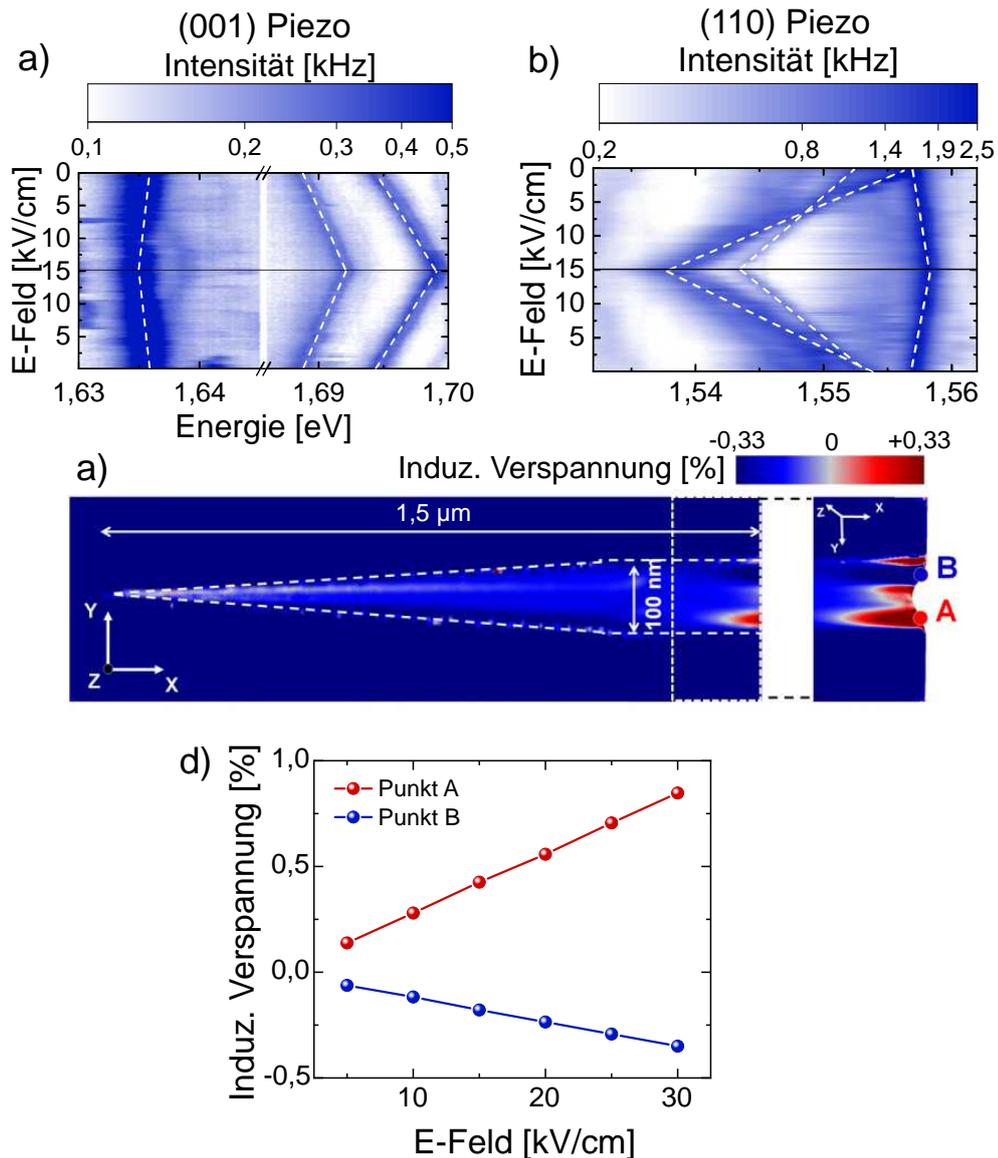


Abbildung A.4: a) Konturplot der PL-Spektren dreier SPEs auf einem (001)-Piezo. Das E-Feld wird von 0 keV/cm über 15 keV/cm zurück zu 0 keV/cm durchgestimmt. Die schwarze Linie kennzeichnet das Spektrum des maximalen Feldes. Zwei Emittoren zeigen eine Blauverschiebung von etwa 6 meV, wohingegen der dritte nur leicht ins Rote schiebt (1 meV). b) Konturplot der PL-Spektren dreier SPEs auf einem (110)-Piezo. Zwei der Emittoren schieben sehr stark (bis zu 18 meV) zu niedrigeren Energien, wobei der dritte nur leicht zu höheren schiebt (1 meV). c) FEM-Simulationen der Änderung des Spannungsfeldes bei 30 keV/cm relativ zur Monolage ohne Feld für einen (110)-Piezo. Aufgrund der ausgeprägten Anisotropie der Konfiguration bilden sich asymmetrische Spannungen aus. Der rechte Ausschnitt stellt die Faltkante unter einem 45° Winkel mit den Punkten A und B dar d) Entwicklung der Verspannung in Abhängigkeit vom angelegten E-Feld für die in c) benannten Punkte zeigt wiederum ein lineares Verhalten.

A.6 Simulation des elektrischen Feldes einer frei hängenden Membran

Hier werden zu Kapitel 8 ergänzende Simulationen des verwendeten zirkularen Bragg-Gitters aufgeführt, die von unserem Kooperationspartner⁴ angefertigt wurden. Für die Berechnung wird ein Dipol (726 nm) im Zentrum des CBGs platziert und das resultierende elektrische Feld betrachtet. Der Betrag und die einzelnen Komponenten sind in Abb. A.5 nacheinander dargestellt. Das Feld ist immer am stärksten auf das Zentrum beschränkt.

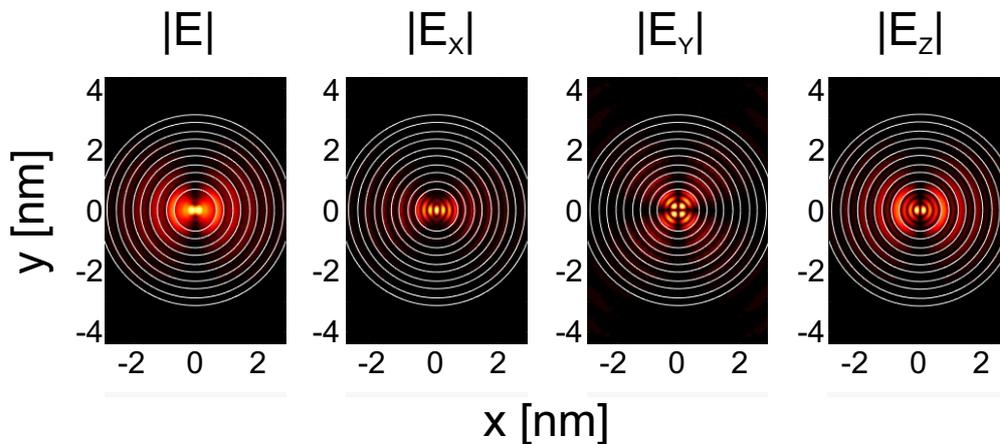


Abbildung A.5: Vergleich des Betrags und der einzelnen Komponenten des elektrischen Feldes eines Dipols, der sich im Zentrum eines CBGs befindet.

⁴Dr. Marcelo Davanço, National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, USA

A.7 Auswertung der freien Emission einer WSe₂-Monolage auf einem zirkularen Bragg-Gitter

In Kapitel 8 wird eine WSe₂-Monolage untersucht, die auf ein zirkulares Bragg-Gitter transferiert wurde. Zur Untersuchung des Einflusses der Kavität auf die Emission der Monolage werden die Spektren im Zentrum und am Rand des CBGs in Abb. A.6 mittels mehrerer Gauß-Anpassungen charakterisiert. Grundsätzlich lassen sich die gleichen Signale des Trions X- und der defektbedingten Exzitonen P0-4 ermitteln. Die Emissionen im Bereich der Kavitätsmode um 730 nm werden im Zentrum verstärkt und gewinnen relativ zum Rest an Intensität.

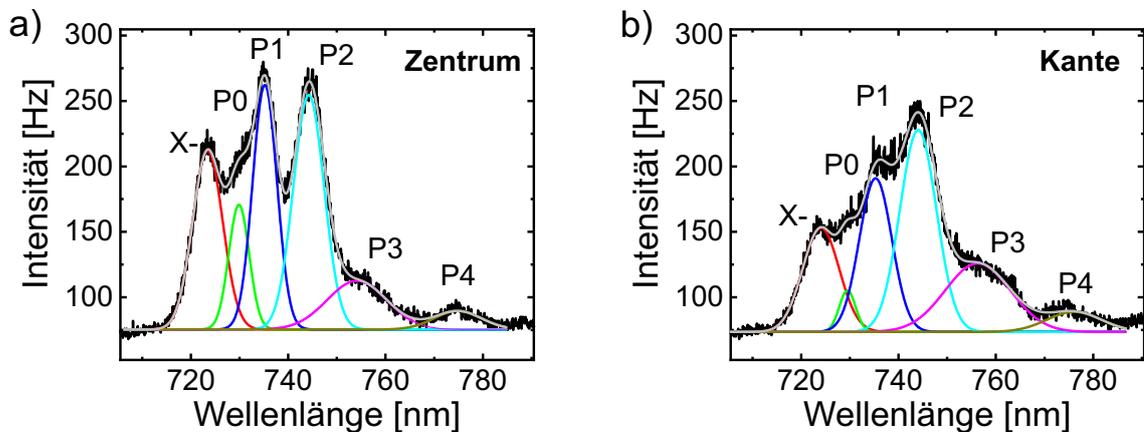


Abbildung A.6: a) und b) Vergleich der Emission einer WSe₂-Monolage im Zentrum und an der Kante eines zirkularen Bragg-Gitters. Die einzelnen Emissionen lassen sich aufgrund der ausgeprägten, inhomogenen Verbreiterung mit Gauß-Funktionen anpassen und zeigen im Bereich der Kavität (um 730 nm) eine Zunahme der Intensität.

A.8 Simulierte Abstrahlcharakteristik eines zirkularen Bragg-Gitters für verschiedene Dipolpositionen

Die Kopplung eines Dipols an ein zirkulares Bragg-Gitter hängt stark von seiner Position und seinem Abstand zur Membranoberfläche ab. Demgegenüber hat die Positionierung eines Nanotürmchens (NT) im Zentrum des CBGs in Abb. A.7 nur minimalen Einfluss auf das Fernfeld (a- oder die Feldverteilung der Intensität (d-f)). Dargestellt werden drei Szenarien: 1) Ein Dipol im Zentrum eines CBGs ohne NT, 2) ein Dipol, der 25 nm parallel zu seiner Abstrahlrichtung vom Zentrum verschoben

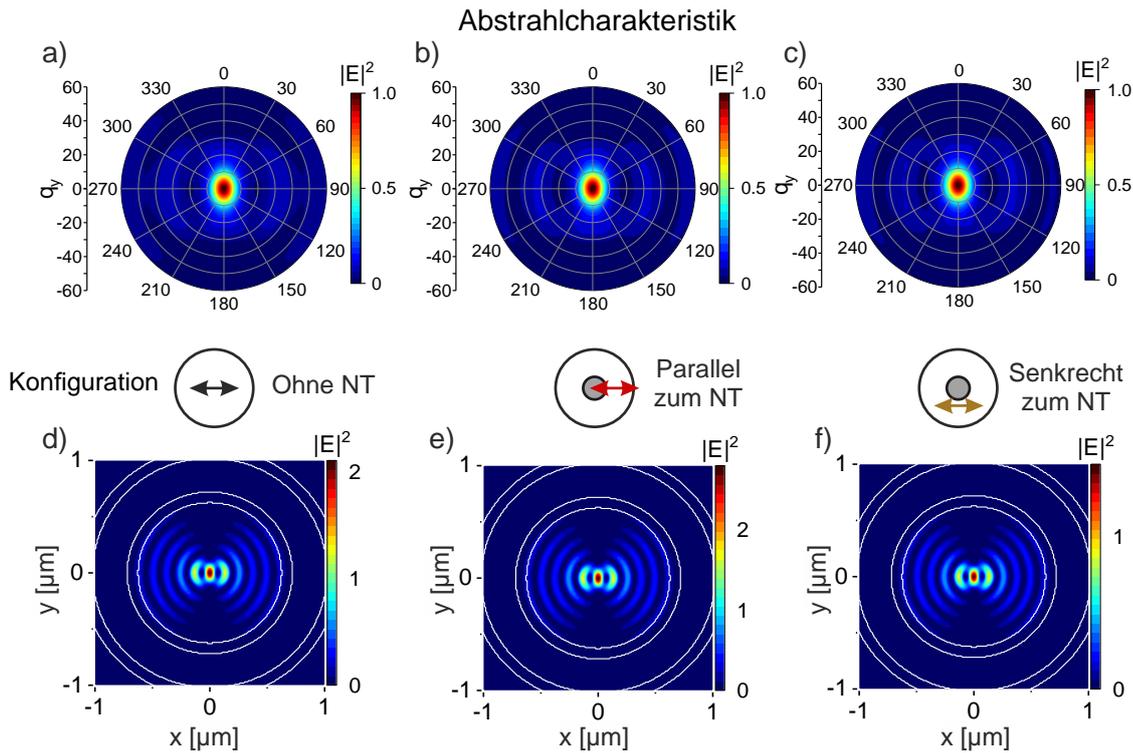


Abbildung A.7: FDTD-Simulationen eines Dipols im Zentrum eines CBGS für drei verschiedene Konfigurationen: 1) Ein Dipol im Zentrum des CBGs ohne Nanotürmchen (NT). 2) Ein Dipol, der um 25 nm parallel zu seiner Abstrahlrichtung vom Zentrum verschoben ist. 3) Ein Dipol, der um 25 nm senkrecht zu seiner Abstrahlrichtung vom Zentrum verschoben ist. a) - Fernfelder für die drei Konfigurationen. d) - f) Feldverteilungen in der Draufsicht in den drei Konfigurationen. Es ist kein signifikanter Einfluss des 50 nm hohen NTs erkennbar.

ist und 3) ein Dipol, der 25 nm senkrecht zu seiner Abstrahlrichtung vom Zentrum verschoben ist. Der NT selbst ist 50 nm hoch und besitzt einen Basisradius von 20 nm. Die Nanostruktur führt als nicht-resonanter Streuer zu keiner Veränderung des Fernfelds oder der Feldverteilung.

A.9 Simulation der Reflektivität eines zirkularen Bragg-Gitters

Die Modenbestimmung eines zirkularen Bragg-Gitters ist unter anderem durch Reflexionsmessung möglich. Durch die Abnahme der Reflexion gegenüber einer Referenzmessung lassen sich Rückschlüsse auf die Moden ziehen. In Abb. A.8 sind die simulierten

Reflektivitäten für drei CBGs mit unterschiedlichen inneren Radien (780 nm, 800 nm, 820 nm) dargestellt, wie sie in Kap. 9 benutzt werden. Die Simulationen stammen von unserem Kooperationspartner⁵. Die berechnete Position des Reflektivitätseinbruchs

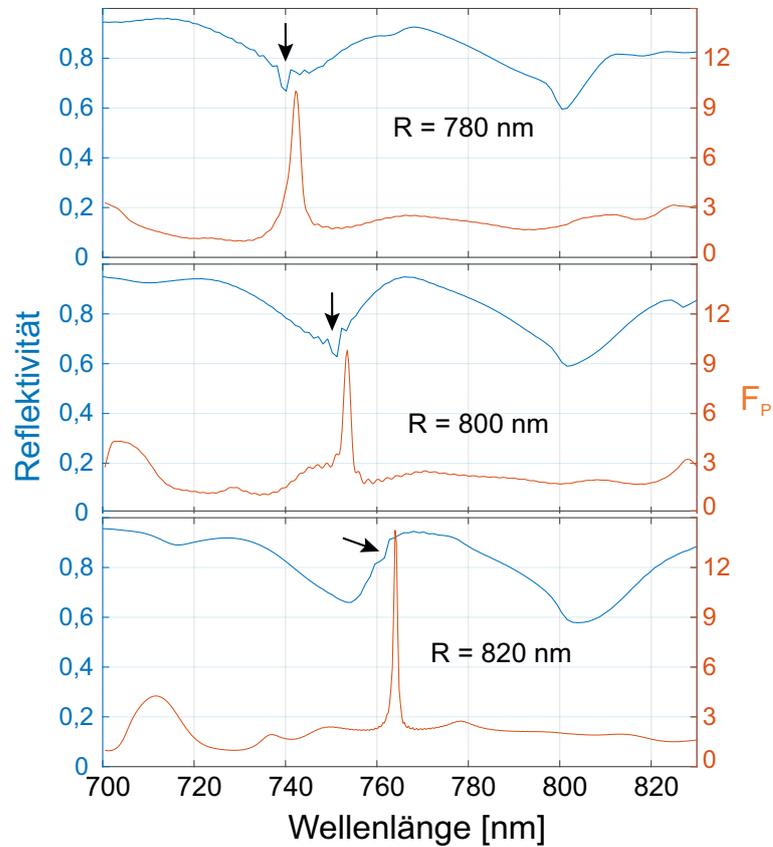


Abbildung A.8: Simulation der Reflektivität (blau) und des Purcell-Faktors F_P (orange) eines CBGs für die inneren Radien 780 nm, 800 nm und 820 nm. Die Reflexion besitzt Fano-Resonanzen (Pfeile) an den Positionen der Moden. Zudem zeigt sich eine Rotverschiebung mit zunehmendem Radius.

ist ein guter Indikator für die zugehörige Mode, die sich als Fano-Resonanz (Pfeile) widerspiegelt. Die Moden selbst zeigen eine Rotverschiebung mit zunehmendem Radius und besitzen Purcell-Faktoren F_P von über 10.

⁵Dr. Marcelo Davanço, National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, USA

A.10 Leistungsserien von Quantenemittern auf einem zirkularen Bragg-Gitter

Die Quantenemitter in einer WSe₂-Monolage lassen sich sehr gut als Zwei-Niveau-System beschreiben. Als solches zeigen sie, wie in Abb. A.9 dargestellt, eine lineare Abhängigkeit (Steigung von ungefähr 1) von der Anregungsleistung. Die Emittter 1-3 stammen von Stellen auf einem CBG, während Emitter 4 neben einem CBG liegt. Durch die Kavität erfahren Erstere im Vergleich zu Emitter 4 eine Zunahme ihrer Intensität, die auch erst später eine Sättigung zeigt.

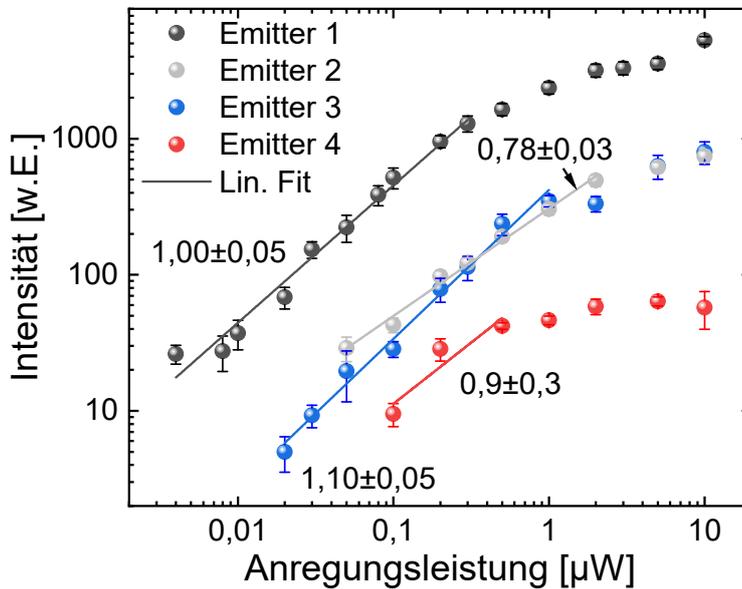


Abbildung A.9: Leistungsserie von vier unterschiedlichen Emitttern: Emitter 1-3 koppeln an ein CBG, wohingegen Emitter 4 neben einem liegt. Alle zeigen eine anfänglich lineare Abhängigkeit (Steigung ≈ 1) von der Anregungsleistung. Allerdings zeigen die ersten eine wesentlich höhere Intensität, die zudem auch erst später eine Sättigung aufweist.

Literaturverzeichnis

- [Abi16] I. Abid, A. Bohloul, S. Najmaei, C. Avendano, H.-L. Liu, R. P echou, A. Mlayah und J. Lou, *Resonant surface plasmon-exciton interaction in hybrid MoSe₂@Au nanostructures*, *Nanoscale* **8**(15), S. 8151 (2016).
- [Abr86] I. Abram, R. K. Raj, J. L. Oudar und G. Dolique, *Direct observation of the second-order coherence of parametrically generated light*, *Physical Review Letters* **57**(20), S. 2516 (1986).
- [Ada85] S. Adachi, *GaAs, AlAs, and Al_xGa_{1-x}As: Material parameters for use in research and device applications*, *Journal of Applied Physics* **58**(3), S. R1 (1985).
- [Aki07] A. V. Akimov, A. Mukherjee, C. L. Yu, D. E. Chang, A. S. Zibrov, P. R. Hemmer, H. Park und M. D. Lukin, *Generation of single optical plasmons in metallic nanowires coupled to quantum dots*, *Nature* **450**(7168), S. 402 (2007).
- [Ale19] E. M. Alexeev, D. A. Ruiz-Tijerina, M. Danovich, M. J. Hamer, D. J. Terry, P. K. Nayak, S. Ahn, S. Pak, J. Lee, J. I. Sohn, M. R. Molas, M. Koperski, K. Watanabe, T. Taniguchi, K. S. Novoselov, R. V. Gorbachev, H. S. Shin, V. I. Fal'ko, A. I. Tartakovskii, V. I. Fal'ko und A. I. Tartakovskii, *Resonantly hybridized excitons in moir e superlattices in van der Waals heterostructures*, *Nature* **567**(7746), S. 81 (2019).
- [Ama15] M. Amani, D.-H. Lien, D. Kiriya, J. Xiao, A. Azcatl, J. Noh, S. R. Madhvapathy, R. Addou, S. KC, M. Dubey, K. Cho, R. M. Wallace, S.-C. Lee, J.-H. He, J. W. Ager, X. Zhang, E. Yablonovitch und A. Javey, *Near-unity photoluminescence quantum yield in MoS₂*, *Science* **350**(6264), S. 1065 (2015).
- [And06] N. Anderson, A. Bouhelier und L. Novotny, *Near-field photonics: Tip-enhanced microscopy and spectroscopy on the nanoscale*, *Journal of Optics A: Pure and Applied Optics* **8**(4) (2006).

- [And15] A. Andrae und T. Edler, *On Global Electricity Usage of Communication Technology: Trends to 2030*, Challenges **6**(1), S. 117 (2015).
- [Ang06] P. Anger, P. Bharadwaj und L. Novotny, *Enhancement and Quenching of Single-Molecule Fluorescence*, Physical Review Letters **96**(11), S. 113002 (2006).
- [Ank08] J. N. Anker, W. P. Hall, O. Lyandres, N. C. Shah, J. Zhao und R. P. Van Duyne, *Biosensing with plasmonic nanosensors*, Nature Materials **7**(6), S. 442 (2008).
- [Aro16] A. Arora, R. Schmidt, R. Schneider, M. R. Molas, I. Breslavetz, M. Potemski und R. Bratschitsch, *Valley Zeeman Splitting and Valley Polarization of Neutral and Charged Excitons in Monolayer MoTe₂ at High Magnetic Fields*, Nano Letters S. acs.nanolett.6b00748 (2016).
- [Ash76] N. W. Ashcroft und N. D. Mermin, *Solid state physics*, NY: Brooks Cole (1976).
- [Ate12] S. Ates, L. Sapienza, M. Davanco, A. Badolato und K. Srinivasan, *Bright single-photon emission from a quantum dot in a circular bragg grating microcavity*, IEEE Journal on Selected Topics in Quantum Electronics **18**(6), S. 1711 (2012).
- [Aya18] S. Ayari, A. Smiri, A. Hichri, S. Jaziri und T. Amand, *Radiative lifetime of localized excitons in transition-metal dichalcogenides*, Physical Review B **98**(20), S. 205430 (2018).
- [Bal08] G. Balasubramanian, I. Y. Chan, R. Kolesov, M. Al-Hmoud, J. Tisler, C. Shin, C. Kim, A. Wojcik, P. R. Hemmer, A. Krueger, T. Hanke, A. Leitenstorfer, R. Bratschitsch, F. Jelezko und J. Wrachtrup, *Nanoscale imaging magnetometry with diamond spins under ambient conditions*, Nature **455**(7213), S. 648 (2008).
- [Bar08] E. S. Barnard, J. S. White, A. Chandran und M. L. Brongersma, *Spectral properties of plasmonic resonator antennas*, Optics Express **16**(21), S. 16529 (2008).

- [Bar18] M. Barbone, A. R. P. Montblanch, D. M. Kara, C. Palacios-Berraquero, A. R. Cadore, D. De Fazio, B. Pingault, E. Mostaani, H. Li, B. Chen, K. Watanabe, T. Taniguchi, S. Tongay, G. Wang, A. C. Ferrari und M. Atatüre, *Charge-tunable biexciton complexes in monolayer WSe₂*, Nature Communications **9**(1) (2018).
- [Bau01] C. Bauer, H. Giessen, B. Schnabel, E.-B. Kley, C. Schmitt, U. Scherf und R. F. Mahrt, *A Surface-Emitting Circular Grating Polymer Laser*, Advanced Materials **13**(15), S. 1161 (2001).
- [Bec01] C. Becher, A. Kiraz, P. Michler, A. Imamoglu, W. Schoenfeld, P. Petroff, L. Zhang und E. Hu, *Nonclassical radiation from a single self-assembled InAs quantum dot*, Physical Review B **63**(12), S. 1 (2001).
- [Ben84] C. H. Bennett und G. Brassard, *Quantum cryptography: Public key distribution and coin tossing* (1984).
- [Ber11] S. Bertolazzi, J. Brivio und A. Kis, *Stretching and breaking of ultrathin MoS₂*, ACS Nano **5**(12), S. 9703 (2011).
- [Ber13] T. C. Berkelbach, M. S. Hybertsen und D. R. Reichman, *Theory of neutral and charged excitons in monolayer transition metal dichalcogenides*, Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics **88**(4), S. 1 (2013).
- [Ber14] G. Berghäuser und E. Malic, *Analytical approach to excitonic properties of MoS₂*, Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics **89**(12), S. 1 (2014).
- [Ber15] T. C. Berkelbach, M. S. Hybertsen und D. R. Reichman, *Bright and dark singlet excitons via linear and two-photon spectroscopy in monolayer transition-metal dichalcogenides*, Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics **92**(8), S. 1 (2015).
- [Ber18] T. C. Berkelbach und D. R. Reichman, *Optical and Excitonic Properties of Atomically Thin Transition-Metal Dichalcogenides* (2018).
- [Bha07] P. Bharadwaj und L. Novotny, *Spectral dependence of single molecule fluorescence enhancement*, Optics Express **15**(21), S. 14266 (2007).

- [Bha09] P. Bharadwaj, B. Deutsch und L. Novotny, *Optical Antennas*, Advances in Optics and Photonics **1**(3), S. 438 (2009).
- [Bia12] P. Biagioni, J. S. Huang und B. Hecht, *Nanoantennas for visible and infrared radiation*, Reports on Progress in Physics **75**(2) (2012).
- [Bim99] D. Bimberg, M. Grundmann und N. N. Ledentsov, *Quantum Dot Heterostructures* (1999).
- [Boz16] S. I. Bozhevolnyi und J. B. Khurgin, *Fundamental limitations in spontaneous emission rate of single-photon sources*, Optica **3**(12), S. 1418 (2016).
- [Boz17] S. I. Bozhevolnyi und J. B. Khurgin, *The case for quantum plasmonics*, Nature Photonics **11**(7), S. 398 (2017).
- [Bra16a] A. Branny, S. Kumar, R. Proux und B. D. Gerardot, *Deterministic strain-induced arrays of quantum emitters in a two-dimensional semiconductor*, Nature Communications **8**(May), S. 1 (2016).
- [Bra16b] A. Branny, G. Wang, S. Kumar, C. Robert, B. Lassagne, X. Marie, B. D. Gerardot und B. Urbaszek, *Discrete quantum dot like emitters in monolayer MoSe₂: Spatial mapping, magneto-optics, and charge tuning*, Applied Physics Letters **108**(14), S. 142101 (2016).
- [Bro54] R. H. Brown und R. Q. Twiss, *LXXIV. A new type of interferometer for use in radio astronomy*, The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science **45**(366), S. 663 (1954).
- [But15] S. Butun, S. Tongay und K. Aydin, *Enhanced Light Emission from Large-Area Monolayer MoS₂ Using Plasmonic Nanodisc Arrays*, Nano Letters **15**(4), S. 2700 (2015).
- [Cad17] F. Cadiz, E. Courtade, C. Robert, G. Wang, Y. Shen, H. Cai, T. Taniguchi, K. Watanabe, H. Carrere, D. Lagarde, M. Manca, T. Amand, P. Renucci, S. Tongay, X. Marie und B. Urbaszek, *Excitonic linewidth approaching the homogeneous limit in MoS₂-based van der Waals heterostructures*, Physical Review X **7**(2), S. 1 (2017).

- [Cai17] T. Cai, S. Dutta, S. Aghaeimeibodi, Z. Yang, S. Nah, J. T. Fourkas und E. Waks, *Coupling Emission from Single Localized Defects in Two-Dimensional Semiconductor to Surface Plasmon Polaritons*, Nano Letters **17**(11), S. 6564 (2017).
- [Cai18] T. Cai, J.-h. Kim, Z. Yang, S. Dutta, S. Aghaeimeibodi und E. Waks, *Radiative Enhancement of Single Quantum Emitters in WSe₂ Monolayers Using Site-Controlled Metallic Nanopillars*, ACS Photonics **5**(9), S. 3466 (2018).
- [Cas09] A. H. Castro Neto, F. Guinea, N. M. R. Peres, K. S. Novoselov und A. K. Geim, *The electronic properties of graphene*, Reviews of Modern Physics **81**(1), S. 109 (2009).
- [Ceb14] F. Ceballos, M. Z. Bellus, H.-Y. Chiu und H. Zhao, *Ultrafast Charge Separation and Indirect Exciton Formation in a MoS₂-MoSe₂ van der Waals Heterostructure*, ACS Nano **8**(12), S. 12717 (2014).
- [CG14] A. Castellanos-Gomez, M. Buscema, R. Molenaar, V. Singh, L. Janssen, H. S. J. van der Zant und G. a. Steele, *Deterministic transfer of two-dimensional materials by all-dry viscoelastic stamping*, 2D Materials **1**(1), S. 011002 (2014).
- [Cha06] W. H. Chang, W. Y. Chen, H. S. Chang, T. P. Hsieh, J. I. Chyi und T. M. Hsu, *Efficient single-photon sources based on low-density quantum dots in photonic-crystal nanocavities*, Physical Review Letters **96**(11), S. 3 (2006).
- [Cha07] D. E. Chang, A. S. Sørensen, E. A. Demler und M. D. Lukin, *A single-photon transistor using nanoscale surface plasmons*, Nature Physics **3**(11), S. 807 (2007).
- [Cha14] Y.-H. Chang, W. Zhang, Y. Zhu, Y. Han, J. Pu, J.-K. Chang, W.-T. Hsu, J.-K. Huang, C.-L. Hsu, M.-H. Chiu, T. Takenobu, H. Li, C.-I. Wu, W.-H. Chang, A. T. S. Wee und L.-J. Li, *Monolayer MoSe₂ Grown by Chemical Vapor Deposition for Fast Photodetection*, ACS Nano **8**(8), S. 8582 (2014).
- [Cha15] C. Chakraborty, L. Kinnischtzke, K. M. Goodfellow, R. Beams und a. N. Vamivakas, *Voltage-controlled quantum light from an atomically thin semiconductor*, Nature Nanotechnology **10**(6), S. 507 (2015).

- [Cha16] C. Chakraborty, K. M. Goodfellow und A. Nick Vamivakas, *Localized emission from defects in MoSe₂ layers*, *Optical Materials Express* **6**(6), S. 2081 (2016).
- [Cha18] J. Chaste, A. Missaoui, S. Huang, H. Henck, Z. Ben Aziza, L. Ferlazzo, C. Naylor, A. Balan, A. T. C. Johnson, R. Braive und A. Ouerghi, *Intrinsic Properties of Suspended MoS₂ on SiO₂/Si Pillar Arrays for Nanomechanics and Optics*, *ACS Nano* **12**(4), S. 3235 (2018).
- [Cha20] R. Chaudhary, V. Raghunathan und K. Majumdar, *Origin of selective enhancement of sharp defect emission lines in monolayer WSe₂ on rough metal substrate*, *Journal of Applied Physics* **127**(7) (2020).
- [Che10] Y. Chen, P. Lodahl und A. F. Koenderink, *Dynamically reconfigurable directionality of plasmon-based single photon sources*, *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics* **82**(8), S. 1 (2010).
- [Che14] A. Chernikov, T. C. Berkelbach, H. M. Hill, A. Rigosi, Y. Li, O. B. Aslan, D. R. Reichman, M. S. Hybertsen und T. F. Heinz, *Exciton binding energy and nonhydrogenic Rydberg series in monolayer WS₂*, *Physical Review Letters* **113**(7), S. 076802 (2014).
- [Che15] A. Chernikov, A. M. van der Zande, H. M. Hill, A. F. Rigosi, A. Velauthapillai, J. Hone und T. F. Heinz, *Electrical Tuning of Exciton Binding Energies in Monolayer WS₂*, *Physical Review Letters* **115**(12), S. 126802 (2015).
- [Che17a] H. Chen, S. Nanz, A. Abass, J. Yan, T. Gao, D.-Y. Choi, Y. S. Kivshar, C. Rockstuhl und D. N. Neshev, *Enhanced Directional Emission from Monolayer WSe₂ Integrated onto a Multiresonant Silicon-Based Photonic Structure*, *ACS Photonics* S. acsphotronics.7b00550 (2017).
- [Che17b] F. Cheng, A. D. Johnson, Y. Tsai, P. H. Su, S. Hu, J. G. Ekerdt und C. K. Shih, *Enhanced Photoluminescence of Monolayer WS₂ on Ag Films and Nanowire-WS₂-Film Composites*, *ACS Photonics* **4**(6), S. 1421 (2017).
- [Chh13] M. Chhowalla, H. S. Shin, G. Eda, L. J. Li, K. P. Loh und H. Zhang, *The chemistry of two-dimensional layered transition metal dichalcogenide nanosheets*, *Nature Chemistry* **5**(4), S. 263 (2013).

- [Chi19] L. Chirolli, E. Prada, F. Guinea, R. Roldán und P. San-Jose, *Strain-induced bound states in transition-metal dichalcogenide bubbles*, 2D Materials **6**(2), S. 025010 (2019).
- [Col12] L. A. Coldren, S. W. Corzine und M. L. Mašanović, *Diode Lasers and Photonic Integrated Circuits*, 2012, John Wiley & Sons, Inc., Hoboken, NJ, USA (2012).
- [Cro03] K. B. Crozier, A. Sundaramurthy, G. S. Kino und C. F. Quate, *Optical antennas: Resonators for local field enhancement*, Journal of Applied Physics **94**(7), S. 4632 (2003).
- [Cui15] X. Cui, G. H. Lee, Y. D. Kim, G. Arefe, P. Y. Huang, C. H. Lee, D. A. Chenet, X. Zhang, L. Wang, F. Ye, F. Pizzocchero, B. S. Jessen, K. Watanabe, T. Taniguchi, D. A. Muller, T. Low, P. Kim und J. Hone, *Multi-terminal transport measurements of MoS₂ using a van der Waals heterostructure device platform*, Nature Nanotechnology **10**(6), S. 534 (2015).
- [Dav11] M. Davanço, M. T. Rakher, D. Schuh, A. Badolato und K. Srinivasan, *A circular dielectric grating for vertical extraction of single quantum dot emission*, Applied Physics Letters **99**(4), S. 1 (2011).
- [De 11] I. De Leon und P. Berini, *Spontaneous emission in long-range surface plasmon-polariton amplifiers*, Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics **83**(8), S. 8 (2011).
- [De 12] N. P. De Leon, B. J. Shields, C. L. Yu, D. E. Englund, A. V. Akimov, M. D. Lukin und H. Park, *Tailoring light-matter interaction with a nanoscale plasmon resonator*, Physical Review Letters **108**(22), S. 1 (2012).
- [Dea10] C. R. Dean, A. F. Young, I. Meric, C. Lee, L. Wang, S. Sorgenfrei, K. Watanabe, T. Taniguchi, P. Kim, K. L. Shepard und J. Hone, *Boron nitride substrates for high-quality graphene electronics*, Nature Nanotechnology **5**(10), S. 722 (2010).
- [Des14] S. B. Desai, G. Seol, J. S. Kang, H. Fang, C. Battaglia, R. Kapadia, J. W. Ager, J. Guo und A. Javey, *Strain-Induced Indirect to Direct Bandgap Transition in Multilayer WSe₂*, Nano Letters **14**(8), S. 4592 (2014).

- [Din16] X. Ding, Y. He, Z.-C. Duan, N. Gregersen, M.-C. Chen, S. Unsleber, S. Maier, C. Schneider, M. Kamp, S. Höfling, C.-Y. Lu und J.-W. Pan, *On-Demand Single Photons with High Extraction Efficiency and Near-Unity Indistinguishability from a Resonantly Driven Quantum Dot in a Micropillar*, Physical Review Letters **116**(2), S. 20401 (2016).
- [Dre56] G. Dresselhaus, *Effective mass approximation for excitons*, Journal of Physics and Chemistry of Solids **1**(1-2), S. 14 (1956).
- [Dul02] E. Dulkeith, A. C. Morteani, T. Niedereichholz, T. A. Klar, J. Feldmann, S. A. Levi, F. C. J. M. van Veggel, D. N. Reinhoudt, M. Möller und D. I. Gittins, *Fluorescence Quenching of Dye Molecules near Gold Nanoparticles: Radiative and Nonradiative Effects*, Physical Review Letters **89**(20), S. 12 (2002).
- [Duo18] N. M. H. Duong, Z. Q. Xu, M. Kianinia, R. Su, Z. Liu, S. Kim, C. Bradac, T. T. Tran, Y. Wan, L. J. Li, A. Solntsev, J. Liu und I. Aharonovich, *Enhanced Emission from WSe₂ Monolayers Coupled to Circular Bragg Gratings*, ACS Photonics **5**(10), S. 3950 (2018).
- [Egg15] M. S. Eggleston, K. Messer, L. Zhang, E. Yablonovitch und M. C. Wu, *Optical antenna enhanced spontaneous emission*, Proceedings of the National Academy of Sciences **112**(6), S. 1704 (2015).
- [Eng05] D. Englund, D. Fattal, E. Waks, G. Solomon, B. Zhang, T. Nakaoka, Y. Arakawa, Y. Yamamoto und J. Vučković, *Controlling the Spontaneous Emission Rate of Single Quantum Dots in a Two-Dimensional Photonic Crystal*, Physical Review Letters **95**(1), S. 013904 (2005).
- [Epp18] A. Epping, L. Banszerus, J. Güttinger, L. Krückeberg, K. Watanabe, T. Taniguchi, F. Hassler, B. Beschoten und C. Stampfer, *Quantum transport through MoS₂ constrictions defined by photodoping*, Journal of Physics Condensed Matter **30**(20) (2018).
- [Fla18] L. C. Flatten, L. Weng, A. Branny, S. Johnson, P. R. Dolan, A. A. P. Trichet, B. D. Gerardot und J. M. Smith, *Microcavity enhanced single photon emission from two-dimensional WSe₂*, Applied Physics Letters **112**(19) (2018).
- [Fra12] R. Frank, *Coherent control of Floquet-mode dressed plasmon polaritons*, Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics **85**(19), S. 1 (2012).

- [Fri66] R. F. Frindt, *Single Crystals of MoS₂ Several Molecular Layers Thick*, Journal of Applied Physics **37**(4), S. 1928 (1966).
- [Gal08] P. Gallo, M. Felici, B. Dwir, K. Atlasov, K. F. Karlsson, A. Rudra, A. Mohan, G. Biasiol, L. Sorba und E. Kapon, *Integration of site-controlled pyramidal quantum dots and photonic crystal membrane cavities*, Applied Physics Letters **263101**(2008), S. 1 (2008).
- [Gan12] C. H. Gan, J. P. Hugonin und P. Lalanne, *Proposal for compact solid-state III-V single-plasmon sources*, Physical Review X **2**(2), S. 1 (2012).
- [Gar81] S. Garoff, D. A. Weitz, T. J. Gramila und C. D. Hanson, *Optical absorption resonances of dye-coated silver-island films*, Optics Letters **6**(5), S. 245 (1981).
- [Gau02] G. Gautschi, *Piezoelectric Sensors*, in *Piezoelectric Sensorics*, S. 73–91, Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg (2002), URL http://link.springer.com/10.1007/978-3-662-04732-3_5, /doi.org/10.1007/978-3-662-04732-3_5.
- [Gau09] L. Gaul und J. Becker, *Model-based piezoelectric hysteresis and creep compensation for highly-dynamic feedforward rest-to-rest motion control of piezoelectrically actuated flexible structures*, International Journal of Engineering Science **47**(11-12), S. 1193 (2009).
- [Gia11] V. Giannini, A. I. Fernández-Domínguez, S. C. Heck und S. A. Maier, *Plasmonic nanoantennas: Fundamentals and their use in controlling the radiative properties of nanoemitters*, Chemical Reviews **111**(6), S. 3888 (2011).
- [Gla80] A. M. Glass, P. F. Liao, J. G. Bergman und D. H. Olson, *Interaction of metal particles with adsorbed dye molecules: absorption and luminescence*, Optics Letters **5**(9), S. 368 (1980).
- [Gon14] Y. Gong, J. Lin, X. Wang, G. Shi, S. Lei, Z. Lin, X. Zou, G. Ye, R. Vajtai, B. I. Yakobson, H. Terrones, M. Terrones, B. K. Tay, J. Lou, S. T. Pantelides, Z. Liu, W. Zhou und P. M. Ajayan, *Vertical and in-plane heterostructures from WS₂/MoS₂ monolayers*, Nat Mater **13**(12), S. 1135 (2014).
- [Gra10] D. K. Gramotnev und S. I. Bozhevolnyi, *Plasmonics beyond the diffraction limit*, Nature Photonics **4**(2), S. 83 (2010).

- [Gre07] J. L. Green und K. A., *Insulator Deposition II Technical Note*, In: FEI COMPANY **PN 19576-H** (2007).
- [Gro17a] G. Grosso, *2D materials: Valley polaritons*, Nature Photonics **11**(8), S. 455 (2017).
- [Gro17b] G. Grosso, H. Moon, B. Lienhard, S. Ali, D. K. Efetov, M. M. Furchi, P. Jarillo-Herrero, M. J. Ford, I. Aharonovich und D. Englund, *Tunable and high-purity room temperature single-photon emission from atomic defects in hexagonal boron nitride*, Nature Communications **8**(1), S. 705 (2017).
- [Hal15] S. Haldar, H. Vovusha, M. K. Yadav, O. Eriksson und B. Sanyal, *Systematic study of structural, electronic, and optical properties of atomic-scale defects in the two-dimensional transition metal dichalcogenides MX_2 ($M = Mo, W$; $X = S, Se, Te$)*, Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics **92**(23), S. 1 (2015).
- [Han15] A. T. Hanbicki, M. Currie, G. Kioseoglou, A. L. Friedman und B. T. Jonker, *Measurement of high exciton binding energy in the monolayer transition-metal dichalcogenides WS_2 and WSe_2* , Solid State Communications **203**, S. 16 (2015).
- [Har89] A. Hardy, D. F. Welch und W. Streifer, *Analysis of second-order gratings*, IEEE Journal of Quantum Electronics **25**(10), S. 2096 (1989).
- [Har11] M. Haridas, L. N. Tripathi und J. K. Basu, *Photoluminescence enhancement and quenching in metal-semiconductor quantum dot hybrid arrays*, Applied Physics Letters **98**(6), S. 1 (2011).
- [Har18] O. Hartwig, M. Kaniber, J. J. Finley, M. Prechtel, J. Cerne, G. Vest, M. Jürgensen und M. Blauth, *Coupling Single Photons from Discrete Quantum Emitters in WSe_2 to Lithographically Defined Plasmonic Slot Waveguides*, Nano Letters **18**(11), S. 6812 (2018).
- [He14] K. He, N. Kumar, L. Zhao, Z. Wang, K. F. Mak, H. Zhao und J. Shan, *Tightly bound excitons in monolayer WSe_2* , Physical Review Letters **113**(2), S. 1 (2014).

- [He15] Y.-M. He, G. Clark, J. R. Schaibley, Y.-M. He, M.-C. Chen, Y.-J. Wei, X. Ding, Q. Zhang, W. Yao, X. Xu, C.-Y. Lu und J.-W. Pan, *Single quantum emitters in monolayer semiconductors*, Nature Nanotechnology **10**(6), S. 497 (2015).
- [He16a] Y.-M. He, S. Höfling und C. Schneider, *Phonon induced line broadening and population of the dark exciton in a deeply trapped localized emitter in monolayer WSe₂*, Optics Express **24**(8), S. 8066 (2016).
- [He16b] Y.-M. He, O. Iff, N. Lundt, V. Baumann, M. Davanco, K. Srinivasan, S. Höfling und C. Schneider, *Cascaded emission of single photons from the biexciton in monolayered WSe₂*, Nature Communications **7**(1), S. 13409 (2016).
- [He16c] Z. He, W. Xu, Y. Zhou, X. Wang, Y. Sheng, Y. Rong, S. Guo, J. Zhang, J. M. Smith und J. H. Warner, *Biexciton Formation in Bilayer Tungsten Disulfide*, ACS Nano **10**(2), S. 2176 (2016).
- [He17] Y.-M. He, J. Liu, S. Maier, M. Emmerling, S. Gerhardt, M. Davanço, K. Srinivasan, C. Schneider und S. Höfling, *Deterministic implementation of a bright, on-demand single-photon source with near-unity indistinguishability via quantum dot imaging*, Optica **4**(7), S. 802 (2017).
- [Hes12] O. Hess, J. B. Pendry, S. A. Maier, R. F. Oulton, J. M. Hamm und K. L. Tsakmakidis, *Active nanoplasmonic metamaterials*, Nature Materials **11**(7), S. 573 (2012).
- [Hu18] Z. Hu, Z. Wu, C. Han, J. He, Z. Ni und W. Chen, *Two-dimensional transition metal dichalcogenides: interface and defect engineering*, Chemical Society Reviews **47**(9), S. 3100 (2018).
- [Hua16] J. Huang, T. B. Hoang und M. H. Mikkelsen, *Probing the origin of excitonic states in monolayer WSe₂*, Scientific Reports **6**(February), S. 1 (2016).
- [Hua17] H. Huang, R. Trotta, Y. Huo, T. Lettner, J. S. Wildmann, J. Martín-Sánchez, D. Huber, M. Reindl, J. Zhang, E. Zallo, O. G. Schmidt und A. Rastelli, *Electrically-Pumped Wavelength-Tunable GaAs Quantum Dots Interfaced with Rubidium Atoms*, ACS Photonics **4**(4), S. 868 (2017).

- [Hug18] J. T. Hugall, A. Singh und N. F. van Hulst, *Plasmonic Cavity Coupling*, ACS Photonics **5**(1), S. 43 (2018).
- [Iff17] O. Iff, Y.-M. He, N. Lundt, S. Stoll, V. Baumann, S. Höfling und C. Schneider, *Substrate engineering for high-quality emission of free and localized excitons from atomic monolayers in hybrid architectures*, Optica **4**(6), S. 669 (2017).
- [Iff18] O. Iff, N. Lundt, S. Betzold, L. N. Tripathi, M. Emmerling, S. Tongay, Y. J. Lee, S.-H. Kwon, S. Höfling und C. Schneider, *Deterministic coupling of quantum emitters in WSe₂ monolayers to plasmonic nanocavities*, Optics Express **26**(20), S. 25944 (2018).
- [Iff19] O. Iff, D. Tedeschi, J. Martín-Sánchez, M. Moczala-Dusanowska, S. Tongay, K. Yumigeta, J. Taboada-Gutiérrez, M. Savaresi, A. Rastelli, P. Alonso-González, S. Höfling, R. Trotta und C. Schneider, *Strain-Tunable Single Photon Sources in WSe₂ Monolayers*, Nano Letters **19**(10), S. 6931 (2019).
- [Iff21a] O. Iff, Q. Buchinger, M. Moczala-Dusanowska, M. Kamp, S. Betzold, M. Davanco, K. Srinivasan, S. Tongay, C. Antón-Solanas, S. Höfling und C. Schneider, *Purcell-Enhanced Single Photon Source Based on a Deterministically Placed WSe₂ Monolayer Quantum Dot in a Circular Bragg Grating Cavity*, Nano Letters **21**(11), S. 4715 (2021).
- [Iff21b] O. Iff, M. Davanco, S. Betzold, M. Moczala-Dusanowska, M. Wurdack, M. Emmerling, S. Höfling und C. Schneider, *Hyperspectral study of the coupling between trions in WSe₂ monolayers to a circular Bragg grating cavity*, Comptes Rendus. Physique **22**(S4), S. 1 (2021).
- [Isl16] J. O. Island, A. Kuc, E. H. Diependaal, R. Bratschitsch, H. S. J. van der Zant, T. Heine und A. Castellanos-Gomez, *Precise and reversible band gap tuning in single-layer MoSe₂ by uniaxial strain*, Nanoscale **8**(5), S. 2589 (2016).
- [Jam71] W. E. Jamison und S. L. Cosgrove, *Friction Characteristics of Transition-Metal Disulfides and Diselenides*, A S L E Transactions **14**(1), S. 62 (1971).
- [Jar16] D. Jariwala, T. J. Marks und M. C. Hersam, *Mixed-dimensional van der Waals heterostructures*, Nature Materials **16**(2), S. 170 (2016).

- [Jia18] J. Jiang, R. Pachter und S. Mou, *Tunability in the optical response of defective monolayer WSe₂ by computational analysis*, *Nanoscale* **10**(28), S. 13751 (2018).
- [Jin18] C. Jin, E. C. Regan, A. Yan, M. I. B. Utama, D. Wang, Y. Qin, S. Yang, Z. Zheng, K. Watanabe, T. Taniguchi, S. Tongay, A. Zettl und F. Wang, *Observation of Moiré Excitons in WSe₂/WS₂ Heterostructure Superlattices*, *Nature S.* 2–7 (2018).
- [Jon13] A. M. Jones, H. Yu, N. J. Ghimire, S. Wu, G. Aivazian, J. S. Ross, B. Zhao, J. Yan, D. G. Mandrus, D. Xiao, W. Yao und X. Xu, *Optical generation of excitonic valley coherence in monolayer WSe₂*, *Nature Nanotechnology* **8**(9), S. 634 (2013).
- [Kan13] J. Kang, J. Li, S.-s. Li, J.-b. Xia und L.-w. Wang, *Electronic Structural Moiré Pattern Effects on MoS₂/MoSe₂ 2D Heterostructures*, *Nano Letters* **13**(11), S. 5485 (2013).
- [Kel79] L. Keldysh, *Coulomb interaction in thin semiconductor and semimetal films*, *Soviet Journal of Experimental and Theoretical Physics Letters* **29**, S. 658 (1979).
- [Ker15] J. Kern, A. Trügler, I. Niehues, J. Ewering, R. Schmidt, R. Schneider, S. Najmaei, A. George, J. Zhang, J. Lou, U. Hohenester, S. Michaelis De Vasconcellos und R. Bratschitsch, *Nanoantenna-Enhanced Light-Matter Interaction in Atomically Thin WS₂*, *ACS Photonics* **2**(9), S. 1260 (2015).
- [Ker16] J. Kern, I. Niehues, P. Tonndorf, R. Schmidt, D. Wigger, R. Schneider, T. Stiehm, S. Michaelis de Vasconcellos, D. E. Reiter, T. Kuhn und R. Bratschitsch, *Nanoscale Positioning of Single-Photon Emitters in Atomically Thin WSe₂*, *Advanced Materials* S. 7101–7105 (2016).
- [Khu09] J. B. Khurgin und G. Sun, *Enhancement of optical properties of nanoscaled objects by metal nanoparticles*, *Journal of the Optical Society of America B* **26**(12), S. B83 (2009).
- [Kim99] J. Kim, O. Benson, H. Kan und Y. Yamamoto, *A single-photon turnstile device*, *Nature* **397**(6719), S. 500 (1999).

- [Kit13] C. Kittel, *Einführung in die Festkörperphysik - Charles Kittel - Google Books*, Oldenburg Verlag (2013).
- [Kle19] J. Klein, M. Lorke, M. Florian, F. Sigger, L. Sigl, S. Rey, J. Wierzbowski, J. Cerne, K. Müller, E. Mitterreiter, P. Zimmermann, T. Taniguchi, K. Watanabe, U. Wurstbauer, M. Kaniber, M. Knap, R. Schmidt, J. J. Finley und A. W. Holleitner, *Site-selectively generated photon emitters in monolayer MoS₂ via local helium ion irradiation*, Nature Communications **10**(1), S. 2755 (2019).
- [Koe09] A. F. Koenderink, *Plasmon nanoparticle array waveguides for single photon and single plasmon sources*, Nano Letters **9**(12), S. 4228 (2009).
- [Kok07] P. Kok, W. J. Munro, K. Nemoto, T. C. Ralph, J. P. Dowling und G. J. Milburn, *Linear optical quantum computing with photonic qubits*, Reviews of Modern Physics **79**(1), S. 135 (2007).
- [Kol09] R. Kolesov, B. Grotz, G. Balasubramanian, R. J. Stöhr, A. A. L. Nicolet, P. R. Hemmer, F. Jelezko und J. Wrachtrup, *Wave-particle duality of single surface plasmonpolaritons*, Nature Physics **5**(7), S. 470 (2009).
- [Kol11] P. Kolchin, R. F. Oulton und X. Zhang, *Nonlinear quantum optics in a waveguide: Distinct single photons strongly interacting at the single atom level*, Physical Review Letters **106**(11), S. 1 (2011).
- [Kol16] A. V. Kolobov und J. Tominaga, *Two-Dimensional Transition-Metal Dichalcogenides*, Band 239 von *Springer Series in Materials Science*, Springer International Publishing, Cham (2016).
- [Kon18] N. Kongsuwan, A. Demetriadou, R. Chikkaraddy, F. Benz, V. A. Turek, U. F. Keyser, J. J. Baumberg und O. Hess, *Suppressed Quenching and Strong-Coupling of Purcell-Enhanced Single-Molecule Emission in Plasmonic Nanocavities*, ACS Photonics **5**(1), S. 186 (2018).
- [Kop15] M. Koperski, K. Nogajewski, A. Arora, V. Cherkez, P. Mallet, J.-Y. Veullen, J. Marcus, P. Kossacki und M. Potemski, *Single photon emitters in exfoliated WSe₂ structures*, Nature Nanotechnology **10**(6), S. 503 (2015).

- [Kor14] A. Kormányos, V. Zólyomi, N. D. Drummond und G. Burkard, *Spin-orbit coupling, quantum dots, and qubits in monolayer transition metal dichalcogenides*, Physical Review X **4**(1), S. 1 (2014).
- [Koś13] K. Kośmider und J. Fernández-Rossier, *Electronic properties of the MoS₂-WS₂ heterojunction*, Physical Review B **87**(7), S. 075451 (2013).
- [Kra18] A. Krasnok, S. Lepeshov und A. Alú, *Nanophotonics with 2D transition metal dichalcogenides [Invited]*, Optics Express **26**(12), S. 15972 (2018).
- [Kre14] P. E. Kremer, A. C. Dada, P. Kumar, Y. Ma, S. Kumar, E. Clarke und B. D. Gerardot, *Strain-tunable quantum dot embedded in a nanowire antenna*, Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics **90**(20), S. 1 (2014).
- [Kum15] S. Kumar, A. Kaczmarczyk und B. D. Gerardot, *Strain-Induced Spatial and Spectral Isolation of Quantum Emitters in Mono- and Bilayer WSe₂*, Nano Letters **15**(11), S. 7567 (2015).
- [Kur00] C. Kurtsiefer, S. Mayer, P. Zarda und H. Weinfurter, *Stable solid-state source of single photons*, Physical Review Letters **85**(2), S. 290 (2000).
- [Kuź17] A. Kuźmierz, K. Chmielewski, O. Serebrennikova und J. Muszalski, *Selective etching of GaAs grown over AlAs etch-stop layer in buffered citric acid/H₂O₂ solution*, Materials Science in Semiconductor Processing **63**(January), S. 52 (2017).
- [Lal18] P. Lalanne, W. Yan, K. Vynck, C. Sauvan und J.-P. Hugonin, *Light Interaction with Photonic and Plasmonic Resonances*, Laser & Photonics Reviews **1700113**, S. 1700113 (2018).
- [Lat15] S. Latini, T. Olsen und K. S. Thygesen, *Excitons in van der Waals heterostructures: The important role of dielectric screening*, Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics **92**(24), S. 1 (2015).
- [Lee12] Y. H. Lee, X. Q. Zhang, W. Zhang, M. T. Chang, C. T. Lin, K. D. Chang, Y. C. Yu, J. T. W. Wang, C. S. Chang, L. J. Li und T. W. Lin, *Synthesis of large-area MoS₂ atomic layers with chemical vapor deposition*, Advanced Materials **24**(17), S. 2320 (2012).

- [Li07] T. Li und G. Galli, *Electronic Properties of MoS₂ Nanoparticles*, The Journal of Physical Chemistry C **111**(44), S. 16192 (2007).
- [Li13] H. Li, G. Lu, Y. Wang, Z. Yin, C. Cong, Q. He, L. Wang, F. Ding, T. Yu und H. Zhang, *Mechanical Exfoliation and Characterization of Single- and Few-Layer Nanosheets of WSe₂, TaS₂, and TaSe₂*, Small **9**(11), S. 1974 (2013).
- [Li15] J. Li, S. Chen, H. Yang, J. Li, P. Yu, H. Cheng, C. Gu, H. T. Chen und J. Tian, *Simultaneous control of light polarization and phase distributions using plasmonic metasurfaces*, Advanced Functional Materials **25**(5), S. 704 (2015).
- [Liu13] G. B. Liu, W. Y. Shan, Y. Yao, W. Yao und D. Xiao, *Three-band tight-binding model for monolayers of group-VIB transition metal dichalcogenides*, Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics **88**(8), S. 1 (2013).
- [Liu14] X. Liu, T. Galfsky, Z. Sun, F. Xia, E.-c. C. Lin, Y. H. Lee, S. Kéna-Cohen und V. M. Menon, *Strong light-matter coupling in two-dimensional atomic crystals*, arXiv preprint arXiv: ... **9**(1), S. 30 (2014).
- [Liu18] F. Liu, A. J. Brash, J. O'Hara, L. M. P. P. Martins, C. L. Phillips, R. J. Coles, B. Royall, E. Clarke, C. Bentham, N. Prtljaga, I. E. Itskevich, L. R. Wilson, M. S. Skolnick, A. M. Fox, J. O'Hara, L. M. P. P. Martins, C. L. Phillips, R. J. Coles, B. Royall, E. Clarke, C. Bentham, N. Prtljaga, I. E. Itskevich, L. R. Wilson, M. S. Skolnick und A. M. Fox, *High Purcell factor generation of indistinguishable on-chip single photons*, Nature Nanotechnology **13**(9), S. 835 (2018).
- [Liu19a] E. Liu, J. van Baren, Z. Lu, M. M. Altairy, T. Taniguchi, K. Watanabe, D. Smirnov und C. H. Lui, *Gate Tunable Dark Trions in Monolayer WSe₂*, Physical Review Letters **123**(2), S. 027401 (2019).
- [Liu19b] J. Liu, R. Su, Y. Wei, B. Yao, S. F. C. da Silva, Y. Yu, J. Iles-Smith, K. Srinivasan, A. Rastelli, J. Li und X. Wang, *A solid-state source of strongly entangled photon pairs with high brightness and indistinguishability*, Nature Nanotechnology **14**(6), S. 586 (2019).

- [Liu20] E. Liu, J. van Baren, C.-T. Liang, T. Taniguchi, K. Watanabe, N. M. Gabor, Y.-C. Chang und C. H. Lui, *Multipath Optical Recombination of Intervalley Dark Excitons and Trions in Monolayer WSe₂*, Physical Review Letters **124**(19), S. 196802 (2020).
- [Loh17] K. P. Loh, *Brightening the dark excitons*, Nature Nanotechnology **12**(9), S. 837 (2017).
- [Low96] M. Lowisch, M. Rabe, B. Stegemann, F. Henneberger, M. Grundmann, V. Türc̈k und D. Bimberg, *Zero-dimensional excitons in (Zn,Cd)Se quantum structures.*, Physical review. B, Condensed matter **54**(16), S. R11074 (1996).
- [Lu18] W.-C. Lu, *The impacts of information and communication technology, energy consumption, financial development, and economic growth on carbon dioxide emissions in 12 Asian countries*, Mitigation and Adaptation Strategies for Global Change **23**(8), S. 1351 (2018).
- [Lun16a] N. Lundt, S. Klem̈bt, E. Cherotchenko, S. Betzold, O. Iff, A. V. Nalitov, M. Klaas, C. P. Dietrich, A. V. Kavokin, S. Höffling und C. Schneider, *Room-temperature Tamm-plasmon exciton-polaritons with a WSe₂ monolayer*, Nature Communications **7**(1), S. 13328 (2016).
- [Lun16b] N. Lundt, A. Maryński, E. Cherotchenko, A. Pant, X. Fan, S. Tongay, G. Şek̈, A. V. Kavokin, S. Höffling und C. Schneider, *Monolayered MoSe₂: a candidate for room temperature polaritonics*, 2D Materials **4**(1), S. 015006 (2016).
- [Luo17] Y. Luo, E. D. Ahmadi, K. Shayan, Y. Ma, K. S. Mistry, C. Zhang, J. Hone, J. L. Blackburn und S. Strauf, *Purcell-enhanced quantum yield from carbon nanotube excitons coupled to plasmonic nanocavities*, Nature Communications **8**(1) (2017).
- [Luo18] Y. Luo, G. D. Shepard, J. V. Ardelean, D. A. Rhodes, B. Kim, K. Barnak, J. C. Hone und S. Strauf, *Deterministic coupling of site-controlled quantum emitters in monolayer WSe₂ to plasmonic nanocavities*, Nature Nanotechnology **13**(12), S. 1137 (2018).
- [Lv15] R. Lv, J. A. Robinson, R. E. Schaak, D. Sun, Y. Sun, T. E. Mallouk und M. Terrones, *Transition metal dichalcogenides and beyond: Synthesis, properties, and applications of single- and few-layer nanosheets*, Accounts of Chemical Research **48**(1), S. 56 (2015).

- [Ma13] R. M. Ma, R. F. Oulton, V. J. Sorger und X. Zhang, *Plasmon lasers: Coherent light source at molecular scales*, Laser and Photonics Reviews **7**(1), S. 1 (2013).
- [Mah10] O. Mahboub, S. C. Palacios, C. Genet, F. J. Garcia-Vidal, S. G. Rodrigo, L. Martin-Moreno und T. W. Ebbesen, *Optimization of bull's eye structures for transmission enhancement*, Optics Express **18**(11), S. 11292 (2010).
- [Mak10] K. Mak, C. Lee, J. Hone, J. Shan und T. Heinz, *Atomically Thin MoS₂: A New Direct-Gap Semiconductor*, Physical Review Letters **105**(13), S. 136805 (2010).
- [Mak12] K. F. Mak, K. He, J. Shan und T. F. Heinz, *Control of valley polarization in monolayer MoS₂ by optical helicity*, Nature Nanotechnology **7**(8), S. 494 (2012).
- [Mat17] M. Mattinen, T. Hatanpää, T. Sarnet, K. Mizohata, K. Meinander, P. J. King, L. Khriachtchev, J. Räisänen, M. Ritala und M. Leskelä, *Atomic Layer Deposition of Crystalline MoS₂ Thin Films: New Molybdenum Precursor for Low-Temperature Film Growth*, Advanced Materials Interfaces **4**(18) (2017).
- [Mic00] P. Michler, A. Imamoğlu, M. D. Mason, P. J. Carson, G. F. Strouse und S. K. Buratto, *Quantum correlation among photons from a single quantum dot at room temperature*, Nature **406**(6799), S. 968 (2000).
- [Mol19] M. R. Molas, A. O. Slobodeniuk, T. Kazimierczuk, K. Nogajewski, M. Bartos, P. Kapuściński, K. Oreszczuk, K. Watanabe, T. Taniguchi, C. Faugeras, P. Kossacki, D. M. Basko und M. Potemski, *Probing and Manipulating Valley Coherence of Dark Excitons in Monolayer WSe₂*, Physical Review Letters **123**(9), S. 1 (2019).
- [Moo15] G. Moody, C. Kavir Dass, K. Hao, C.-H. Chen, L.-J. Li, A. Singh, K. Tran, G. Clark, X. Xu, G. Berghäuser, E. Malic, A. Knorr und X. Li, *Intrinsic homogeneous linewidth and broadening mechanisms of excitons in monolayer transition metal dichalcogenides*, Nature Communications **6**(May), S. 8315 (2015).
- [Moo18] G. Moody, K. Tran, X. Lu, T. Autry, J. M. Fraser, R. P. Mirin, L. Yang, X. Li und K. L. Silverman, *Microsecond Valley Lifetime of Defect-Bound Excitons in Monolayer WSe₂*, Physical Review Letters **121**(5), S. 57403 (2018).

- [MS16] J. Martin-Sanchez, R. Trotta, G. Piredda, C. Schimpf, G. Trevisi, L. Seravalli, P. Frigeri, S. Stroj, T. Lettner, M. Reindl, J. S. Wildmann, J. Edlinger und A. Rastelli, *Reversible Control of In-Plane Elastic Stress Tensor in Nanomembranes*, *Advanced Optical Materials* **4**(5), S. 682 (2016).
- [MS18] J. Martin-Sanchez, R. Trotta, A. Mariscal, R. Serna, G. Piredda, S. Stroj, J. Edlinger, C. Schimpf, J. Aberl, T. Lettner, J. Wildmann, H. Huang, X. Yuan, D. Ziss, J. Stangl und A. Rastelli, *Strain-tuning of the optical properties of semiconductor nanomaterials by integration onto piezoelectric actuators*, *Semiconductor Science and Technology* **33**(1), S. 13001 (2018).
- [Muk17] B. Mukherjee, N. Kaushik, R. P. N. Tripathi, A. M. Joseph, P. K. Mohapatra, S. Dhar, B. P. Singh, G. V. P. Kumar, E. Simsek und S. Lodha, *Exciton Emission Intensity Modulation of Monolayer MoS₂ via Au Plasmon Coupling*, *Scientific Reports* **7**(January), S. 41175 (2017).
- [Mur72] R. B. Murray und A. D. Yoffe, *The band structures of some transition metal dichalcogenides: band structures of the titanium dichalcogenides*, *Journal of Physics C: Solid State Physics* **5**(21), S. 3038 (1972).
- [Nie18] I. Niehues, R. Schmidt, M. Drüppel, P. Marauhn, D. Christiansen, M. Selig, G. Berghäuser, D. Wigger, R. Schneider, L. Braasch, R. Koch, A. Castellanos-Gomez, T. Kuhn, A. Knorr, E. Malic, M. Rohlfing, S. Michaelis de Vasconcellos und R. Bratschitsch, *Strain Control of Exciton-Phonon Coupling in Atomically Thin Semiconductors*, *Nano Letters* **18**(3), S. 1751 (2018).
- [Noo16] Y. J. Noori, Y. Cao, J. Roberts, C. Woodhead, R. Bernardo-Gavito, P. Tovee und R. J. Young, *Photonic Crystals for Enhanced Light Extraction from 2D Materials*, *ACS Photonics* **3**(12), S. 2515 (2016).
- [Nov04] K. S. Novoselov, J. M. Raimond, M. Brune, Q. Compton, F. D. Martini, C. Monroe, K. S. Novoselov, A. K. Geim, S. V. Morozov, D. Jiang, Y. Zhang, S. V. Dubonos, I. V. Grigorieva und A. A. Firsov, *Electric Field Effect in Atomically Thin Carbon Films*, *Science* **306**(5696), S. 666 (2004).
- [Nov05] K. S. Novoselov, D. Jiang, F. Schedin, T. J. Booth, V. V. Khotkevich, S. V. Morozov und A. K. Geim, *Two-dimensional atomic crystals*, *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America* **102**(30), S. 10451 (2005).

- [Nov07] L. Novotny, *Effective Wavelength Scaling for Optical Antennas*, Physical Review Letters **98**(26), S. 266802 (2007).
- [Nov10a] A. Novikov, *Experimental measurement of work function in doped silicon surfaces*, Solid-State Electronics **54**(1), S. 8 (2010).
- [Nov10b] L. Novotny, *Strong coupling, energy splitting, and level crossings: A classical perspective*, American Journal of Physics **78**(11), S. 1199 (2010).
- [Nov12] L. Novotny und B. Hecht, *Principles of nano-optics*, Cambridge university press (2012).
- [Oll20] H. Ollivier, I. Maillette De Buy Wenniger, S. Thomas, S. C. Wein, A. Harouri, G. Coppola, P. Hilaire, C. Millet, A. Lemaître, I. Sagnes, O. Krebs, L. Lanco, J. C. Loredó, C. Antón, N. Somaschi und P. Senellart, *Reproducibility of High-Performance Quantum Dot Single-Photon Sources*, ACS Photonics **7**(4), S. 1050 (2020).
- [Pan12] J. W. Pan, Z. B. Chen, C. Y. Lu, H. Weinfurter, A. Zeilinger und M. Zukowski, *Multiphoton entanglement and interferometry*, Reviews of Modern Physics **84**(2) (2012).
- [PB17] C. Palacios-Berraquero, D. M. Kara, A. R. P. Montblanch, M. Barbone, P. Latawiec, D. Yoon, A. K. Ott, M. Loncar, A. C. Ferrari und M. Atatüre, *Large-scale quantum-emitter arrays in atomically thin semiconductors*, Nature Communications **8**(1), S. 15093 (2017).
- [Pen00] X. Peng, L. Manna, W. Yang, J. Wickham, E. Scher, A. Kadavanich und A. P. Alivisatos, *Shape control of CdSe nanocrystals*, Nature **404**(6773), S. 59 (2000).
- [Pet54] M. B. Peterson und R. L. Johnson, *National Advisory Committee formed.*, National Advisory Committee For Aeronautics **77**(5), S. 6 (1954).
- [Pie13] B. Pietka, J. Suffczyński, M. Goryca, T. Kazimierzczuk, A. Golnik, P. Kossacki, A. Wyszomolek, J. A. Gaj, R. Stępniewski und M. Potemski, *Photon correlation studies of charge variation in a single GaAlAs quantum dot*, Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics **87**(3), S. 1 (2013).

- [Rad11] B. Radisavljevic, A. Radenovic, J. Brivio, V. Giacometti und A. Kis, *Single-layer MoS₂ transistors*, Nature Nanotechnology **6**(3), S. 147 (2011).
- [Riv15] P. Rivera, J. R. Schaibley, A. M. Jones, J. S. Ross, S. Wu, G. Aivazian, P. Klement, K. Seyler, G. Clark, N. J. Ghimire, J. Yan, D. G. Mandrus, W. Yao und X. Xu, *Observation of long-lived interlayer excitons in monolayer MoSe₂-WSe₂ heterostructures*, Nature Communications **6**, S. 4 (2015).
- [Rol14] R. Roldán, J. A. Silva-Guillén, M. P. López-Sancho, F. Guinea, E. Cappelluti und P. Ordejón, *Electronic properties of single-layer and multilayer transition metal dichalcogenides MX₂ (M = Mo, W and X = S, Se)*, Annalen der Physik **526**(9-10), S. 347 (2014).
- [Rus12] K. J. Russell, T.-L. Liu, S. Cui und E. L. Hu, *Large spontaneous emission enhancement in plasmonic nanocavities*, Nature Photonics **6**(7), S. 459 (2012).
- [Ryd03] H. Rydberg, M. Dion, N. Jacobson, E. Schröder, P. Hyldgaard, S. I. Simak, D. C. Langreth und B. I. Lundqvist, *Van der Waals density functional for layered structures.*, Physical review letters **91**(September), S. 126402 (2003).
- [Ryt67] N. Rytova, *Resonance absorption of electromagnetic waves in a thin film*, Soviet Physics Solid State, USSR **8**(9), S. 2136 (1967).
- [Sap15] L. Sapienza, M. Davanço, A. Badolato und K. Srinivasan, *Nanoscale optical positioning of single quantum dots for bright and pure single-photon emission*, Nature Communications **6** (2015).
- [Sch09] C. Schneider, T. Heindel, A. Huggenberger, P. Weinmann, C. Kistner, M. Kamp, S. Reitzenstein, S. Höfling und A. Forchel, *Single photon emission from a site-controlled quantum dot-micropillar cavity system*, Applied Physics Letters **94**(11), S. 1 (2009).
- [Sch10] G. F. Schneider, V. E. Calado, H. Zandbergen, L. M. K. Vandersypen und C. Dekker, *Wedging transfer of nanostructures*, Nano Letters **10**(5), S. 1912 (2010).
- [Sch13] C. Schäfer, D. A. Gollmer, A. Horrer, J. Fulmes, A. Weber-Bargioni, S. Cabrini, P. J. Schuck, D. P. Kern und M. Fleischer, *A single particle plasmon resonance study of 3D conical nanoantennas*, Nanoscale **5**(17), S. 7861 (2013).

- [Sch14] S. Schwarz, S. Dufferwiel, P. M. Walker, F. Withers, A. A. P. Trichet, M. Sich, F. Li, E. A. Chekhovich, D. N. Borisenko, N. N. Kolesnikov, K. S. Novoselov, M. S. Skolnick, J. M. Smith, D. N. Krizhanovskii und A. I. Tartakovskii, *Two-dimensional metal-chalcogenide films in tunable optical microcavities*, Nano Letters **14**(12), S. 7003 (2014).
- [Sch16] J. R. Schaibley, H. Yu, G. Clark, P. Rivera, J. S. Ross, K. L. Seyler, W. Yao und X. Xu, *Valleytronics in 2D materials*, Nature Reviews Materials **1**(11), S. 16055 (2016).
- [Sch18] C. Schneider, M. M. Glazov, T. Korn, S. Höfling und B. Urbaszek, *Two-dimensional semiconductors in the regime of strong light-matter coupling*, Nature Communications **9**(1), S. 2695 (2018).
- [Sen17] P. Senellart, G. Solomon und A. White, *High-performance semiconductor quantum-dot single-photon sources*, Nature Nanotechnology **12**(11), S. 1026 (2017).
- [Seu00] J. Seufert, R. Weigand, G. Bacher, T. Kummell, A. Forchel, K. Leonardi und D. Hommel, *Spectral diffusion of the exciton transition in a single self-organized quantum dot*, Applied Physics Letters **76**(14), S. 1872 (2000).
- [Sey19] K. L. Seyler, P. Rivera, H. Yu, N. P. Wilson, E. L. Ray, D. G. Mandrus, J. Yan, W. Yao und X. Xu, *Signatures of moiré-trapped valley excitons in $MoSe_2/WSe_2$ heterobilayers*, Nature **567**(7746), S. 66 (2019).
- [She17] G. D. Shepard, O. A. Ajayi, X. Li, X.-Y. Zhu, J. Hone und S. Strauf, *Nano-bubble induced formation of quantum emitters in monolayer semiconductors*, 2D Materials **4**(2), S. 021019 (2017).
- [Shi07] A. J. Shields, E. Limited und C. S. Park, *Semiconductor quantum light sources*, Nature photonics **1**, S. 215 (2007).
- [Sol21] L. F. Solutions, *FDTD product reference manual* (2021).
- [Som33] A. Sommerfeld und H. Bethe, *Elektronentheorie der Metalle*, in *Aufbau Der Zusammenhängenden Materie*, S. 333–622, Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg (1933), URL http://link.springer.com/10.1007/978-3-642-91116-3_3.

- [Som16] N. Somaschi, V. Giesz, L. De Santis, J. C. Loredó, M. P. Almeida, G. Hornecker, S. L. Portalupi, T. Grange, C. Antón, J. Demory, C. Gómez, I. Sagnes, N. D. Lanzillotti-Kimura, A. Lemaître, A. Auffeves, A. G. White, L. Lanco und P. Senellart, *Near-optimal single-photon sources in the solid state*, Nature Photonics **10**(5), S. 340 (2016).
- [Spl10] A. Splendiani, L. Sun, Y. Zhang, T. Li, J. Kim, C. Y. Chim, G. Galli und F. Wang, *Emerging photoluminescence in monolayer MoS₂*, Nano Letters **10**(4), S. 1271 (2010).
- [Sri15] A. Srivastava, M. Sidler, A. V. Allain, D. S. Lembke, A. Kis und A. Imamoglu, *Optically active quantum dots in monolayer WSe₂*, Nature Nanotechnology **10**(6), S. 491 (2015).
- [Sti16] A. V. Stier, K. M. McCreary, B. T. Jonker, J. Kono und S. A. Crooker, *Exciton diamagnetic shifts and valley Zeeman effects in monolayer WS₂ and MoS₂ to 65 Tesla*, Nature Communications **7**(1), S. 10643 (2016).
- [Sün08] T. Sünner, C. Schneider, M. Strauß, A. Huggenberger, D. Wiener, S. Höfling, M. Kamp und A. Forchel, *Scalable fabrication of optical resonators with embedded site-controlled quantum dots*, Optics Letters **33**(15), S. 1759 (2008).
- [Taf05] A. Taflove, S. C. Hagness und M. Picket-May, *Computational Electromagnetics: The Finite-Difference Time-Domain Method*, in *The Electrical Engineering Handbook*, S. 629–670, Elsevier (2005).
- [Tai02] D. Taillaert, W. Bogaerts, P. Bienstman, T. F. Krauss, P. Van Daele, I. Moerman, S. Verstuyft, K. De Mesel und R. Baets, *An out-of-plane grating coupler for efficient butt-coupling between compact planar waveguides and single-mode fibers*, IEEE Journal of Quantum Electronics **38**(7), S. 949 (2002).
- [Tak97] J. Takahara, S. Yamagishi, H. Taki, A. Morimoto und T. Kobayashi, *Guiding of a one-dimensional optical beam with nanometer diameter*, Optics Letters **22**(7), S. 475 (1997).
- [Tam11] T. H. Taminiau, F. D. Stefani und N. F. van Hulst, *Optical Nanorod Antennas Modeled as Cavities for Dipolar Emitters: Evolution of Sub- and Super-Radiant Modes*, Nano Letters **11**(3), S. 1020 (2011).

- [Tam13] M. S. Tame, K. R. McEnery, . K. Özdemir, J. Lee, S. A. Maier und M. S. Kim, *Quantum plasmonics*, Nature Physics **9**(6), S. 329 (2013).
- [Tan14] L. K. Tan, B. Liu, J. H. Teng, S. Guo, H. Y. Low und K. P. Loh, *Atomic layer deposition of a MoS₂ film*, Nanoscale **6**(18), S. 10584 (2014).
- [Tho04] M. Thomas, J. J. Greffet, R. Carminati und J. R. Arias-Gonzalez, *Single-molecule spontaneous emission close to absorbing nanostructures*, Applied Physics Letters **85**(17), S. 3863 (2004).
- [Tom21] N. Tomm, A. Javadi, N. O. Antoniadis, D. Najer, M. C. Löbl, A. R. Korsch, R. Schott, S. R. Valentin, A. D. Wieck, A. Ludwig und R. J. Warburton, *A bright and fast source of coherent single photons*, Nature Nanotechnology **16**(April), S. 399 (2021).
- [Ton13] P. Tonndorf, R. Schmidt, P. Böttger, X. Zhang, J. Börner, A. Liebig, M. Albrecht, C. Kloc, O. Gordan, D. R. T. Zahn, S. M. de Vasconcellos und R. Bratschitsch, *Photoluminescence emission and Raman response of monolayer MoS₂, MoSe₂, and WSe₂*, Opt. Express **21**(4), S. 4908 (2013).
- [Ton15] P. Tonndorf, R. Schmidt, R. Schneider, J. Kern, M. Buscema, G. a. Steele, A. Castellanos-Gomez, H. S. J. van der Zant, S. Michaelis de Vasconcellos und R. Bratschitsch, *Single-photon emission from localized excitons in an atomically thin semiconductor*, Optica **2**(4), S. 347 (2015).
- [Ton17] P. Tonndorf, S. Schwarz, J. Kern, I. Niehues, O. Del Pozo-Zamudio, A. I. Dmitriev, A. P. Bakhtinov, D. N. Borisenko, N. N. Kolesnikov, A. I. Tartakovskii, S. Michaelis de Vasconcellos und R. Bratschitsch, *Single-photon emitters in GaSe*, 2D Materials **4**(2), S. 021010 (2017).
- [Tot19] M. Toth und I. Aharonovich, *Single Photon Sources in Atomically Thin Materials*, Annual Review of Physical Chemistry **70**(1), S. 123 (2019).
- [Tra16] T. T. Tran, K. Bray, M. J. Ford, M. Toth und I. Aharonovich, *Quantum emission from hexagonal boron nitride monolayers*, Nature Nanotechnology **11**(1), S. 37 (2016).

- [Tra17a] T. T. Tran, S. Choi, J. A. Scott, Z. Xu, C. Zheng, G. Seniutinas, A. Bendavid, M. S. Fuhrer, M. Toth und I. Aharonovich, *Room-Temperature Single-Photon Emission from Oxidized Tungsten Disulfide Multilayers*, *Advanced Optical Materials* **5**(5), S. 1600939 (2017).
- [Tra17b] T. T. Tran, D. Wang, Z. Q. Xu, A. Yang, M. Toth, T. W. Odom und I. Aharonovich, *Deterministic Coupling of Quantum Emitters in 2D Materials to Plasmonic Nanocavity Arrays*, *Nano Letters* **17**(4), S. 2634 (2017).
- [Tra19] K. Tran, G. Moody, F. Wu, X. Lu, J. Choi, K. Kim, A. Rai, D. A. Sanchez, J. Quan, A. Singh, J. Embley, A. Zepeda, M. Campbell, T. Autry, T. Taniguchi, K. Watanabe, N. Lu, S. K. Banerjee, K. L. Silverman, S. Kim, E. Tutuc, L. Yang, A. H. MacDonald und X. Li, *Evidence for moiré excitons in van der Waals heterostructures*, *Nature* (2019).
- [Tri15] L. N. Tripathi, T. Kang, Y.-M. Bahk, S. Han, G. Choi, J. Rhie, J. Jeong und D.-S. Kim, *Quantum dots-nanogap metamaterials fabrication by self-assembly lithography and photoluminescence studies*, *Optics Express* **23**(11), S. 14937 (2015).
- [Tri18] L. N. Tripathi, O. Iff, S. Betzold, Ł. Dusanowski, M. Emmerling, K. Moon, Y. J. Lee, S.-H. Kwon, S. Höfling und C. Schneider, *Spontaneous Emission Enhancement in Strain-Induced WSe₂ Monolayer-Based Quantum Light Sources on Metallic Surfaces*, *ACS Photonics* **5**(5), S. 1919 (2018).
- [Tro12] R. Trotta, P. Atkinson, J. D. Plumhof, E. Zallo, R. O. Rezaev, S. Kumar, S. Baunack, J. R. Schröter, A. Rastelli und O. G. Schmidt, *Nanomembrane quantum-light-emitting diodes integrated onto piezoelectric actuators*, *Advanced Materials* **24**(20), S. 2668 (2012).
- [Tro16] R. Trotta, J. Martín-Sánchez, J. S. Wildmann, G. Piredda, M. Reindl, C. Schimpf, E. Zallo, S. Stroj, J. Edlinger und A. Rastelli, *Wavelength-tunable sources of entangled photons interfaced with atomic vapours*, *Nature Communications* **7**(1), S. 10375 (2016).

- [Uge14] M. M. Ugeda, A. J. Bradley, S.-F. Shi, F. H. da Jornada, Y. Zhang, D. Y. Qiu, W. Ruan, S.-K. Mo, Z. Hussain, Z.-X. Shen, F. Wang, S. G. Louie und M. F. Crommie, *Giant bandgap renormalization and excitonic effects in a monolayer transition metal dichalcogenide semiconductor*, Supplementary **13**(12), S. 1091 (2014).
- [Uns16] S. Unsleber, Y.-M. He, S. Gerhardt, S. Maier, C.-Y. Lu, J.-W. Pan, N. Gregersen, M. Kamp, C. Schneider und S. Höfling, *Highly indistinguishable on-demand resonance fluorescence photons from a deterministic quantum dot micropillar device with 74% extraction efficiency*, Optics Express **24**(8), S. 8539 (2016).
- [Van09] T. Van Der Sar, E. C. Heeres, G. M. Dmochowski, G. De Lange, L. Robledo, T. H. Oosterkamp und R. Hanson, *Nanopositioning of a diamond nanocrystal containing a single nitrogen-vacancy defect center*, Applied Physics Letters **94**(17), S. 92 (2009).
- [Van18] D. Van Tuan, M. Yang und H. Dery, *Coulomb interaction in monolayer transition-metal dichalcogenides*, Physical Review B **98**(12), S. 125308 (2018).
- [Var67] Y. P. Varshni, *Temperature dependence of the energy gap in semiconductors*, Physica **34**(1), S. 149 (1967).
- [Wan37] G. H. Wannier, *The Structure of Electronic Excitation Levels in Insulating Crystals*, Physical Review **52**(3), S. 191 (1937).
- [Wan14] G. Wang, L. Bouet, D. Lagarde, M. Vidal, A. Balocchi, T. Amand, X. Marie und B. Urbaszek, *Valley dynamics probed through charged and neutral exciton emission in monolayer WS_2* , Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics **90**(7), S. 1 (2014).
- [Wan16] Q. Wang, L. Sun, B. Zhang, C. Chen, X. Shen und W. Lu, *Direct observation of strong light-exciton coupling in thin WS_2 flakes*, Optics Express **24**(7), S. 7151 (2016).
- [Wan19] H. Wang, H. Hu, T.-H. Chung, J. Qin, X. Yang, J.-P. Li, R.-Z. Liu, H.-S. Zhong, Y.-M. He, X. Ding, Y.-H. Deng, Q. Dai, Y.-H. Huo, S. Höfling, C.-Y. Lu und J.-W. Pan, *On-Demand Semiconductor Source of Entangled Photons Which Simultaneously Has High Fidelity, Efficiency, and Indistinguishability*, Physical Review Letters **122**(11), S. 113602 (2019).

- [Wei82] D. A. Weitz, J. I. Gersten, S. Garoff, C. D. Hanson und T. J. Gramila, *Fluorescent lifetimes of molecules on silver-island films*, Optics Letters **7**(2), S. 89 (1982).
- [Wil69] J. Wilson und A. Yoffe, *The transition metal dichalcogenides discussion and interpretation of the observed optical, electrical and structural properties*, Advances in Physics **18**(73), S. 193 (1969).
- [Wit15] F. Withers, O. Del Pozo-Zamudio, A. Mishchenko, a. P. Rooney, A. Gholinia, K. Watanabe, T. Taniguchi, S. J. Haigh, a. K. Geim, a. I. Tartakovskii und K. S. Novoselov, *Light-emitting diodes by band-structure engineering in van der Waals heterostructures*, Nature Materials **14**(3), S. 301 (2015).
- [Wu14] S. Wu, S. Buckley, A. M. Jones, J. S. Ross, N. J. Ghimire, J. Yan, D. G. Mandrus, W. Yao, F. Hatami, J. Vučković, A. Majumdar und X. Xu, *Control of two-dimensional excitonic light emission via photonic crystal*, 2D Materials **1**(1), S. 011001 (2014).
- [Xia12] D. Xiao, G. B. Liu, W. Feng, X. Xu und W. Yao, *Coupled spin and valley physics in monolayers of MoS₂ and other group-VI dichalcogenides*, Physical Review Letters **108**(19), S. 1 (2012).
- [Xin96] S. H. Xin, P. D. Wang, A. Yin, C. Kim, M. Dobrowolska, J. L. Merz und J. K. Furdyna, *Formation of self-assembling CdSe quantum dots on ZnSe by molecular beam epitaxy*, Applied Physics Letters **69**(25), S. 3884 (1996).
- [Xu99] Y. Xu, J. S. Vučković, R. K. Lee, O. J. Painter, A. Scherer und A. Yariv, *Finite-difference time-domain calculation of spontaneous emission lifetime in a microcavity*, Journal of the Optical Society of America B **16**(3), S. 465 (1999).
- [Yar73] A. Yariv, *Coupled-mode theory for guided-wave optics*, IEEE Journal of Quantum Electronics **9**(9), S. 919 (1973).
- [Ye17] Y. Ye, X. Dou, K. Ding, Y. Chen, D. Jiang, F. Yang und B. Sun, *Single photon emission from deep-level defects in monolayer WSe₂*, Physical Review B **95**(24), S. 1 (2017).

- [Yee66] K. Yee, *Numerical solution of initial boundary value problems involving maxwell's equations in isotropic media*, IEEE Transactions on Antennas and Propagation **14**(3), S. 302 (1966).
- [Yin12] Z. Yin, H. H. Li, H. H. Li, L. Jiang, Y. Shi, Y. Sun, G. Lu, Q. Zhang, X. Chen und H. Zhang, *Single-layer MoS₂ phototransistors*, ACS nano **6**(1), S. 74 (2012).
- [You15] Y. You, X.-X. Zhang, T. C. Berkelbach, M. S. Hybertsen, D. R. Reichman und T. F. Heinz, *Observation of biexcitons in monolayer WSe₂*, Nature Physics **11**(6), S. 477 (2015).
- [Yu14] L. Yu, Y. H. Lee, X. Ling, E. J. G. Santos, Y. C. Shin, Y. Lin, M. Dubey, E. Kaxiras, J. Kong, H. Wang und T. Palacios, *Graphene/MoS₂ Hybrid technology for large-scale two-dimensional electronics*, Nano Letters **14**(6), S. 3055 (2014).
- [Zen15] S. Zeng, S. Hu, J. Xia, T. Anderson, X.-Q. Dinh, X.-M. Meng, P. Coquet und K.-T. Yong, *Graphene-MoS₂ hybrid nanostructures enhanced surface plasmon resonance biosensors*, Sensors and Actuators B **207**(February 2015), S. 801 (2015).
- [Zha14a] C. Zhang, H. Wang, W. Chan, C. Manolatou und F. Rana, *Absorption of light by excitons and trions in monolayers of metal dichalcogenide MoS₂: Experiments and theory*, Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics **89**(20), S. 12 (2014).
- [Zha14b] Y. Zhang, T. R. Chang, B. Zhou, Y. T. Cui, H. Yan, Z. Liu, F. Schmitt, J. Lee, R. Moore, Y. Chen, H. Lin, H. T. Jeng, S. K. Mo, Z. Hussain, A. Bansil und Z. X. Shen, *Direct observation of the transition from indirect to direct bandgap in atomically thin epitaxial MoSe₂*, Nature Nanotechnology **9**(2), S. 111 (2014).
- [Zha15a] J. Zhang, J. S. Wildmann, F. Ding, R. Trotta, Y. Huo, E. Zallo, D. Huber, A. Rastelli und O. G. Schmidt, *High yield and ultrafast sources of electrically triggered entangled-photon pairs based on strain-tunable quantum dots*, Nature Communications **6**(1), S. 10067 (2015).

- [Zha15b] X. X. Zhang, Y. You, S. Y. F. Zhao und T. F. Heinz, *Experimental Evidence for Dark Excitons in Monolayer WSe₂*, Physical Review Letters **115**(25), S. 1 (2015).
- [Zha17] S. Zhang, C. G. Wang, M. Y. Li, D. Huang, L. J. Li, W. Ji und S. Wu, *Defect Structure of Localized Excitons in a WSe₂ Monolayer*, Physical Review Letters **119**(4), S. 1 (2017).
- [Zha18] N. Zhang, A. Surrente, M. Baranowski, D. K. Maude, P. Gant, A. Castellanos-Gomez und P. Plochocka, *Moiré Intralayer Excitons in a MoSe₂/MoS₂ Heterostructure*, Nano Letters **18**(12), S. 7651 (2018).
- [Zhe19] Y. J. Zheng, Y. Chen, Y. L. Huang, P. K. Gogoi, M.-Y. Li, L.-J. Li, P. E. Trevisanutto, Q. Wang, S. J. Pennycook, A. T. S. Wee und S. Y. Quek, *Point Defects and Localized Excitons in 2D WSe₂*, ACS Nano **13**(5), S. 6050 (2019).
- [Zho17] Y. Zhou, G. Scuri, D. S. Wild, A. A. High, A. Dibos, L. A. Jauregui, C. Shu, K. De Greve, K. Pistunova, A. Y. Joe, T. Taniguchi, K. Watanabe, P. Kim, M. D. Lukin und H. Park, *Probing dark excitons in atomically thin semiconductors via near-field coupling to surface plasmon polaritons*, Nature Nanotechnology **12**(9), S. 856 (2017).
- [Zhu18] S. Zhu und H. T. Johnson, *Moiré-templated strain patterning in transition-metal dichalcogenides and application in twisted bilayer MoS₂*, Nanoscale **10**(44), S. 20689 (2018).
- [Zom11] P. J. Zomer, S. P. Dash, N. Tombros und B. J. Van Wees, *A transfer technique for high mobility graphene devices on commercially available hexagonal boron nitride*, Applied Physics Letters **99**(23), S. 232104 (2011).