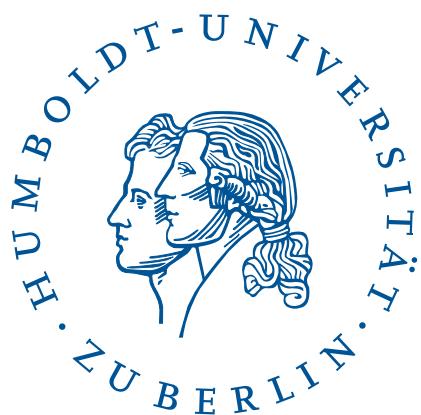


# Untersuchungen an hybriden Nanodrahtstrukturen für Plasmon-Nanolaser

## Masterarbeit

---



Humboldt-Universität zu Berlin  
Mathematisch-Naturwissenschaftliche Fakultät  
**Institut für Physik**

eingereicht von: Friedemann Gädke  
geboren am: 09.10.1985 in Halle (Saale)

Betreuung: Prof. Dr. Oliver Benson  
Prof. Dr. Matthias Ballauff

eingereicht am: 12.11.2015



# Inhaltsverzeichnis

|  |           |
|--|-----------|
| <b>1 Einleitung</b>  | <b>1</b>  |
| 1.1 Oberflächenplasmonen und deren technische Anwendungen . . . . .                      | 1         |
| 1.2 Aufgabenstellung und Vorgehensweise . . . . .  | 4         |
| <b>2 Grundlagen</b>  | <b>5</b>  |
| 2.1 Maxwell-Gleichungen in Dielektrika und Metallen . . . . .                            | 5         |
| 2.2 Optische Eigenschaften von Metallen . . . . .  | 7         |
| 2.3 Oberflächenplasmonen an metallisch-dielektrischen Grenzflächen .                     | 9         |
| 2.4 Spaserschwellen und Ratengleichungen . . . . .                                       | 13        |
| 2.5 Numerische Simulationsmethoden . . . . .   | 18        |
| 2.6 Ellipsometrie . . . . .  | 20        |
| <b>3 Bisherige Konzepte für Spaser und Plasmon-Nanolaser</b>                             | <b>23</b> |
| 3.1 Farbstoff-Spaser mit Nanopartikeln . . . . .   | 23        |
| 3.2 Halbleiterbasierter Spaser mit Nanodraht . . . . .                                   | 25        |
| 3.3 Nanoresonator aus metallischem Nanodraht mit Farbstoffschicht .                      | 27        |
| <b>4 Realistische Designüberlegungen für einen Plasmon-Nanolaser</b>                     | <b>29</b> |
| 4.1 Analyse der bisherigen Spaser-Konzepte . . . . .                                     | 29        |
| 4.2 Design des Nanolasers . . . . .  | 30        |
| 4.3 Herstellung des Gold-Nanodraht-Spasers . . . . .                                     | 34        |
| <b>5 Simulation des Nanodraht-Spaser-Designs<br/>mittels der Finite-Elemente-Methode</b> | <b>39</b> |
| 5.1 Vorgehen zur Simulation des Schichtaufbaus . . . . .                                 | 39        |
| 5.2 Bestimmung der Simulationsparameter . . . . .  | 40        |
| 5.3 Variation der Polymerschichtdicke . . . . .  | 41        |
| 5.4 Identifikation geeigneter Größen zur optimalen Schichtdickenbestimmung . . . . .     | 44        |
| 5.5 Bestimmung der optimalen Schichtdicke . . . . .                                      | 47        |
| 5.6 Bestimmung des Purcellfaktors . . . . .  | 47        |
| 5.7 Zusammenfassung der Simulationen des Schichtsystems . . . . .                        | 50        |
| <b>6 Experimentelle Untersuchung des Gold-Nanodraht-Spasers</b>                          | <b>51</b> |
| 6.1 Experimenteller Aufbau . . . . .   | 51        |
| 6.2 Durchführung des Experiments . . . . .   | 54        |
| 6.3 Experimentelle Ergebnisse . . . . .  | 55        |
| 6.4 Zusammenfassung der experimentellen Untersuchungen . . . . .                         | 58        |
| <b>7 Zusammenfassung</b>   | <b>59</b> |
| <b>8 Ausblick</b>  | <b>60</b> |

|                                   |           |
|-----------------------------------|-----------|
| <b>Danksagung</b>                 | <b>61</b> |
| <b>Persönliche Stellungnahme</b>  | <b>63</b> |
| <b>Publikationen</b>              | <b>65</b> |
| <b>Literatur</b>                  | <b>67</b> |
| <b>Abkürzungsverzeichnis</b>      | <b>69</b> |
| <b>Abbildungsverzeichnis</b>      | <b>70</b> |
| <b>Tabellenverzeichnis</b>        | <b>71</b> |
| <b>Eigenständigkeitserklärung</b> | <b>73</b> |

# 1 Einleitung

## 1.1 Oberflächenplasmonen und deren technische Anwendungen

An den Oberflächenplasmonen (englisch *surface plasmon polariton, SPP*) wurde in den letzten Jahren einiger Forschungsaufwand betrieben, da die technischen Möglichkeiten zur Herstellung von Nanostrukturen immer ausgereifter wurden.

Seit vielen Jahrzehnten besteht eine kontinuierliche Beschleunigung von Rechenmaschinen. So wurde im Jahr 1965 das Moorsche Gesetz von Gordon E. Moore aufgestellt, nach dem alle etwa 18 Monate eine Verdopplung der Rechtleistung stattfindet [1]. Dieses Gesetz konnte bisher weitgehend eingehalten werden. In den letzten Jahren zeigt sich jedoch immer stärker, dass die bisher verwendete immer weitere Verkleinerung der Strukturgröße der Schaltelemente der Rechenmaschine an die physikalischen Grenzen stößt. Seit der Einführung des Transistors in den 1950er Jahren war das Vorgehen, den Transistor immer weiter zu verkleinern, erfolgreich. Dennoch wurde bereits im letzten Jahrzehnt nach besser geeigneten Halbleitermaterialien gesucht, um eine weitere Beschleunigung des Transistors ohne die entsprechende Verkleinerung der Strukturgröße zu erreichen. In der kommerziellen Produktion von halbleiterbasierten Rechenmaschinen ist die Strukturgröße zur Zeit auf 14 nm gesenkt worden, so dass derzeitige Transistoren nur noch aus ca. 140 Atomlagen bestehen. Eine weitere Verkleinerung ist zwar noch nicht ausgeschlossen, aber dadurch werden auch die Herstellungsprozesse immer aufwendiger. Die Funktionsweise eines Transistors erfordert, dass elektrisch leitende, isolierende und dotierte, halbleitende Materialien kombiniert werden, so dass die Verkleinerung bis zur Größe von Atomen nicht möglich ist.

Um den technischen Fortschritt bezüglich der Beschleunigung numerischer Berechnungen und des Datenaustauschs weiterzuführen, müssen neue Konzepte gefunden werden, mit Hilfe derer der physikalische Prozess zum Schalten von Signalen intrinsisch beschleunigt werden kann.

Bei der Weiterentwicklung von Rechenmaschinen hat außerdem die Senkung des Energieverbrauchs einer Rechung besonders in den letzten Jahren eine entscheidende Rolle eingenommen. Die Einführung mobiler, internetfähiger Kleincomputer und anderer tragbarer rechenfähiger Geräte, die einen begrenzten Energiespeicher besitzen und dennoch lange Laufzeiten unabhängig von der Stromversorgung ermöglichen sollen, hat dazu geführt, dass ein großer Aufwand zur Verbesserung der Energieeffizienz der Recheneinheiten betrieben wurde. Aber auch große Rechenzentren, die für den Betrieb des Internets nötig sind, verbrauchen zur Zeit große Mengen wertvolle Energie, die aus den Ressourcen der Erde erzeugt werden muss.

In der Quanteninformationstechnologie (QIT) lässt sich zeigen, dass für eine Rechenoperation theoretisch keine Energie nötig ist, da der quantenmechanische Rechenprozess nur auf Manipulationen der Wellenfunktionen beruht und

daher reversibel sein muss. Erst am Ende des Rechenvorgangs wird zum Auslesen des Ergebnisses ein Messprozess ausgeführt, der zu einem Energieverbrauch führt. Durch den Messprozess wird zudem die Richtung der Rechnung vorgegeben. Trotzdem stehen dem Sparen von Energie bei Berechnungen keine theoretischen Grenzen im Wege.

Ein möglicher Ansatz zur Verbesserung von Rechenmaschinen ist die Nutzung optischer Verfahren. Dabei ist eine besondere Herausforderung, mittels rein optischer Signale andere optische Signale effizient zu schalten. Zwischen den Photonen des Lichts ist eine nur sehr geringe Wechselwirkung vorhanden, so dass ohne die Verwendung von Materie zur Kopplung von Licht eine Beeinflussung von Licht mittels Licht bei möglichst geringen Intensitäten nicht möglich ist. Die Verwendung von Oberflächenplasmonen ist ein möglicher Ansatz zum Umgehen dieser Limitierung optischer Schaltkreise.

Im Jahr 2003 wurde von M. I. Stockman und D. J. Bergman ein optischer Verstärker vorgeschlagen, der die Oberflächenplasmonen verwendet [2, 13]. Dieser optische Verstärker orientiert sich am Prinzip des Lasers (Lichtverstärkung durch stimulierte Emission von Strahlung, englisch *light amplification by stimulated emission of radiation*), verwendet aber statt Licht die Oberflächenplasmonen. Entsprechend wird er auch Spaser (Oberflächenplasmonenverstärkung durch stimulierte Emission von Strahlung, englisch *surface plasmon amplification by stimulated emission of radiation*) genannt.

Die Oberflächenplasmonen sind gekoppelte Zustände zwischen Schwingungen von Elektronen an der Oberfläche von Metallen und Photonen, die an einer metallisch–dielektrischen Grenzschicht propagieren. Durch die Kopplung der mas-

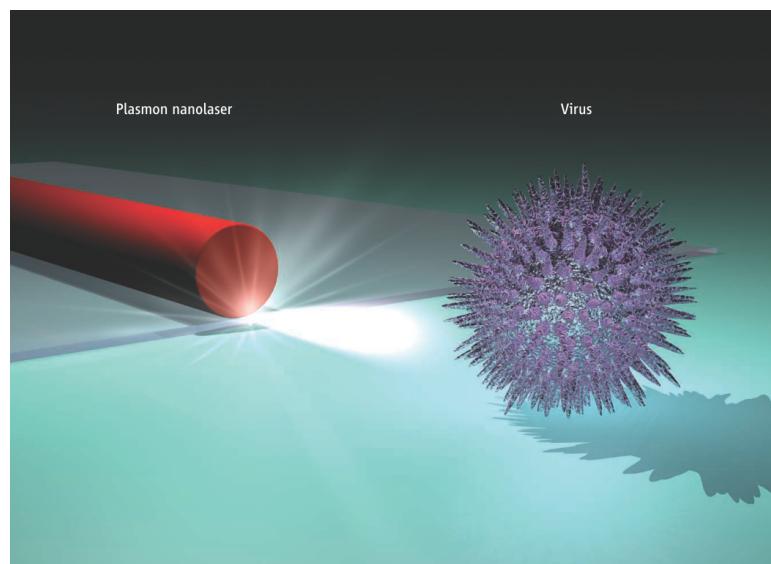


Abb. 1.1: Zum Größenvergleich ist ein Nanolaser zusammen mit einem Virus dargestellt. Der Nanolaser ist nur wenige Nanometer groß. Der Virus hat eine Größe von ca. 20 nm. Quelle: [3]

selosen Photonen an massive Elektronen wird bei einer bestimmten Frequenz im elektromagnetischen Feld die Wellenlänge gegenüber der reinen Photonenwellenlänge kürzer. Dadurch lassen sich beim Spaser kürzere Resonatoren als beim Laser verwenden. Der Spaser kann also besonders klein implementiert werden. Er wird daher auch Nanolaser genannt. In Abbildung 1.1 ist zum Größenvergleich ein Nanolaser zusammen mit einem Virus gezeigt, der eine Größe von etwa 20 nm besitzt.

Durch die derzeitige Möglichkeit, nanometer-kleine Strukturen experimentell handhaben zu können, stehen auch weitere Anwendungen in Aussicht. Eine solche Anwendung könnte z. B. die Nanolithographie sein, bei der gezielt mit wenigen Nanometern Genauigkeit Energie auf die Probe aufgebracht werden muss. Auch in der optischen Kommunikation sind Anwendungen denkbar. Für weiterführende physikalische Experimente, insbesondere bei der Arbeit mit Oberflächenplasmonen, ließe sich der Spaser als kohärente Quelle verwenden.

Es wird im Weiteren häufig von Plasmonen gesprochen. Dabei sind bis auf Kapitel 2.2 die Oberflächenplasmonen gemeint. In Kapitel 2.2 wird auch über die Volumenplasmonen gesprochen, die in dieser Arbeit keine Anwendung finden.

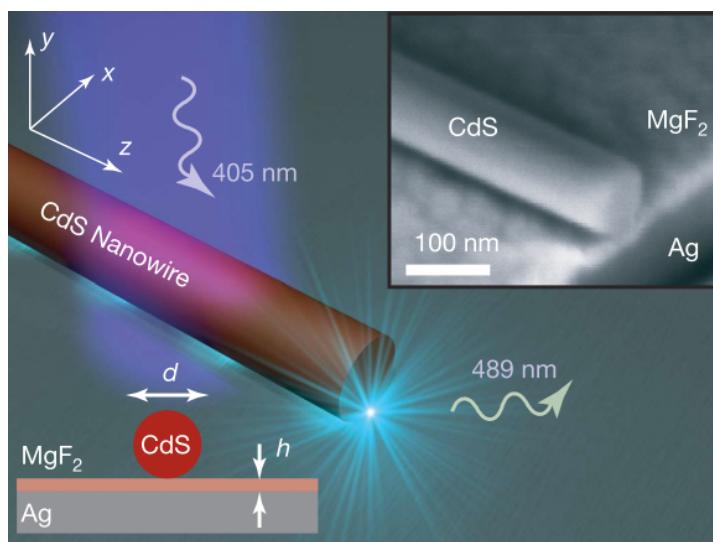


Abb. 1.2: Beispiel eines Spasers bestehend aus einem Halbleiter-Nanodraht auf einem metallischen Substrat. Eine ausführlichere Beschreibung findet sich in Kapitel 3.2. Quelle: [4].

Im Jahr 2009 wurde von R. F. Oulton ein halbleiterbasiertes Spaser vorgestellt, und es wurde auch die Funktionalität demonstriert [4]. Dieser Spaser basiert auf einem Silbersubstrat und einem darauf liegenden Halbleiter-Nanodraht, der den Resonator bildet und zusätzlich auch als Verstärkermedium verwendet wird. Zwischen beiden wird eine 5 nm dicke Abstandsschicht eingefügt. In Abbildung 1.2 ist eine Illustration dieses Spasers zu sehen und in Kapitel 3.2 ist eine ausführlichere Beschreibung gegeben.

Ebenfalls im Jahr 2009 wurde von Noginov et al. [7] ein Spaser vorgestellt, der aus in Farbstoff eingebetteten Goldkugeln besteht. Dieser auf Nanopartikeln basierte Spaser ist in Kapitel 3.1 weiter beschrieben.

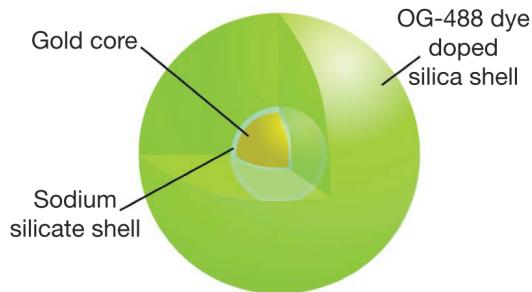


Abb. 1.3: Beispiel eines Spaser-Designs, für das ein kugelförmiger Nanopartikel aus Gold den Resonator bildet und umliegende Farbstoffmoleküle als Verstärkermedium dienen. Quelle [7].

## 1.2 Aufgabenstellung und Vorgehensweise

In der vorliegenden Arbeit soll eine Verbesserung des Designs von Noginov et al. durch Verwendung von Nanodrähten untersucht werden.

Die Verwendung von Gold-Nanodrähten auf einer Goldsubstrat-Schicht ermöglicht insbesondere ein vergrößertes Modenvolumen für die Oberflächenplasmonen und hat dadurch das Potential, eine verbesserte Kopplung an den Farbstoff zu erzielen. Außerdem werden dadurch die hohen Anforderungen an das Verstärkermedium reduziert. Des Weiteren verspricht das Design einen effizienteren Ablauf des Spaser-Prozesses durch einen hohen  $\beta$ -Faktor und geringes Quenching. Dadurch wird erwartet, dass der Spaser bei einer verringerten Anregungsleistung betrieben werden kann.

Es soll zunächst ein neues Spaser-Design entworfen werden und dieses dann durch eine numerische Simulation optimiert werden. Zusätzlich soll das Ergebnis des Designs und der Simulationen im Experiment erprobt werden. Dazu ist eine Proben-Herstellung gemäß dem entwickelten Design notwendig.

## 2 Grundlagen

### 2.1 Maxwell-Gleichungen in Dielektrika und Metallen

Um die Ausbreitung elektromagnetischer Felder in dielektrischen und metallischen Materialien zu beschreiben, kann von den Maxwellgleichungen ausgegangen werden. Es wird hier keine vollständige Herleitung wiedergegeben. Eine ausführlichere Herleitung findet sich z. B. in [8].

Die Maxwell-Gleichungen beschreiben das elektromagnetische Feld im Rahmen der klassischen Physik in seiner räumlichen und zeitlichen Evolution. Die Herleitung der Maxwell-Gleichungen basiert auf den grundlegenden Kräftegesetzen der Elektro- und Magnetostatik. Ihr zeitliches Verhalten wird dadurch bestimmt, dass die elektrischen Felder von den elektrischen Ladungsträgern ausgehen, die magnetischen Felder aber durch bewegte Ladungsträger entstehen. Das heißt, sobald das elektrische oder das magnetische Feld zeitlich variiert, muss sich auch das jeweils andere ändern. Man erhält also ein gekoppeltes Differentialgleichungssystem für das elektrische Feld  $\vec{E}$  und die magnetische Flussdichte  $\vec{B}$ .

$$\nabla \cdot \vec{E} = \frac{\rho}{\epsilon_0} \quad (1a)$$

$$\nabla \cdot \vec{B} = 0 \quad (1b)$$

$$\nabla \times \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \quad (1c)$$

$$\nabla \times \vec{B} = \mu_0 \vec{j} + \mu_0 \epsilon_0 \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} \quad (1d)$$

Dies sind die sogenannten mikroskopischen Maxwell-Gleichungen und beschreiben die Felder unter Berücksichtigung der einzelnen Ladungsträger im Vakuum.  $\rho$  ist hier die Dichte der Ladungsträger,  $\vec{j}$  ist der Strom der Ladungsträger und  $\epsilon_0$  bzw.  $\mu_0$  sind die Permittivität bzw. Permeabilität des Vakuums.

Eine Beschreibung von realen Materialien mittels der mikroskopischen Maxwell-Gleichungen ist sehr aufwendig und führt zu falschen Ergebnissen, wenn die Welleneigenschaften der gebundenen Ladungsträger gemäß der Quantenmechanik nicht berücksichtigt werden. Es kann eine einfachere Beschreibung der elektromagnetischen Felder unter Anwesenheit von Materialien ohne die Einführung der Quantenmechanik gefunden werden, wenn man die Felder  $\vec{E}$  bzw.  $\vec{B}$  in die elektrische Flussdichte  $\vec{D}$  bzw. die magnetische Feldstärke  $\vec{H}$  übergehen lässt und die Polarisation  $\vec{P}$  bzw. die Magnetisierung  $\vec{M}$  des Materials hinzugenommen wird. Man erhält die Relationen:

$$\vec{D} = \epsilon_0 \vec{E} + \vec{P} \quad (2a)$$

$$\vec{H} = \frac{1}{\mu_0} \vec{B} - \vec{M}. \quad (2b)$$

Für lineare und isotrope Materialien kann man diese Relationen vereinfachen zu

$$\vec{D} = \epsilon_0 \epsilon \vec{E} \quad (3a)$$

$$\vec{H} = \frac{1}{\mu_0 \mu} \vec{B}, \quad (3b)$$

indem die Polarisation  $\vec{P}$  durch die relative Permittivität  $\epsilon$  und die Magnetisierung  $\vec{M}$  durch die relative Permeabilität  $\mu$  ausgedrückt wird.

Für nichtmagnetische Materialien, d. h.  $\vec{M} = 0$ , gilt außerdem  $\mu = 1$ . Für Edelmetalle (z. B. Gold, Silber) und dielektrische Materialien ist diese Annahme eine gute Näherung. Da im Weiteren Edelmetalle und Dielektrika betrachtet werden sollen, wird diese nichtmagnetische Annahme ( $\mu = 1$ ) im Weiteren verwendet.

Nimmt man außerdem die Leitfähigkeit  $\sigma$  hinzu (s. auch [8], S. 8 ff.), die über den Zusammenhang zwischen Strom und Feldstärke definiert ist ( $\vec{j} = \sigma \vec{E}$ ), so kann man die relative Permittivität  $\epsilon$  komplex schreiben als

$$\epsilon(\omega) = \epsilon_1(\omega) + i\epsilon_2(\omega).$$

Im Allgemeinen ist die relative Permittivität  $\epsilon$  von der Frequenz des eingestrahlten elektromagnetischen Feldes abhängig. Die Kreisfrequenz  $\omega$  bezeichnet hier die Kreisfrequenz des eingestrahlten elektromagnetischen Feldes.

Entsprechend kann man nun einen komplexen Brechungsindex mit dem Realteil  $n$  und dem Imaginärteil  $\kappa$

$$\tilde{n} = \sqrt{\epsilon} = n + i\kappa$$

berechnen und erhält folgende Relationen:

$$\epsilon_1 = n^2 - \kappa^2 \quad (4a)$$

$$\epsilon_2 = 2n\kappa \quad (4b)$$

$$n = \sqrt{\frac{\epsilon_1}{2} + \sqrt{\epsilon_1^2 + \epsilon_2^2}} \quad (4c)$$

$$\kappa = \frac{\epsilon_2}{2n}. \quad (4d)$$

Auch der Brechungsindex ist im Allgemeinen von der Winkelfrequenz  $\omega$  des eingestrahlten elektromagnetischen Feldes abhängig. Der komplexe Anteil  $\kappa$  des Brechungsindexes bestimmt die Absorption der Intensität des elektromagnetischen Feldes [8]. Er wird auch Extinktionskoeffizient genannt. Nimmt man einen exponentiellen Abfall  $\alpha$  der Feldintensität entlang eines Weges  $x$  an, so kann man die Intensität  $I(x)$  berechnen zu

$$I(x) = I_0 e^{-\alpha \cdot x}, \quad (5)$$

wenn  $I_0$  die Intensität für  $x = 0$  ist. Dabei hängt  $\alpha$  mit  $\kappa$  über die Relation

$$\alpha(\omega) = \frac{2\kappa(\omega)\omega}{c} \quad (6)$$

zusammen [8]. Darüber lässt sich dann eine Propagationslänge definieren, bei der die Intensität auf  $1/e$  abgefallen ist:

$$L = 1/\alpha = \frac{c}{2\kappa\omega} = \frac{\lambda_0}{4\pi\kappa}. \quad (7)$$

Aus den Maxwellgleichungen 1 c) und d) lässt sich eine Wellengleichung des elektromagnetischen Feldes ableiten, aus der wiederum der Zusammenhang zwischen der optischen Kreisfrequenz  $\omega$  und der Wellenzahl  $\vec{k}$  abgeleitet werden kann. Dieser Zusammenhang wird auch Dispersionsrelation genannt. Im Allgemeinen ergibt sich nach [8]

$$|\vec{k}|^2 = \epsilon(\vec{k}, \omega) \frac{\omega^2}{c^2} \quad (8)$$

mit der Lichtgeschwindigkeit

$$c = \frac{1}{\sqrt{\epsilon_0\mu_0}}.$$

## 2.2 Optische Eigenschaften von Metallen

Nähert man das Metall gemäß dem Drude-Modell durch ein frei im Metall bewegliches Elektronengas (Plasma) an, das sich gegenüber des Gitters aus Atomkernen bewegt, und werden alle Wechselwirkungen zwischen den Elektronen in einer effektiven Elektronenmasse  $m$  genähert, so lässt sich eine Abschätzung der relativen Permittivität  $\epsilon$  berechnen [8]. Man erhält dann für die relative Permittivität

$$\epsilon(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\gamma\omega} \quad (9)$$

mit der Plasmafrequenz

$$\omega_p = \sqrt{\frac{ne^2}{\epsilon_0 m}} \quad (10)$$

und der Elektronendichte  $n$  im Metall. Die Stoßrate  $\gamma$  gibt die mittlere Zeitspanne an, nach denen ein Elektron gegen einen Atomkern stößt und dadurch in seiner Bewegung ausgebremst wird.

Führt man außerdem eine Größe  $\epsilon_\infty$  ein, um die Polarisation des freien Elektronengases zu berücksichtigen, die durch die Befüllung der Energiezustände bis

zur Fermi-Energie entsteht [8], so lässt sich die Abschätzung für  $\epsilon$  umschreiben zu

$$\epsilon(\omega) = \epsilon_\infty - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\gamma\omega}. \quad (11)$$

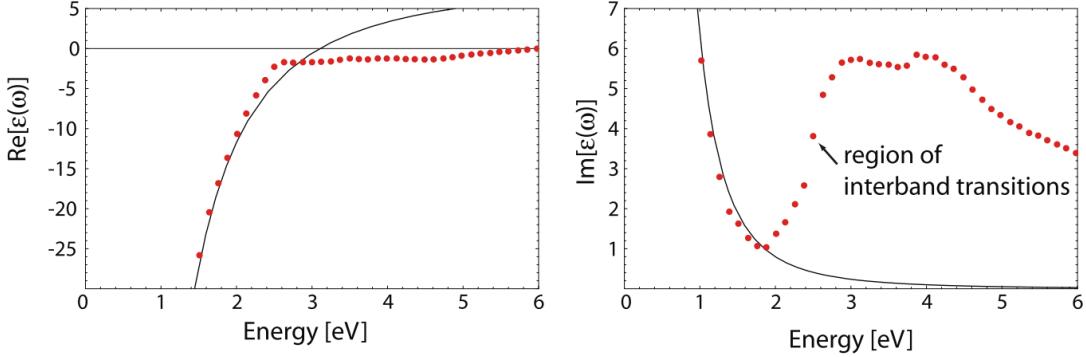


Abb. 2.1: Vergleich des Drude-Modells mit realen Messdaten am Beispiel von Gold. In schwarz ist die Gl. (11) und in rot sind die realen Messdaten dargestellt. Im Infraroten bis roten Bereich stimmt das Modell näherungsweise mit den Messdaten überein, für höhere Energien des einfallenden Lichts ergeben sich starke Abweichungen, die durch internen Energieübergängen hervorgerufen werden. Quelle: [8].

Diese Relation wurde in Abb. 2.1 zusammen mit realen Messdaten des Real- und Imaginärteils für Gold dargestellt. Man erkennt für kleine  $\omega$  eine recht gute Übereinstimmung, für große Frequenzen muss das Modell jedoch korrigiert werden. Im Bereich großer Frequenzen führen bei den Edelmetallen wie z. B. Gold und Silber Übergänge zwischen den Energieniveaus zu einer verstärkten Absorption im Metall, was einem vergrößerten Imaginärteil von  $\epsilon$  entspricht.

Da für die Funktion des Spasers Absorption vermieden werden muss, sollte die Wellenlänge im Bereich etwas unterhalb von 2 eV gewählt werden. Dies entspricht einer Wellenlänge von etwa 620 nm.

Für das Drude-Modell kann die allgemeine Dispersionsrelation Gleichung (8) unter der Annahme  $\omega > \omega_p$  geschrieben werden zu [8]

$$\omega^2 = \omega_p^2 + |\vec{k}|^2 c^2. \quad (12)$$

Diese Relation ist in Abbildung 2.2 dargestellt. Es zeigt sich, dass eine Ausbreitung von elektromagnetischen Wellen im Metall nur bei Frequenzen  $\omega > \omega_p$  erlaubt ist. In diesem Bereich können demnach die Volumenplasmonen auch unter der Oberfläche propagieren. Das bedeutet auch, dass Metalle oberhalb der Plasmafrequenz  $\omega_p$  durchsichtig erscheinen, und nur unterhalb dieser Plasmafrequenz die typischen metallischen Eigenschaften, wie z. B. eine hohe Reflektivität, besitzen. Die Plasmafrequenz  $\omega_p$  liegt typischerweise im Bereich von 5-15 eV,

d. h. deutlich im ultravioletten Bereich. Im sichtbaren Bereich gibt es keinerlei Ausbreitung elektromagnetischer Wellen im Metall. Unterhalb der Plasmafrequenz  $\omega_p$  können aber dennoch Oberflächenplasmonen auftreten, bei denen nur die Elektronen an der Oberfläche des Metalls bis zu einer gewissen Eindringtiefe mitschwingen können.

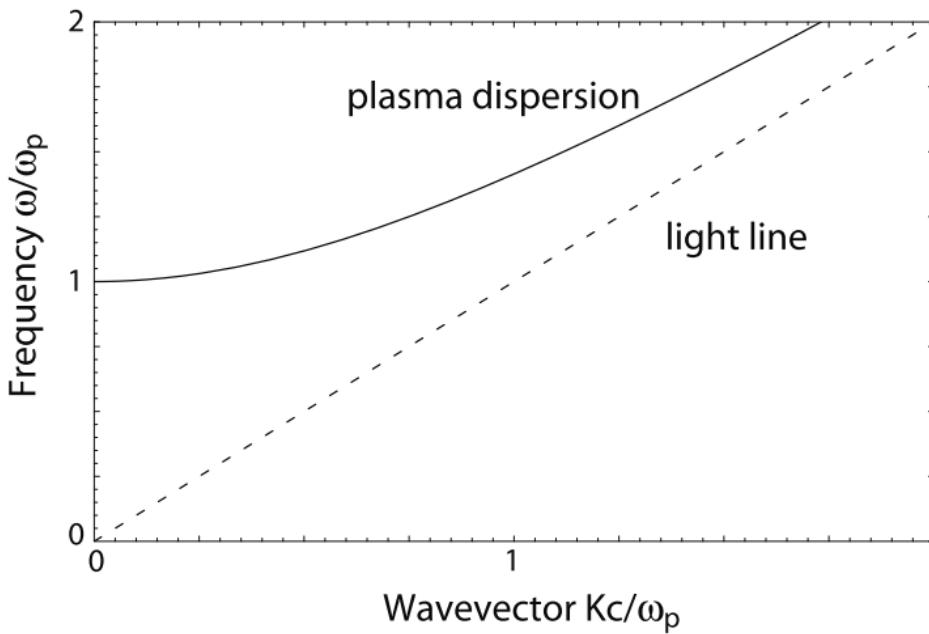


Abb. 2.2: Die Plasmon-Dispersionsrelation für das Drude-Modell. Ausbreitung elektromagnetischer Wellen im Metall findet nur bei  $\omega > \omega_p$  statt, d. h., oberhalb von  $\omega_p$  ist das Metall durchsichtig. Unterhalb der Plasmafrequenz  $\omega_p$  ergibt sich das metallische Verhalten. Quelle: [8].

## 2.3 Oberflächenplasmonen an metallisch-dielektrischen Grenzflächen

Ausgehend von den Maxwellgleichungen 1 c) und d) kann die sogenannte Helmholtz-Gleichung

$$\nabla^2 \vec{E} + k_0^2 \epsilon \vec{E} = 0 \quad (13)$$

abgeleitet werden. Für das magnetische Feld  $\vec{H}$  kann eine analoge Gleichung abgeleitet werden. Diese Gleichungen beschreiben die Ausbreitung elektromagnetischer Wellen im Allgemeinen. Die Wellenzahl  $k_0 = \frac{\omega}{c}$  ist die einer elektromagnetischen Welle im Vakuum. Unter Annahme einer metallisch-dielektrischen Grenzfläche, bei der z. B. die  $x$ -Achse als die Ausbreitungsrichtung angenommen wird, kann gezeigt werden, dass nur Moden mit transversal elektrischen Feldlinien

(TE) und transversal magnetischen Feldlinien (TM) an der Grenzfläche erlaubt sind [8].

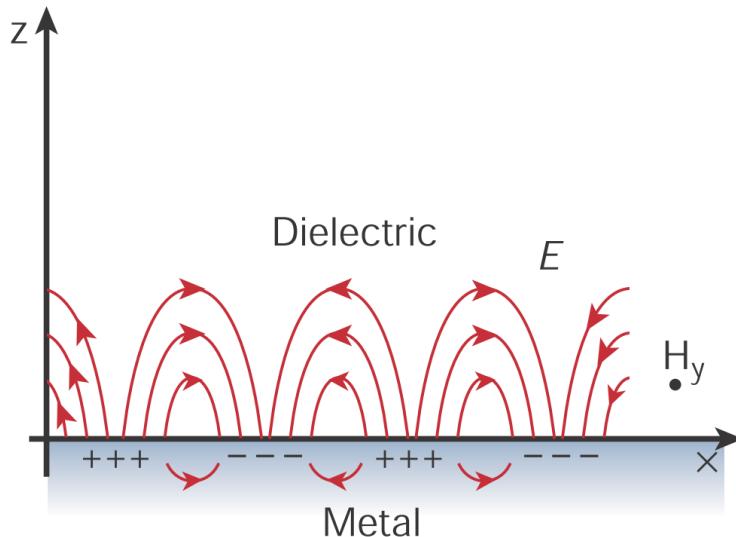


Abb. 2.3: Metallisch dielektrische Grenzfläche. Die  $x$ -Richtung ist die Ausbreitungsrichtung. Die Polarisierungen der Elektronen in Metall sind mit  $+++$  und  $- - -$  veranschaulicht. Die Pfeile im Metall veranschaulichen die Schwingungen der Elektronen. Außerhalb des Metalls entstehen elektromagnetische Wellen, die an die Oberfläche transversal magnetisch (TM) gebunden sind. Die Polarisierung und Schwingung der Elektronen im Metall zusammen mit den Schwingungen des elektromagnetischen Feldes im Dielektrikum sind die Oberflächenplasmonen (SPP). Quelle: [10]

Betrachtet man eine flache Grenzfläche zwischen Metall und Dielektrikum, so kann man weiterhin ableiten, dass nur die TM-Moden erlaubt sind [8]. Man kann außerdem zeigen, dass der Realteil der Permittivität in einem der beiden Materialien positiv und in dem anderen negativ sein muss, d. h., dass die Oberflächenwellen nur für metallisch-dielektrische Grenzflächen bei Frequenzen unterhalb der Plasmafrequenz  $\omega_p$  des Metalls erlaubt sind [8]. In Abbildung 2.3 ist dieser Fall veranschaulicht. Im Metall schwingen die Elektronen an der Oberfläche und bilden eine zeitlich wechselnde Polarisierung aus, die an die elektromagnetischen Felder im Dielektrikum gekoppelt ist. Da das Feld im Dielektrikum die TM-Mode besitzt, hat das elektrische Feld  $\vec{E}$  nur eine Komponente in  $x$  und  $z$  Richtung, und das magnetische Feld  $\vec{H}$  nur in  $y$  Richtung. Alle anderen Komponenten der Felder sind Null. Das Gebilde aus Polarisations- und elektromagnetischen Feldern im Dielektrikum ist das Oberflächenplasmon. Im Englischen wird es *surface plasmon polariton* (SPP) genannt. In Abbildung 2.4 ist die Komponente des elektrischen Feldes  $|E_z|$  in  $z$  Richtung dargestellt. Im metallischen Bereich klingt das Feld  $E_z$  deutlich schneller ab als im Dielektrikum.

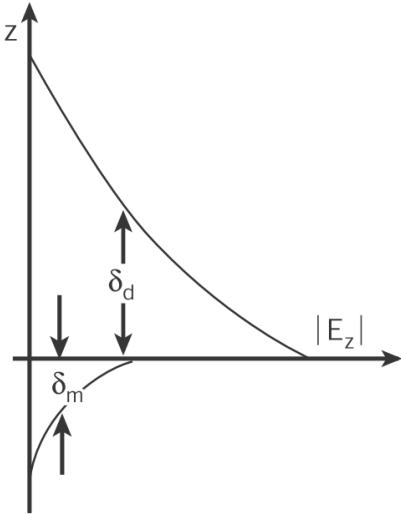


Abb. 2.4: Eindringtiefe  $\delta_m$  der Oberflächenplasmonen an der metallisch-dielektrischen Grenzfläche. Dargestellt ist die  $z$ -Komponente des elektrischen Feldes. Die Eindringtiefe im Metall  $\delta_m$  ist deutlich kleiner als die Eindringtiefe in das Dielektrikum  $\delta_d$ . Quelle: [10]

Die Wellenlänge des elektrischen Feldes in Ausbreitungsrichtung  $x$  ist an die Polarisationsschwingungen im Metall gebunden und stimmt daher nicht mit der Wellenlänge einer entsprechenden elektromagnetischen Welle im Dielektrikum überein. Die Wellenzahl in Ausbreitungsrichtung  $k_x$  wird Propagationskonstante  $\beta$  genannt. Für diese Propagationskonstante  $\beta$  lässt sich die Dispersionsrelation für Oberflächenplasmonen herleiten [8]:

$$k_x = \beta = k_0 \sqrt{\frac{\epsilon_1 \epsilon_2}{\epsilon_1 + \epsilon_2}}. \quad (14)$$

Man beachte, dass  $\epsilon_1$  und  $\epsilon_2$  hier die Permittivität der beiden Materialien bezeichnet und nicht den Real- und Imaginärteil, wie in den vorigen Kapiteln. Beide  $\epsilon$  sind hier im Allgemeinen komplex. Gleichung (14) ist in Abbildung 2.5 veranschaulicht. Umso weiter sich die Frequenz des elektromagnetischen Feldes des Oberflächenplasmons  $\omega_{sp}$  an die Plasmafrequenz  $\omega_p$  annähert, umso größer wird die Propagationskonstante  $\beta$ , die die Wellenzahl in Ausbreitungsrichtung angibt. Durch eine erhöhte Wellenzahl ergibt sich also eine verringerte Wellenlänge der Oberflächenplasmonen im Vergleich zu elektromagnetischen Wellen im Dielektrikum. Der Spaser kann also im Vergleich zum Laser einen verkürzten Resonator haben, ohne dass dabei die Anzahl von Wellen im Resonator verringert werden muss. Für den Bau eines Nanolasers ist dies eine wichtige Eigenschaft.

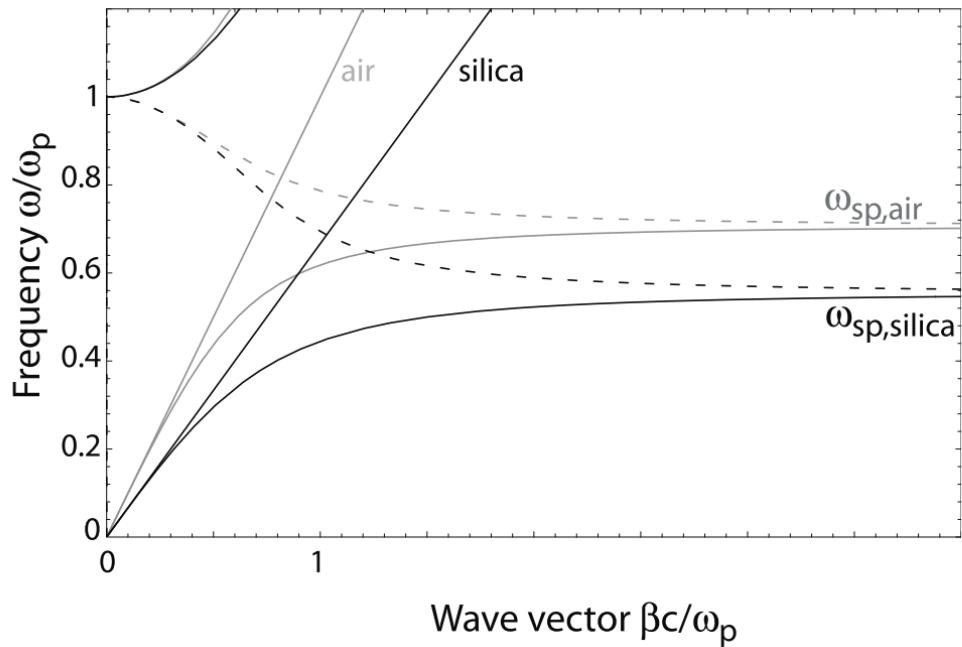


Abb. 2.5: Die Dispersionsrelation an einer metallisch-dielektrischen Grenzfläche unterhalb der Plasmafrequenz  $\omega_p$ . Es sind die Kurven dargestellt für Luft ( $\epsilon = 1$ ), Glas ( $\epsilon = 2.25$ ) und für zwei Grenzschichten zwischen jeweils einem Metall nach dem Drude-Modell mit wenig Dämpfung und Luft bzw. Glas. Die durchgezogenen Linien geben den Realteil, die gestrichelten den Imaginärteil der Wellenzahl  $\beta$  an. Für den Realteil der Propagationskonstante  $\beta$  ist eine Vergrößerung im Bereich der Plasmafrequenz  $\omega_p$  für die Oberflächenplasmonen gegenüber Licht zu erkennen. Oberhalb der Plasmafrequenz  $\omega_p$  existieren die Plasmen, die durch das Metall propagieren (s. Abbildung 2.2). Quelle: [8]

## 2.4 Spaserschwelle und Ratengleichungen

Da der Spaser eine Art Laser ist, der statt Photonen Oberflächenplasmonen nutzt, gibt es auch beim Spaser eine minimale Feldintensität, unterhalb derer keine Inversion erreicht wird. Bei Inversion befindet sich mehr Verstärkermedium im angeregten Zustand  $|e\rangle$  als im Grundzustand  $|g\rangle$ . Die Inversion des Verstärkermediums ist nötig, damit genügend stimuliert Emission auftreten kann und das Feld der Spaser-Mode verstärkt werden kann. Im Fall ohne Inversion würden die bereits in der Spaser-Mode befindlichen Plasmonen vom Verstärkermedium absorbiert werden, da die Plasmonen im Spaser ja genau in der Mode propagieren, an die auch das Verstärkermedium gekoppelt ist.

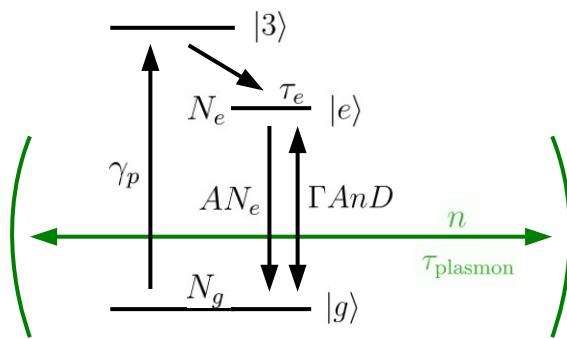


Abb. 2.6: Schema der Energieniveaus eines Emitters im Verstärkermedium eines Lasers (Spasers) mit drei Energieniveaus (schwarz). Der Spaser-Prozess findet zwischen dem angeregten Zustand  $|e\rangle$  und dem Grundzustand  $|g\rangle$  statt. Der dritte Zustand  $|3\rangle$  wird zum Anregen durch einen externen Pumplaser verwendet. Der grün gefärbte Teil stellt den Resonator der plasmonischen Mode schematisch dar.

Zum Erreichen der Inversion muss das Verstärkermedium genügend stark extern angeregt werden. Das heißt, es muss ein externes Feld, z. B. ein Laserfeld, zum Anregen des Verstärkermediums verwendet werden. Dazu ist es notwendig, dass die Anregung bei einer höheren Energiedifferenz als der Spaser-Übergang stattfindet. Das angeregte Verstärkermedium muss die durch das externe Laserfeld aufgenommene Energie in eine Anregung der Spaser-Mode umsetzen. Im einfachsten Fall ist dies durch ein Dreiniveausystem zu erreichen. In Abbildung 2.6 ist ein solches dargestellt. Der Energieunterschied zwischen Grundzustand  $|g\rangle$  und erstem angeregten Zustand  $|e\rangle$  bestimmt dann die Spaser-Frequenz, während der dritte Zustand  $|3\rangle$  eine kurze Lebensdauer besitzt und energetisch oberhalb des ersten angeregten Zustands liegt. In den meisten Fällen werden für den dritten Zustand breitbandige Absorptionslinien verwendet, die dann nicht-strahlend in den ersten angeregten Zustand übergehen. Durch ein vierter Energieniveau lässt sich die Effizienz meist noch erhöhen, wenn dieses vierte Energieniveau unterhalb des Grundzustands des Spaserübergangs liegt.

Im Betrieb des Spasers wird nun mit einer möglichst hohen Rate der Grund-

zustand  $|g\rangle$  entleert, wobei die Emitter dabei zunächst in den Zustand  $|3\rangle$  wechseln und möglichst sofort in den angeregten Zustand  $|e\rangle$  zerfallen. Der Pumpprozess sorgt also dafür, dass alle Emitter in den angeregten Zustand  $|e\rangle$  übergehen. Gleichzeitig findet aber auch ein Zerfall des angeregten Zustands  $|e\rangle$  in den Grundzustand  $|g\rangle$  statt, so dass die im kontinuierlichen Betrieb erreichten Besetzungen  $N_g$  bzw.  $N_e$  der Zustände  $|g\rangle$  bzw.  $|e\rangle$  von den Übergangsraten abhängen. Die Besetzungen geben an, wie viele Emitter des Verstärkermediums im entsprechenden Zustand sind. Da alle Emitter entweder im angeregten oder im Grundzustand sind, ist die Gesamtzahl der Emitter  $N = N_g + N_e$ . Die Inversion  $D$  berechnet sich aus der Differenz der Besetzungen der Energieniveaus am Spaserübergang zu

$$D = N_e - N_g, \quad (15)$$

so dass die Inversion  $D$  im Bereich von  $-N$  bis  $+N$  liegt. Bei  $D < 0$  liegt jedoch keine Inversion vor, da mehr Emitter des Verstärkermediums im Grundzustand sind. Sollen also die Besetzungszahlen berechnet werden, so müssen die Übergangsraten zwischen den Zuständen betrachtet werden. Zunächst wird mit einer Rate  $\gamma_p$  extern in den Zustand  $|3\rangle$  gepumpt, der wiederum direkt in  $|e\rangle$  zerfällt. Der Zustand  $|e\rangle$  zerfällt nun in den Grundzustand  $|g\rangle$  entweder durch Emission eines Plasmons in die Spaser-Mode, durch Emission eines Photons in beliebiger Raumrichtung, oder durch Abgabe seiner Energie an die Umgebung mittels nicht-strahlender Effekte. Das Verhältnis aus der Anzahl Emitter, die in einem bestimmten Zeitintervall in die plasmonische Mode abstrahlen ( $\gamma_{\text{pl.Mode}}$ ), zu der Anzahl Emitter, die im gleichen Zeitraum zerfallen ( $\gamma_{\text{tot}}$ ), wird  $\beta$ -Faktor genannt. Der  $\beta$ -Faktor ist also

$$\beta = \frac{\gamma_{\text{pl.Mode}}}{\gamma_{\text{tot}}} \quad (16)$$

Die Anzahl Plasmonen im Resonator sei mit  $n$  bezeichnet. Dann kann die Rate, mit der die Anzahl Emitter im angeregten Zustand erhöht wird, gemäß [5] geschrieben werden als

$$\frac{dN_e}{dt} = \gamma_p - AN_e - \Gamma AnN_e + \Gamma AnN_g \quad (17)$$

$$= \gamma_p - AN_e - \Gamma AnD \quad (18)$$

und die Rate, mit der die Anzahl Plasmonen  $n$  im Resonator vergrößert wird, ergibt sich zu

$$\frac{dn}{dt} = \beta AN_e + \Gamma AnD - \tau_{\text{plasmon}}^{-1} n. \quad (19)$$

Die spontane Zerfallsrate  $A$  des angeregten Zustands ist die Zerfallsrate  $A_0$  dieses Zustands im Vakuum vergrößert um den Purcellfaktor  $F$ , der durch den die Emitter umgebenden Resonator entsteht. Die spontane Zerfallsrate  $A$  des angeregten Zustands  $|e\rangle$  ist demnach

$$A = FA_0 = \tau_e^{-1} = \tau_{e,0}^{-1}F. \quad (20)$$

Der Purcellfaktor  $F$  ist demnach der Faktor, um den die Lebenszeit  $\tau_e$  des angeregten Zustands eines Emitters in der Mode im Resonator gegenüber dieses Emitters im Vakuum ( $\tau_{e,0}$ ) durch den Purcell-Effekt verkürzt wird:

$$F = \frac{\tau_{e,0}}{\tau_e} = \frac{A}{A_0}. \quad (21)$$

Der Faktor  $\Gamma$  gibt den Modenüberlagerungsfaktor an. Er ist das Verhältnis aus der Intensität  $I_{\text{gain}}$  der plasmonischen Mode, die mit dem Verstärkermedium überlagert ist, und der Gesamtintensität  $I_{\text{tot}}$  dieser Mode. Der Modenüberlagerungsfaktor  $\Gamma$  berechnet sich also zu

$$\Gamma = \frac{I_{\text{gain}}}{I_{\text{tot}}} \quad (22)$$

und liegt im Bereich zwischen 0 und 1. Photonische Laser haben meist einen Modenüberlagerungsfaktor von  $\Gamma = 1$ , während bei plasmonischen Lasern der Modenquerschnitt kleiner als die Wellenlänge der Plasmonen ist, so dass bei plasmonischen Lasern die Mode meist über das Verstärkermedium hinaus geht und der Modenüberlagerungsfaktor  $\Gamma < 1$  ist.

Gleichung (17) gibt an, dass die Anzahl Emitter im angeregten Zustand einerseits durch die Pumprate  $\gamma_p$  erhöht wird und andererseits durch spontane Emission  $AN_e$  verringert wird, die natürlich von der Anzahl angeregter Emitter  $N_e$  abhängt. Der dritte Term von Gleichung (17) gibt die stimulierte Emission an, bei der aus dem angeregten Zustand des Emitters ein stimuliertes Plasmon im Resonator erzeugt wird. Diese Rate  $\Gamma AnN_e$  wird durch die Anzahl Plasmonen im Resonator und die Anzahl angeregter Emitter  $N_e$  bestimmt. Der vierte Term in Gleichung (17) gibt an, dass außerdem eine spontane Anregung durch das Plasmonenfeld vom Grundzustand  $|g\rangle$  in den angeregten Zustand  $|e\rangle$  des Emitters stattfindet. Diese umgekehrte spontane Emission findet ebenfalls mit der spontanen Emissionsrate  $A$  statt und ist von der Anzahl Plasmonen  $n$  im Resonator abhängig. Solange der plasmonische Resonator nicht angeregt ist, kann dieser Vorgang nicht stattfinden. Der dritte und vierte Term in Gleichung (17) reduziert sich außerdem mit dem Modenüberlagerungsfaktor  $\Gamma$ , wenn ein Teil der Plasmonen nicht im Verstärkermedium propagiert. In Gleichung (18) sind die letzten beiden Terme unter Ausnutzung der Definition der Inversion  $D$  zusammengefasst.

In Gleichung (19) ist nun die Änderung der Anzahl Plasmonen im Resonator angegeben, die einerseits durch die spontane Emission des Zustands  $|e\rangle$  vergrößert und durch die Rate  $\Gamma AnD$  manipuliert wird. Außerdem unterliegen die

Plasmonen im Resonator einer gewissen Lebenszeit  $\tau_{\text{plasmon}}$ , die durch die Güte des Resonators  $Q$  und der Absorption  $\alpha(x)$  während der Propagation entlang  $x$  entsteht. Der Kopplungsterm  $\Gamma A n D$  geht bei Gleichung (19) mit dem umgekehrten Vorzeichen gegenüber Gleichung (18) ein, da die Energie angeregter Emittoren in Plasmonen übergeht und umgekehrt. In diesem Term sind also keine Verluste enthalten. In Gleichung (19) ist außerdem zu berücksichtigen, dass die durch spontane Emission erzeugten Plasmonen nur mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit  $\beta$  entstehen. Dies liegt daran, dass die Energie bei der spontanen Emission ebenfalls in Photonen und in nicht-strahlenden Prozessen verloren gehen kann. Dieser  $\beta$ -Faktor ist also der in Gleichung (16) eingeführte.

An dem Kopplungsterm  $\Gamma A n D$  kann außerdem verstanden werden, dass eine Spaserschwelle nur dann auftreten kann, wenn Inversion, also  $D > 0$ , vorliegt. Für  $D < 0$  drehen sich die Vorzeichen des Kopplungsterms um und es kann keine gesteuerte Emission auftreten.

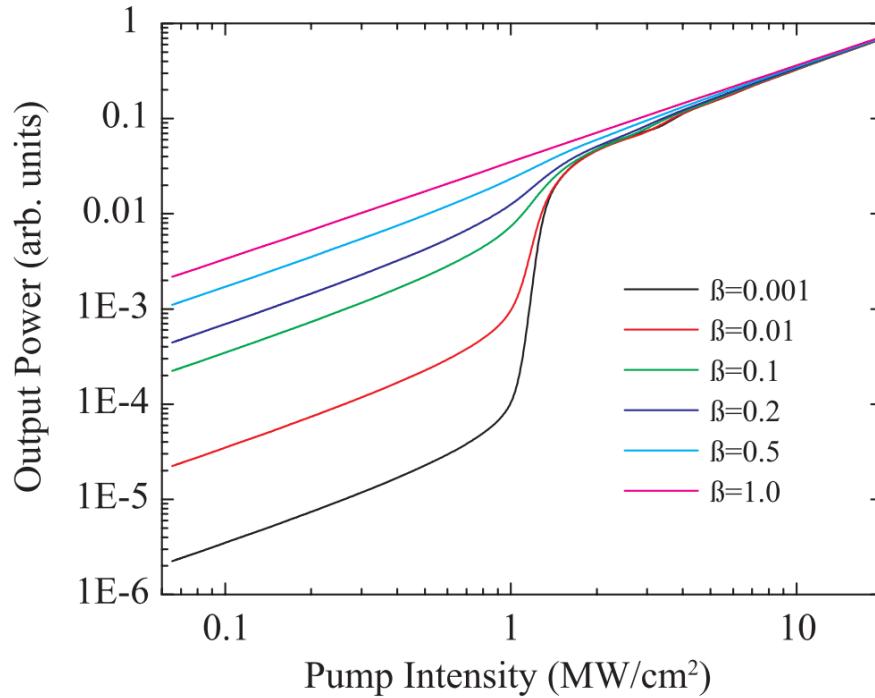


Abb. 2.7: Berechnete Feldintensität im Resonator in Abhängigkeit der Anregungsleitung für einen Spaser.  $\beta$  gibt den Faktor der Quelle: [5]

In Abbildung 2.7 ist das Ergebnis der Spaserschwelle für die Ratengleichungen (18) und (19) für verschiedene  $\beta$ -Faktoren dargestellt. Es ist die Intensität des plasmonischen Feldes in Abhängigkeit der Pumpleistung aufgetragen. Für die Berechnungen wurde der Modenüberlagerungsfaktor  $\Gamma = 1$ , der Purcellfaktor zu  $F = 10$  und die Lebensdauer der Plasmonen im Resonator zu  $\tau_{\text{plasmon}} = 7 \text{ fs}$

angenommen. Außerdem muss berücksichtigt werden, dass die Pumprate  $\gamma_p$  bereits eine Konversionseffizienz enthält. Man erkennt, dass für eine  $\beta$ -Faktoren eine besonders ausgeprägte Spaserschwelle entsteht. Das liegt daran, dass für kleine  $\beta$ -Faktoren unterhalb der Spaserschwelle die stimulierte Emission einen geringen Anteil besitzt, während bei  $\beta$ -Faktoren nahe Eins auch unterhalb der Spaserschwelle bereits stimulierte Emission auftritt. Durch die doppelt logarithmischen Achsen ist beim  $\beta$ -Faktor von 0.5 die Spaserschwelle besonders klein dargestellt. Für  $\beta = 1.0$  gibt es in dem Ansatz mit den Ratengleichungen (18) und (19) keine Verluste, abgesehen von dem Zerfall der Plasmonen im Resonator aufgrund deren endlicher Lebenszeit. Diese Verluste werden aber durch die Pumprate direkt ausgeglichen, so dass im Fall  $\beta = 1$  keine Spaserschwelle entsteht.

## 2.5 Numerische Simulationsmethoden

Wenn optische Phänomene in einfachen Umgebungen (z. B. im Vakuum) berechnet werden sollen, so kann dies im klassischen Fall einfach durch analytische Auswertung der Maxwell-Gleichungen gelöst werden. Im quantenmechanischen Fall kann durch Berechnung der Propagation der Wellenfunktion und Anwendung der relevanten Gleichungen, z. B. der Schrödinger-Gleichung ebenfalls analytisch vorgegangen werden. Sollen dann konkrete Werte berechnet werden, muss nur noch der letzte Schritt numerisch geschehen.

Handelt es sich bei der Umgebung, in der sich das elektromagnetische Feld ausbreitet, um eine kompliziertere Struktur mit verschiedenen Materialien und unter Umständen auch Materialien mit nichtlinearen Eigenschaften (z. B. Doppelbrechung, Dispersion), so ist eine analytische Auswertung meist nicht mehr möglich oder wenigstens mit zu hohem Aufwand verbunden. In diesem Fall werden numerische Simulationsmethoden eingesetzt, die die Propagation des elektromagnetischen Feldes (bzw. der Wellenfunktion im quantenmechanischen Fall) in einem diskretisierten Raum- und Zeitintervall auswertet. Dabei werden i. A. in mehreren Iterationen die Propagationsgleichungen auf einen Ausgangszustand angewendet und dieser Ausgangszustand für jede solche Iteration angepasst. Dabei können die Iterationen z. B. diskretisierte Zeitschritte sein. Das Feld wird auf einem ebenfalls diskretisierten, dreidimensionalen Gitter gespeichert. In einer Iteration wird dann auf dem gesamten Gitter die Propagationsgleichung numerisch angewendet.

Dabei sind außerdem an den Randpunkten die gewünschten Randbedingungen zu berücksichtigen. Als Randbedingung könnte z. B. ein konstanter Wert auf allen Randpunkten oder eine periodische Fortsetzung des gesamten Gitters vorliegen. Aber auch deutlich komplexere Randbedingungen sind denkbar und können bei numerischer Simulation berücksichtigt werden.

Bei den Propagationsgleichungen handelt es sich häufig um gekoppelte Differentialgleichungen, da diese analytisch nur schwer oder gar nicht lösbar sind.

Von dem soeben beschriebenen Simulationsprozess gibt es einige Variationen mit leichten und z. T. auch größeren Unterschieden. Die genaue Art des benötigten Algorithmus hängt sehr stark von der konkreten Problemstellung ab. In der vorliegenden Arbeit wird nur eine Simulation des elektromagnetischen Feldes gemäß der Maxwell-Gleichungen benötigt. Die Maxwell-Gleichungen sind gekoppelte Differentialgleichungen ersten Grades im Ort und in der Zeit. Für diese Art von Problemstellung kann grundsätzlich die *finite difference time domain* ([FDTD](#)) Methode verwendet werden. Sie ist, abgesehen von Optimierungen, die Implementierung des oben beschriebenen Simulationsablaufs angewendet auf die Simulation von elektromagnetischen Feldern und Propagation mittels der Maxwellgleichungen.

Grundsätzlich handelt es sich bei solchen Methoden um Näherungen, da sich bei jedem Iterationsschritt Rundungsfehler aufgrund der numerischen Berech-

nung ergeben. Zur Beschleunigung der Berechnungen wird zudem häufig auch eine Vereinfachung der Problemstellung gewählt, so dass weitere Abweichungen entstehen können. Bei der analytischen Behandlung des Problems treten Näherungen nur im letzten Schritt der numerischen Berechnung auf und sind meist vollkommen vernachlässigbar. Die größte Schwierigkeit in Bezug auf die Genauigkeit eines solchen Algorithmus besteht in der Fortpflanzung der Fehler bei jeder Iteration.

Da bei der **FDTD** Methode die Diskretisierung des Raumes mit einer konstanten Gitterkonstante erfolgt, muss für komplexe Nanostrukturen eine sehr feine Diskretisierung gewählt werden, um die Abweichungen gering zu halten. Das führt wiederum zu einer hohen Rechenzeit. Da auch die Schrittweite in der Zeit möglichst kurz gewählt werden muss, wächst die Rechenzeit ungefähr mit der vierten Potenz der Anzahl Gitterpunkte einer Dimension.

Wird eine komplexe Struktur simuliert, so ist die *finite element method* (**FEM**) eine elegantere Methode. Bei der **FEM** wird der Raum in unterschiedlich große meist dreieckige Bereiche unterteilt, so dass die Diskretisierung im Bereich von komplexen Strukturen feiner eingestellt werden kann, ohne den gesamten Simulationsbereich mit der gleichen Auflösung simulieren zu müssen. Die Maxwell-Gleichungen werden dann mit einer guten Annäherung nur auf den Rändern der Raumelemente berechnet. Dies verkürzt im Gegensatz zur **FDTD** Methode die Rechenzeit bei der Simulation von Nanostrukturen extrem. Aus einigen Tagen Rechenzeit können leicht wenige Minuten werden. Die **FEM** berechnet außerdem die Feldverteilung nur für eine bestimmte Frequenz und muss nicht alle Frequenzen berücksichtigen, was im Falle der Simulation eines Resonators von Vorteil ist. Der Nachteil der **FEM** ist, dass sehr viel mehr Speicherplatz während der Simulation benötigt wird, da eine Abbildung des dreieckigen Gitters auf den linear angeordneten Speicher des Computers erforderlich ist. Soll eine kurze Rechenzeit erreicht werden, so muss also viel schneller Speicher verfügbar sein.

Je nach konkreter Problemstellung können weitere Vereinfachungen eingeführt werden. Die hier verwendete kommerziell erhältliche Software JCMwave [18] bietet hierfür einige eingebaute Möglichkeiten. Dazu zählt z. B. die Simulation einer elektromagnetischen Welle, die sich nur in z-Richtung ausbreitet, und für die x,y-Ebene werden dann mittels zweidimensionaler Simulation die Moden bestimmt. Diese Näherung ist insbesondere für gerade Wellenleiter geeignet und kann hier zur Simulation des Nanolasers eingesetzt werden.

## 2.6 Ellipsometrie

Die Ellipsometrie ist ein optisches, experimentelles Verfahren zum Messen dünner Schichtendicken. Dabei wird mit einem polarisierten Laser mit der Wellenlänge  $\lambda$  unter einem bestimmten Winkel auf die zu untersuchende Probe eingestrahlt und mittels eines Polarisationsanalysators das von der Probe reflektierte Licht untersucht. Für eine vollständige Messung der Schichtdicke ist eine Veränderung der Polarisation des Lasers sowie ein Durchfahren des Analysators erforderlich. Durch eine Photodiode im Analysator wird die Intensität in Abhängigkeit der Polarisation des Lasers und des Analysators gemessen. Aus den Minima bzw. Maxima dieses Intensitätsverlaufs kann dann durch geeignete Anpassung die Schichtdicke berechnet werden.

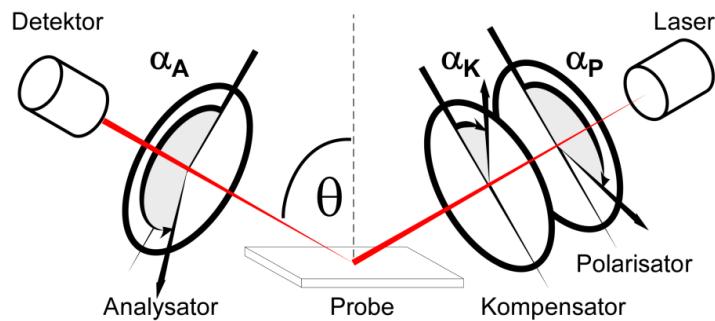


Abb. 2.8: Illustration des Messaufbaus für die Ellipsometrie. Der Aufbau besteht aus einem Laser, der mittels des Polarisationsfilters P linear polarisiert und mit dem Kompensator K zirkular polarisiert wird. Der Kompensator K ist eine  $\lambda/4$ -Platte. Unter dem Winkel  $\Theta$  zur Normale der Probenoberfläche wird die Probe beleuchtet. In Reflektion wird mittels des Analysators A und einer Photodiode die insgesamt transmittierte Laserleistung gemessen. Der Analysator A ist ein Polarisationsfilter. Der Polarisator P und der Analysator A lassen sich automatisiert drehen, um die Leistung an der Photodiode zu automatisiert zu minimieren. Quelle [16]

In Abbildung 2.8 ist eine Illustration des Messaufbaus für die Ellipsometrie gezeigt. Der Laser wird mittels des Polarisationsfilters P und dem Kompensator K so polarisiert, dass von der Probe linear polarisiertes Licht reflektiert wird. Das polarisierte Laserlicht wird unter dem Einfallswinkel  $\Theta$  zur Normalen der Probenoberfläche auf diese eingestrahlt. Ist die Probe mit einem Schichtsystem mit dünnen Schichten versehen, so treten zwischen den Schichten je nach Brechungsindizes der einzelnen Schichten unterschiedliche Reflektionskoeffizienten für die verschiedenen Polarisationen gemäß der Fresnellschen Gleichungen auf. Hinter der Probe wird wieder unter dem Winkel  $\Theta$  das reflektierte Licht der Probe analysiert. Zur Analyse wird ein Polarisationsfilter (Analysator A) vor einer Photodiode verwendet.

Der Analysator A bzw. der Polarisationsfilter P kann von einer Software des Mess-Computers mittels Schrittmotoren automatisch im Winkel  $\alpha_A$  bzw.  $\alpha_P$  gedreht werden. Der Drehwinkel  $\alpha_K$  des Kompensators K ( $\lambda/4$ -Platte) muss in einem Kalibrierungsschritt vor der Messung manuell eingestellt werden. Er wird

auf  $\alpha_K = 45^\circ$  eingestellt, so dass für  $\alpha_P = 0^\circ$  und  $\alpha_P = 90^\circ$  zirkular polarisiertes Licht auf die Probe fällt. Für  $\alpha_P = 45^\circ$  oder  $\alpha_P = -45^\circ$  fällt auf die Probe linear polarisiertes Licht.

Die Messung läuft nun so ab, dass zunächst eine Probe mit maximal einer unbekannten Schichtdicke und bekannten Brechungsindizes aller Schichten eingelegt wird. Dann wird mittels der automatisierten Winkelverstellung des Analysators A und des Polarisators P das Minimum an transmittierter Leistung gesucht. Aus den gefundenen Winkeln  $\alpha_A$  und  $\alpha_P$  wird dann mittels numerischer Berechnung die Schichtdicke bestimmt. Dabei ist zu beachten, dass die Auswertung der Schichtdicke zu periodischer Wiederholung führt, so dass die ungefähre Schichtdicke vorher bekannt sein muss. Je nach Brechungsindizes der Schichten der verwendeten Probe muss die unbekannte Schichtdicke unterschiedlich genau vorausgeschätzt worden sein.

Mit der Ellipsometrie können Schichten im Bereich einiger Nanometer bis einiger hundert Nanometer Dicke vermessen werden. Bei der Vermessung eines Schichtsystems mit mehreren unbekannten Schichten muss während der Herstellung jeweils die letzte aufgetragene Schicht gemessen werden, und die anderen müssen vorher gemessen worden sein. Die Software zur numerischen Berechnung kann viele unterschiedliche Schichten berücksichtigen. Dennoch lässt sich aus einer Messung nur eine Schichtdicke bestimmen.

Bei der Vermessung bekannter Schichtdicken ist mittels der Ellipsometrie auch die Vermessung des Brechungsindizes der Schichten der Probe möglich.



### 3 Bisherige Konzepte für Spaser und Plasmon-Nanolaser

#### 3.1 Farbstoff-Spaser mit Nanopartikeln

Im Jahr 2009 wurde von Noginov et al. ein Spaser-Konzept vorgestellt und umgesetzt, das aus mit Farbstoffmolekülen umgebenen Goldkugeln besteht [7]. Der Farbstoff wird mittels einer mit Farbstoff versetzten Glasschicht um die Goldkugeln herum platziert. Als Farbstoffmolekül wurde Oregon Green 488 (OG-488) verwendet. Der Goldkern hat einen Durchmesser von 14 nm und die gesamte Kugel einschließlich des Farbstoffes hat einen Durchmesser von 44 nm. Dazwischen liegt eine sehr dünne Glasschicht, die keinen Farbstoff enthält. In Abbildung 3.1a ist eine Illustration einer solchen mit Farbstoff umgebenen Goldkugel gegeben.

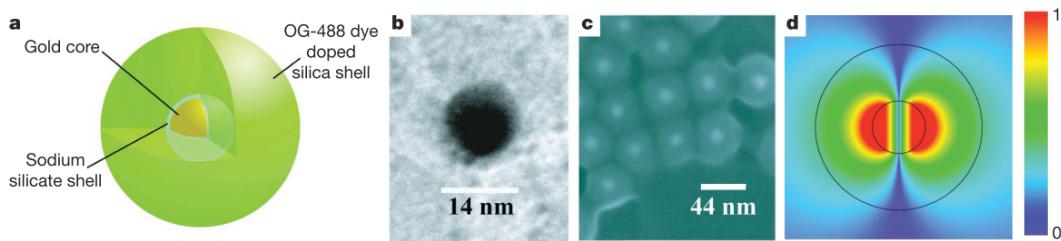


Abb. 3.1: (a) Goldkugel mit umgebendem Farbstoff. (b) Größe einer Goldkugel aufgenommen mit einem Transmissionselektronenmikroskop. (c) Ansammlung einiger Nanopartikel aufgenommen mit einem Raster-elektronenmikroskop. (d) Feldstärke einer Simulation der Spaser-Mode eines Nanopartikels bei 525 nm Wellenlänge. Die beiden Kreise geben die 14 nm Goldkugel sowie das 44 nm große Nanopartikel an. Quelle: [7].

Der Spaser wird mit einem gepulsten Laser bei einer Wellenlänge von 466 nm optisch gepumpt. Der Laser hat eine Pulsrate von 40 MHz und eine Pulslänge von weniger als 90 ps. Es wurden spektrale Messungen aufgenommen sowie eine Laserschwelle gemessen. Die Messdaten der Laserschwelle sind jedoch nur mit sehr wenigen Messpunkten aufgenommen, was eine Interpretation stark erschwert. Dennoch leiten die Autoren ab, dass es sich um einen funktionierenden Spaser handelt. Die von den Autoren aufgenommenen Messdaten sind in Abbildung 3.2 gezeigt.

Die Goldkugeln werden nicht einzeln, sondern als Ansammlung von mehreren verwendet, so dass genügend Signal von mehreren Spasern aufgenommen werden kann. Dies hat grundsätzlich aber auch den Nachteil, dass kollektive Effekte, wie z. B. zufälliges Lasing (*random lasing*) zwischen den Nanopartikeln auftreten kann.

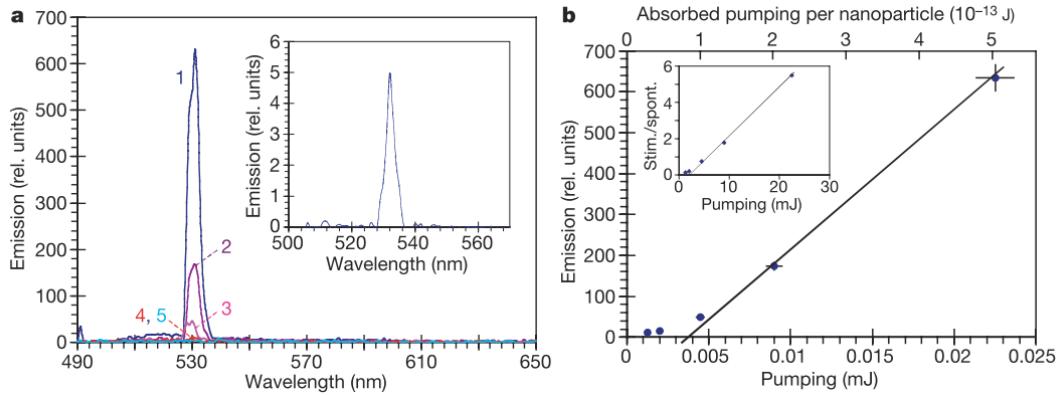


Abb. 3.2: (a) Fluoreszenzlicht des Spasers von Noginov et al. bei verschiedenen Anregungsleistungen. Das Spektrum (1) wurde bei 22.5 mJ, (2) bei 9 mJ, (3) bei 4.5 mJ (4) bei 2 mJ und (5) bei 1.25 mJ Pumpenergie des Anregungslasers aufgenommen. Der Bildeinsatz in (a) zeigt das Spektrum bei stimulierter Emission nach mehr als 100-facher Verdünnung der Probe. (b) Messdaten zur Spaserschwellen. Fluoreszenz des Spasers in Abhängigkeit der Pumpleistung. Schon bei sehr kleiner Anregungsleistung ist ein Anstieg der Steigung dieser Kurve zu erkennen. Der Bildeinsatz in (b) zeigt das Verhältnis aus Intensität der spektralen Spitze zum spektralen Untergrund. Auch in diesem Bild ist der Anstieg der Steigung zu erkennen. Das heißt, der Anstieg resultiert nicht aus dem Hintergrund. Quelle: [7].

### 3.2 Halbleiterbasierter Spaser mit Nanodraht

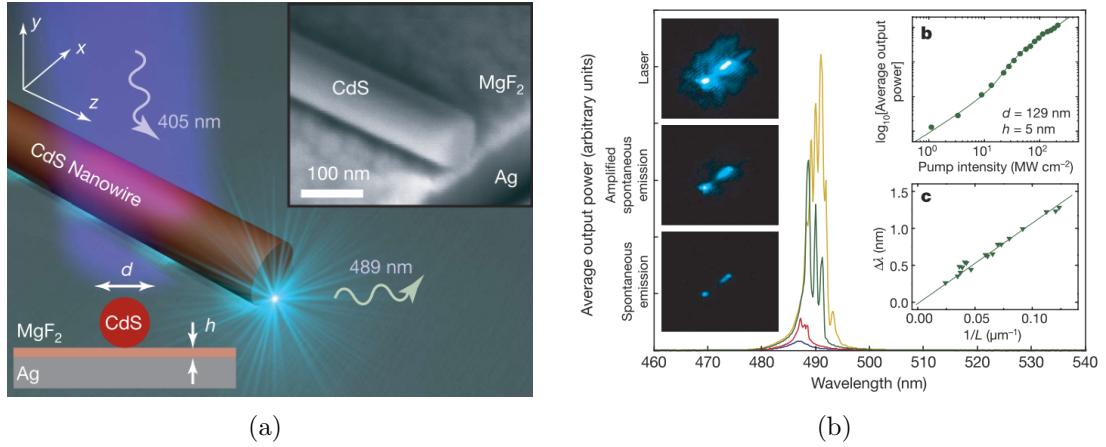


Abb. 3.3: (a) Aufbau des Halbleiter-Spasers von Oulton et al. Der Spaser besteht aus einem Halbleiter-Nanodraht, der auf einem Silbersubstrat liegt. Dazwischen ist eine Abstandsschicht eingefügt. (b) Messergebnisse des Halbleiter-Spasers von Oulton et al. Man erkennt in der oberen eingefügten Grafik (b) eine Überschreitung der Laserschwelle an dem Anstieg der Steigung der Emittierten Intensität pro Anregungsleistung. Die vier Spektren zeigen den Übergang von spontaner Emission ( $21.25 \text{ MW/cm}^2$ ) zu verstärkter spontaner Emission ( $32.5 \text{ MW/cm}^2$ ) zum Spasing ( $76.25 \text{ MW/cm}^2$  und  $131.25 \text{ MW/cm}^2$ ). Im grünen ( $76.25 \text{ MW/cm}^2$ ) und im gelben ( $131.25 \text{ MW/cm}^2$ ) Spektrum ist außerdem der für den Spaser typische Fabry-Perot-Effekt des Resonators zu erkennen. Die drei Kamerabilder zeigen die Abstrahlung in den drei verschiedenen Zuständen. Quelle: [4].

Ebenfalls im Jahr 2009 wurde von Oulton et al. ein Spaser bestehend aus einem Halbleiter-Nanodraht auf einer metallischen Fläche vorgestellt. Zwischen dem Nanodraht und der metallischen Fläche wird eine isolierende Abstandsschicht von 5 nm Dicke eingefügt. Unter anderem in dem dadurch erzeugten Zwischenraum bildet sich die Mode des Spasers aus, d. h., in diesem Bereich ist die Intensität der sich entlang des Drahtes ausbreitenden Oberflächenplasmonen besonders hoch. Durch dieses Design kann erreicht werden, dass die Modenintensität im Metall gering ist und dadurch die Propagationsverluste reduziert werden [4].

Die Metallfläche besteht bei Oulton et al. aus Silber, der Nanodraht aus Cadmiumsulfid (CdS). Die Abstandsschicht wird mit Magnesiumfluorid ( $\text{MgF}_2$ ) realisiert. Die Drahtlänge liegt im Bereich von  $10 \mu\text{m}$  bis  $20 \mu\text{m}$ .

Die Anregung erfolgt auch hier optisch mit einem gepulsten Laser bei 405 nm Wellenlänge und die Emission liegt bei 489 nm Wellenlänge. Abbildung 3.3a veranschaulicht den Betrieb eines solchen Spasers und in Abbildung 3.3b sind die Messdaten zu diesem Spaser gezeigt, die auch das Spasing nachweisen. Alle Messungen an diesem Spaser wurden bei tiefen Temperaturen  $< 10 \text{ K}$  durchgeführt.

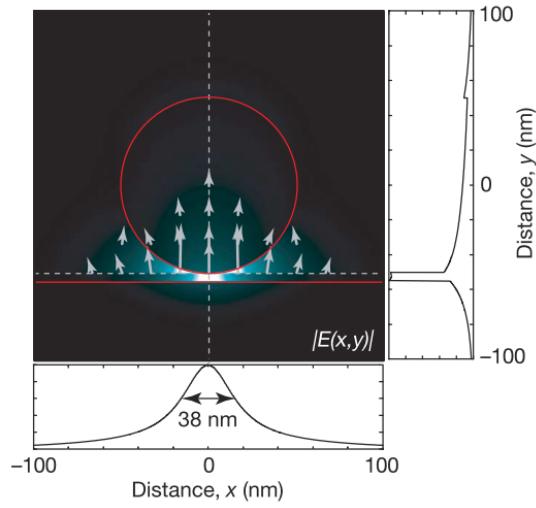


Abb. 3.4: Dargestellt ist die Feldintensität einer plasmonischen Mode im zweidimensionalen Querschnitt. In der nicht-leitenden Zwischenschicht ist fast die gesamte Intensität konzentriert, so dass nicht-strahlende Absorption im Metall vermieden wird. Quelle: [4].

In Abbildung 3.4 ist die Feldintensität für einen zweidimensionalen Schnitt von Oulton et al. durch Simulation berechnet worden und dargestellt. Es lässt sich die starke Konzentration des Feldes auf die nicht-leitende Zwischenschicht zwischen Nanodraht und Substrat erkennen.

Oulton et al. hat das Design für verschiedene Drahtdurchmesser und auch verschiedene Abstände zwischen Draht und Silbersubstrat vermessen. Er vergleicht außerdem auch das Verhalten mit photonischen Lasern, die höhere Drahtdurchmesser besitzen und bei denen das Substrat gegen Quarzglas ersetzt wird.

### 3.3 Nanoresonator aus metallischem Nanodraht mit Farbstoffschicht

Bei dem 2012 vorgestellten Konzept für einen Nanoresonator mit stark gesteigerter spontaner Emission von Russel et al. wird statt einem Halbleiter-Nanodraht bei Oulton et al. ein metallischer Nanodraht verwendet. Das Verstärkermedium wird mittels eines Farbstoffes in die Zwischenschicht integriert. Zwischen dem Farbstoff ( $\text{Alq}_3$ ) und dem Silbersubstrat wird eine weitere Abstandsschicht eingefügt, damit der Farbstoff im Bereich der höchsten Intensität der plasmonischen Mode liegt [6].

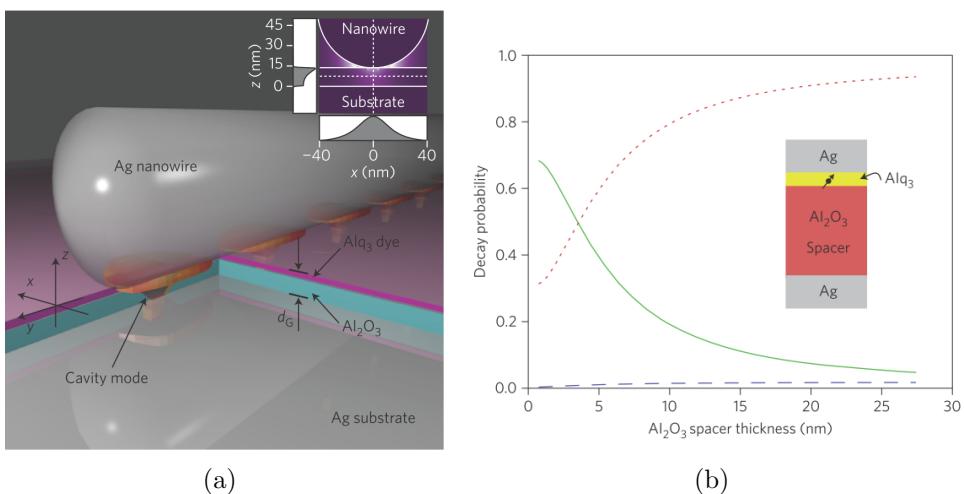


Abb. 3.5: Von Russel et al. verwendetes Design für einen Nanoresonator mit stark gesteigerter spontaner Emission. (a) Das Design besteht aus einer Silberfläche, auf der eine Aluminium-Oxidschicht sowie eine Schicht mit Farbstoffen aufgebracht ist. Auf das Schichtsystem sind Silber-Nanodrähte gelegt. (b) Simulationsergebnisse für den  $\beta$ -Faktor (grün) und die Verluste im Metall (rot gestrichelt) für verschiedene Schichtdicken der  $\text{Al}_2\text{O}_3$  Abstandsschicht. Die eingefügte Grafik zeigt den für die Simulation verwendeten Schichtaufbau und den verwendeten Dipol. Quelle: [6]

Entlang des Drahtes bildet sich so wie auch bei Oulton et al. ein Resonator aus, dessen Mode auf die Zwischenschicht konzentriert wird. An den Enden des Drahtes bilden sich Reflexionen der Oberflächenplasmonen, so dass ein geschlossener Resonator entlang des Drahtes verfügbar ist. In Abbildung 3.5a ist eine Illustration des Nanodrahtes auf dem Schichtsystem gegeben. Der Drahtdurchmesser liegt bei ungefähr 100 nm, und die Drahtlänge im Bereich zwischen 1  $\mu\text{m}$  und 30  $\mu\text{m}$ . Die eingefügte Grafik in Abbildung 3.5a zeigt außerdem die Feldintensität der plasmonischen Mode. In Abbildung 3.5b ist das Ergebnis einer Simulation gezeigt, bei der nur der Bereich direkt unterhalb des Nanodrahtes als flaches Schichtsystem berücksichtigt wurde (s. eingefügte Grafik in Abbildung 3.5b). Es sind die Ergebnisse für verschiedene Dicken der aus  $\text{Al}_2\text{O}_3$  bestehenden Abstandsschicht für den  $\beta$ -Faktor (grün) und für die Verluste im Metall (rot

gestrichelt) gezeigt. Für große Abstandsschichten von etwa 25 nm geht fast die gesamte Intensität im Metall verloren.

Mittels der Messung von Spektren wird von den Autoren nachgewiesen, dass sich im Zwischenraum zwischen Nanodraht und Schichtsystem entlang des Drahtes ein plasmonischer Resonator bildet. Die Spektren und auch die Lebenszeitmessungen sind in Abbildung 3.6 für jeweils eine Messung mit und ohne Nanodraht gezeigt. Die spektral aufgelöste Fluoreszenz in Abbildung 3.6a des Farbstoffes ohne Nanodraht wird von einem Fabry-Perot-Effekt überlagert, wenn zur Position des Nanodrahtes auf der Probenoberfläche übergegangen wird. Die in Abbildung 3.6b gezeigten Lebenszeitmessungen zeigen, dass es einen Purcell-Effekt durch Verwendung des Nanodrahtes gibt. Die Autoren schätzen daraus ab, dass die Steigerung der spontanen Emission gegenüber des Farbstoffes in Luft in der Größenordnung von 1000 liegt [6]. Dabei wird zum einen die Lebenszeit durch Verwendung des Nanodrahtes verkürzt, und zum anderen wird auch die Intensität des Fluoreszenzlichts um einen Faktor von etwa 50 erhöht (s. Abbildung 3.6b).

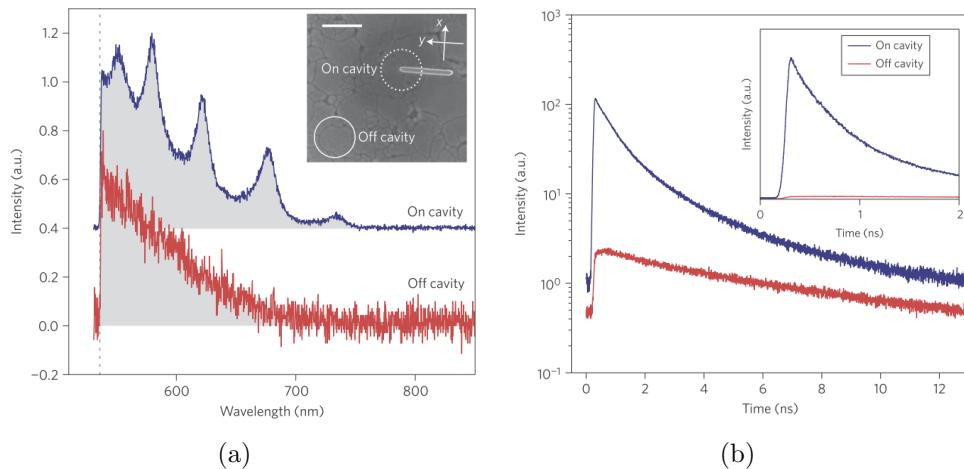


Abb. 3.6: Messdaten zum Nanoresonator von Russel et al. (a) Spektren der Fluoreszenz des Schichtsystems ohne (rot) und mit (blau) Nanodraht. Man erkennt die Fabry-Perot-Peaks im Spektrum mit Nanodraht, d. h. es wurde von Russel et al. nachgewiesen, dass sich entlang des Drahtes ein plasmonischer Resonator ausbildet. (b) Lebenszeitmessungen für die beiden Fälle aus (a). Mit Nanodraht ist die Lebenszeit der Emitter im Farbstoff reduziert und die Emissionsintensität des Farbstoffes ist erhöht gegenüber dem Fall ohne Nanodraht. Quelle: [6]

## 4 Realistische Designüberlegungen für einen Plasmon-Nanolaser

### 4.1 Analyse der bisherigen Spaser-Konzepte

Basierend auf den im Kapitel 3 vorgestellten Spaser-Systemen wird im Folgenden ein Design ausgearbeitet, das die Vorteile dieser Ansätze kombinieren soll. Von Kewes et al. wurde die Funktion des Spasers von Noginov et al. in Frage gestellt. In Zusammenarbeit mit theoretischen Physikern aus der Arbeitsgruppe von Herrn Prof. Kurt Busch wurde gezeigt, dass es unmöglich ist, mit dem Ansatz von Noginov einen funktionierenden Spaser zu bauen [15]. Es ist anzunehmen, dass die Krümmung in den Messdaten der Emission über der Anregungsleistung nur dadurch zustande kommt, dass bei sehr wenig Anregungsleistung dennoch ein gewisser Untergrund der Detektion vorhanden ist. Somit ergibt sich eine scheinbare Emission des Spasers bei zu geringer Anregungsleistung. In Wirklichkeit ist aber der Untergrund in der Detektion der Emission des Spasers viel größer als die Emission des Spasers. In diesem Bereich ergibt sich auch eine geringe Steigung der gemessenen Emission bei Erhöhung der Anregungsleistung. Erst bei genügend großer Anregungsleistung wird tatsächlich die Emission gemessen. Dieser Übergang erscheint dann wie eine Spaserschwelle. Vergleicht man die Kurven zur Laserschwelle von Noginov et al. mit denen von Oulton et al., so ist bei Oulton eine viel deutlichere Unterscheidung zwischen Laserschwelle und Untergrund zu erkennen. Bei Oulton et al. ist es zudem möglich gewesen, die Anregungsleistung so weit zu erhöhen, dass keine weitere Verstärkung durch das Verstärkermaterial mehr möglich ist und somit bei weiterer Erhöhung der Anregungsleistung die Steigung wieder zurückfällt. Dieses Verhalten fehlt bei Noginov et al. Der wesentliche Grund, aus dem das Design von Noginov et al. nicht funktionieren kann, ist, dass die Emission des Farbstoffes im Metall quencht. Das bedeutet, dass die Energie im Farbstoff weder als Photonen noch als die gewünschten Oberflächenplasmonen abgestrahlt wird, sondern im Metall durch nicht-strahlende Prozesse vernichtet wird. Dadurch wird lediglich das Metall erwärmt. Zudem ist das Volumen des Spasers grundsätzlich sehr klein und die Güte des Resonators ist sehr gering, so dass auf einem sehr kleinen Volumen eine extrem hohe Anzahl an Emittoren untergebracht werden muss, um die geringe Güte des Resonators auszugleichen. Um diese extrem hohe Anzahl an Emittoren in einem sehr kleinen Volumen unterzubringen, muss die Konzentration des Farbstoffes absurd hoch gewählt werden, so dass bereits im Farbstoff Quenching auftreten würde [15].

Bei dem plasmonischen Nanoresonator von Russel et al. ist die eigentliche Spaserschwelle nicht gezeigt worden. Es wurde lediglich gezeigt, dass eine fast 1000-fache Verstärkung der Emission durch die Verwendung des Nanodraht-Resonators im Gegensatz zur spontanen Emission in Luft möglich war [6]. Außerdem ist dort gezeigt, dass der Nanodraht auf die plasmonische Mode als Resonator wirkt. Das

halbleiterbasierte Design von Oulton et al. ist in Bezug auf die Integration in größere optische Systeme nicht sehr flexibel und muss bei tiefen Temperaturen betrieben werden. Es gibt dort nur zwei Größen, die variiert werden können. Das sind der Durchmesser des Nanodrahtes und der Abstand zwischen dem Draht und dem Substrat. Das Design von Noginov et al. ist hingegen mit einer Farbstoffschicht umgeben, die sich leichter in umgebende Strukturen integrieren ließe. Außerdem lässt sich durch Verwendung des Farbstoffes die Konzentration der Emitter im Verstärkermedium experimentell festlegen. Umso höher die Konzentration des Farbstoffes ist, umso höher muss auch die Anregungsleistung sein, um diesen Farbstoff zur Inversion zu bringen, da mehr Emitter angeregt werden müssen. Um die Anregungsleistung optimal zu wählen, muss also die Konzentration der Emitter anpassbar sein. Bei dem halbleiterbasierten Design von Oulton et al. muss immer der gesamte Nanodraht zur Inversion gebracht werden. Eine Änderung der Konzentration der Emitter ist beim Halbleiter nicht möglich. Bei der Verwendung eines Farbstoffes muss allerdings die Verwendung der Kugelform als ungeeignet angesehen werden, so dass sich die Verwendung des Farbstoffes kombiniert mit einem Nanodraht-Design anbietet.

## 4.2 Design des Nanolasers

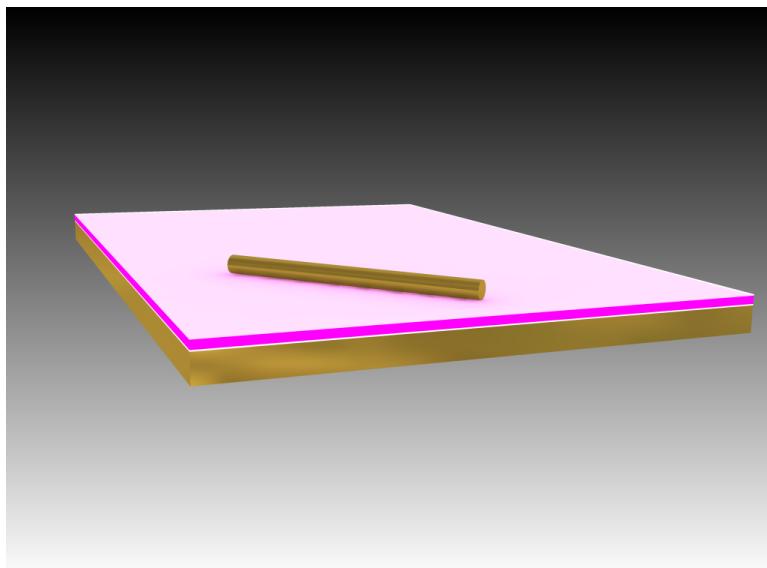


Abb. 4.1: Dreidimensionale Illustration der gesamten Probe gemäß dem hier verwendeten Spaser-Design. Auf einer Glasplatte (hier ausgelassen) liegt eine 100 nm dicke Goldschicht, auf der eine dreilagige Polymerschicht aufgebracht wird. In die mittlere Polymerschicht wird ein Farbstoff integriert. Oben auf dem Polymerschichtsystem liegen Gold-Nanodrähte, die den Resonator entlang des Drahtes ausbilden. Die optische Anregung erfolgt von oben mittels eines gepulsten Lasers.

Durch die Kombination des Nanodrahts als Resonator und dem Farbstoff als Verstärkermedium ist es möglich, den Farbstoff so zu platzieren, dass das in Kapitel 4.1 beschriebene Quenching vermieden wird. Dadurch besteht außerdem die Hoffnung, dass die Kopplung zwischen plasmonischer Mode und Emittern verbessert werden kann und dadurch der Purcellfaktor und der  $\beta$ -Faktor erhöht werden kann. Der  $\beta$ -Faktor gibt an, wie viel der insgesamt abgestrahlten Energie eines Emitters in die plasmonische Mode abgestrahlt wird. Durch einen erhöhten Purcellfaktor wird die Lebenszeit des angeregten Zustandes der Emitter verkürzt, so dass eine erhöhte Abstrahlungsrate erreicht wird.

Der hier gewählte Designvorschlag ist in Abbildung 4.1 und Abbildung 4.2 gezeigt und sieht also eine metallische Substratschicht vor, auf der eine Schicht mit Farbstoffmolekülen aufgebracht wird. Darauf werden metallische Nanodrähte verteilt. Die Verteilung der Drähte muss möglichst so geschehen, dass die Drähte einzeln untersucht werden können. Dadurch wird die Interaktion zwischen den Spaser-Systemen minimiert (z. B. *random lasing*, zufälliges Lasing), was insbesondere gegenüber dem Design von Noginov et al. ein entscheidender Vorteil ist. In Abbildung 4.1 ist eine dreidimensionale Illustration dargestellt, bei der ein einzelner Nanodraht auf dem Schichtsystem gezeigt wird. Zwischen die metallischen Grenzen und die Farbstoffmoleküle wird zudem eine Abstandsschicht mit 5 nm Dicke zur Vermeidung des Quenchings im Metall und im Farbstoff eingefügt. Dies ist bei keinem der drei in Kapitel 3 vorgestellten Designs vorgenommen worden. Beim Nanopartikel-Spaser von Noginov et al. wurde nur eine sehr dünne Zwischenschicht verwendet, die nur für den Herstellungsprozess verwendet wird und vermutlich weniger als 1 nm dick ist. Von Kewes et al. wurde gezeigt, dass eine Vergrößerung dieser Schicht im Design mit Goldkugeln die Spaserschwelle um einige Größenordnungen verringern kann [15]. Beim halbleiterbasierten Spaser von Oulton et al. wird die Abstandsschicht benötigt, damit eine plasmonische Mode entstehen kann. Beim Nanodrahtresonator von Russel et al. wird der Farbstoff direkt unter dem Nanodraht platziert, so dass Quenching nicht vermieden wird. Die von Russel et al. publizierten Berechnungen bezüglich der Zerfallsraten zeigen, dass vor allem für eine dicke (untere) Abstandsschicht von 25 nm über 90 % der gesamten Emission durch Quenching vernichtet wird [6]. Es ist also zu erwarten, dass im hier gemachten Designvorschlag vor allem die Abstandsschicht unterhalb des Nanodrahtes für eine Vermeidung des Quenchings sorgt. Wie in Kapitel 4.3 gezeigt, ist die Herstellung dieser 5 nm dicken Polymerschichten durch Spincoating leicht realisierbar.

Es stellte sich heraus, dass als Materialien ein Gold-Substrat, Gold-Nanodrähte sowie eine mit Rhodamin B (**RhB**) versetzte Polyvinylalkohol (**PVA**)-Lösung verwendet werden konnten. Die Abstandsschichten konnten aus Polymethylmethacrylat (**PMMA**) hergestellt werden. Die Wahl, Gold als metallisches Material zu verwenden, beruht vor allem auf der einfachen Verfügbarkeit von Gold-Nanostrukturen. Gold-Nanodrähte und flaches Goldsubstrat sind kommerziell erhältlich. Außerdem reagiert Gold wenig mit der Umgebung, so dass eine erhöhte Langlebigkeit

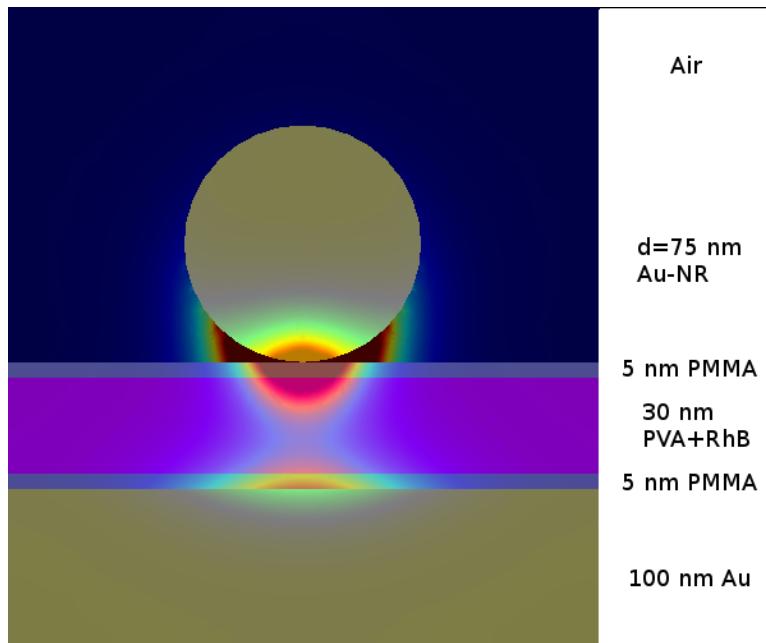


Abb. 4.2: Querschnitt durch den Spaser. Die Bereiche sind farblich markiert und entsprechend beschriftet. Der Darstellung ist das Simulationsergebnis der Intensität der Oberflächenplasmonen aus Kapitel 5 überlagert. Es sind nur die ersten 50 nm der Goldschicht dargestellt.

der Probe im Gegensatz zu z. B. Silber zu erwarten ist. In Abbildung 4.2 ist der Querschnitt des Spasers gezeigt, so dass die Schichtdicken erkannt werden können. Die Schichten wurden außerdem farblich markiert, so dass die gewählten Materialien erkennbar werden. Zusätzlich wurde die aus der Simulation in Kapitel 5 berechnete Modenverteilung für die plasmonische Mode dargestellt.

Da uns freundlicherweise vom Max-Born-Institut ein gepulster Laser mit 532 nm Wellenlänge und hoher Spitzenleistung zur Verfügung gestellt wurde, wurde der Farbstoff passend ausgewählt. Es standen Rhodamin B, Rhodamin 6G und Alexa Fluor 532 zur Auswahl. Die Wahl des Farbstoffes bestimmt die plasmonische Frequenz, die im Spaser verstärkt wird. Da Gold bei kleinen Wellenlängen stärker absorbiert (s. auch Kapitel 5 Abbildung 5.5), wurde Rhodamin B ausgewählt, dessen Emissionswellenlänge weiter im Roten liegt und dessen Absorption bei 532 nm Anregungswellenlänge noch über 70 % der maximalen Absorption beträgt, wie in Abbildung 4.3 zu sehen. Dies kann durch eine leicht erhöhte Anregungsleistung ausgeglichen werden. Durch die verringerte Absorption im Metall wird die Propagationslänge der Plasmonen im Resonator vergrößert, so dass auch der Q-Faktor des Resonators verbessert wird. Vergleiche hierzu auch die Simulationsergebnisse aus Kapitel 5. Ein weiterer Vorteil der langwelligeren Emission von Rhodamin B ist die leichtere Filterung der Emission und Anregung im experimentellen Aufbau. Die Emission von Rhodamin 6G z. B. liegt nur leicht über 550 nm und damit sehr nah an der Laser-Wellenlänge von 532 nm. Die fast 570 nm des Emissionsma-

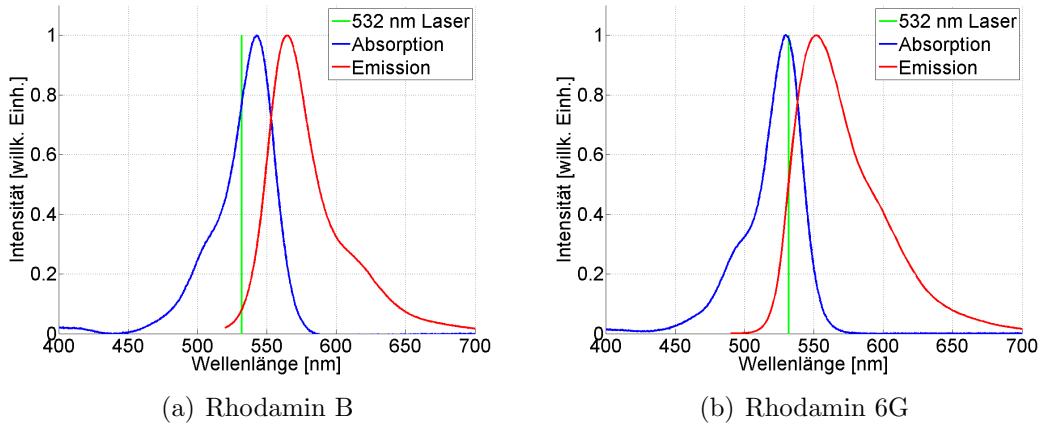


Abb. 4.3: Absorptions- und Emissionsspektren von Rhodamin B und Rhodamin 6G. Außerdem ist die Wellenlänge des zur verwendeten Lasers eingetragen. Es wurde Rhodamin B gewählt, weil der Überlap zwischen dem Anregungslaser und der Emission kleiner ist als bei Rhodamin 6G. Außerdem hat das Emissionsmaximum von RhB eine größere Wellenlänge, so dass die Absorption im Spaser geringer ist. Die Daten stammen aus [19] und [20] und sind dem Programm PhotochemCAD ([21], [22]) entnommen.

ximums bei Rhodamin B lassen etwa 20 nm mehr Spielraum für den abfallenden Bereich des Filters. Dadurch kann im Gegensatz zu Rhodamin 6G ein günstigerer Filter verwendet werden.

Es ergibt sich also ein Schichtsystem bestehend aus einem flachen Gold-Substrat, auf dem eine 5 nm dicke PMMA-Abstandsschicht liegt. Darauf liegt eine PVA-Schicht mit integriertem Rhodamin B Farbstoff, deren optimale Dicke durch Simulationen im Kapitel 5 zu 30 nm bestimmt wurde. Darüber liegt wieder eine PMMA-Abstandsschicht mit 5 nm Dicke, und auf dem ganzen Schichtsystem liegt der Gold-Nanodraht, der für die Führung der plasmonischen Mode sorgt. Abbildung 4.1 zeigt das Schichtsystem mit dem Nanodraht in einer dreidimensionalen Illustration. In Abbildung 4.2 ist ein Schnitt durch das Schichtsystem quer zum Nanodraht gezeigt. In dieser Abbildung ist bereits die Feldverteilung, die mittels der Simulation in Kapitel 5 berechnet wurde, überlagert dargestellt. Dadurch kann in Abbildung 4.2 bereits die Ausbreitung und Verteilung der Mode über die verschiedenen Schichten im Querschnitt ersehen werden. Die Ausbreitung der plasmonischen Mode entlang des Drahtes erfolgt bis auf unerwünschte Streuung geradlinig entlang des Drahtes und bildet durch die Reflexionen an den Enden des Drahtes eine stehende Welle aus. In Kap 5 wird die Simulation näher beschrieben und es wird mittels der Simulation die optimale Schichtdicke der PVA-Farbstoffsicht abgeschätzt.

### 4.3 Herstellung des Gold-Nanodraht-Spasers

Die Herstellung des Schichtsystems für eine Probe mit vielen potentiellen Spasern wurde auf der Grundlage einer 1 cm x 1 cm großen glatten Goldfläche aufgebaut. Die atomar glatte Goldfläche von 100 nm Dicke wurde mit dem Template-Stripping-Verfahren hergestellt und ist kommerziell bei der Firma Platypus erhältlich [17].



Abb. 4.4: Si-Wafer überzogen mit einer 100 nm dicken Goldschicht. Auf diese Goldschicht sind ca. 30 Glasplättchen mit 1 cm x 1 cm x 1 mm Größe aufgeklebt. Durch geschicktes Abheben der Glasplättchen erhält man von diesem Wafer ca. 30 atomar glatt mit 100 nm Gold beschichtete Proben. Der Wafer kann bei der Firma Platypus Technologies [17] kommerziell erworben werden.

Auf die atomar glatte Goldfläche wurde zunächst die untere 5 nm dicke PMMA-Abstandsschicht durch Spincoating aufgebracht. Die Schichtdicke lässt sich durch Veränderung der Konzentration der verwendeten Lösung und durch Variation der Drehzahl beim Spincoating sehr leicht variieren. Diese Abhängigkeiten wurden in [9] eingehend untersucht. Die hier verwendeten Konzentrationen wurden durch Tests auf Silizium- und Goldsubstraten und anschließender Anpassung gemäß [9] erreicht.

Vor der Herstellung der eigentlichen Probe wurden die Tests der Funktionalität des Schichtens mittels Spincoating auf kleinen Silizium-Wafern mit einer 150 nm dicken Siliziumdioxidschicht ( $\text{SiO}_2$ ) durchgeführt. In einem zweiten Schritt wurden die getesteten Werte auf einem Goldsubstrat getestet und im dritten Schritt auf der letztlich verwendeten Goldprobe angewendet.

Die Schichtdicke wurde nach jeder Anwendung des Spincoatings mittels Ellipsometrie vermessen. Bei der Ellipsometrie kann mittels Polarisationsmessungen der Reflektion an den optischen Grenzschichten und einer anschließenden Anpassung an die theoretischen Gleichungen, die sich aus den Fresnel-Gleichungen ableiten lassen, die Dicken der optisch durchlässigen dünnen Schichten bestimmt werden. Für diese Messungen wurde ein 633 nm He-Ne-Laser verwendet.

Die Konzentrationen, die zum erfolgreichen Erstellen des Schichtsystems führten, sind in Tabelle 1 gezeigt. Dabei gibt die erste Zeile für PMMA die untere Schicht an, die direkt auf den Goldfilm aufgebracht wird.

| Schicht | Lösungsmittel | Polymerkonzentr. | Farbstoff   | gemessene Dicke |
|---------|---------------|------------------|-------------|-----------------|
| PMMA    | Toluol        | 0.06 wt %        | –           | 5.9 nm          |
| PVA     | Wasser        | 3 wt %           | 15 mMol RhB | 31.8 nm         |
| PMMA    | Toluol        | 0.08 wt %        | –           | 7.6 nm          |

Tabelle 1: Konzentrationen und Einstellungen für das Spincoating der korrekten Polymerschichtdicken.

Die Drehzahl beim Spincoating wurde zunächst variiert zwischen 4500 und 6000 U/min. Zur Herstellung der letztlich verwendeten Probe wurde dann ausschließlich 6000 U/min verwendet, da dadurch die Schichtdicke leichter zu bestimmen war, d. h., es ist leichter, sehr dünne Schichten zu erzeugen. Die Zeit des Spincoating wurde grundsätzlich auf 60 Sekunden festgelegt.

Die Konzentration des Farbstoffes wurde im Wesentlichen dadurch ausgewählt, dass bei höherer Konzentration Kristallbildungen entstanden und dadurch das Schichtsystem qualitativ verschlechtert wurde. Möglicherweise lässt sich die Konzentration erhöhen, wenn geeignete Verfahren genutzt würden, um die Kristallbildung zu unterdrücken. Ob eine Anpassung der Konzentration für die Funktion des Spasers nötig ist, ist noch zu untersuchen. Die 15 mMol Lösung des RhB bezieht sich auf die endgültige Lösung. Die Lösung wurde in mehreren Schritten verdünnt.

Durch die Verwendung von dem sehr flüchtigen Lösungsmittel Toluol für die erste PMMA-Schicht und die Verwendung von Wasser für die darüber liegende PVA-Schicht lässt sich die Dicke der PVA-Schicht etwa genauso gut durch Variation der Konzentration einstellen, wie dies bei der ersten PMMA-Schicht möglich ist. PMMA ist zudem weniger wasserlöslich als PVA, so dass auch der Übergang zwischen den ersten beiden Polymerschichten wenig verschwimmen sollte. Die einfache Einstellbarkeit der PVA-Schicht lässt dies vermuten. Beim Spincoating der zweiten PMMA-Schicht, also der dritten Polymerschicht, ist dies nicht mehr zu gewährleisten. Bei Verwendung anderer Konzentrationen wurden teilweise alle unteren Schichten wieder zerstört oder wenigstens eingerissen. Es kommt hier sicher zu einer Vermischung der Schichten. Dies kann daraus geschlussfolgert werden, dass die Konzentration für eine ebenso 5 nm dicke Schicht deutlich erhöht werden muss gegenüber der ersten PMMA-Schicht. Hier wurde wieder Toluol als Lösungsmittel eingesetzt, da PMMA schlecht wasserlöslich ist. Könnte ein Lösungsmittel verwendet werden, das die PVA-Schicht wenig löst, wäre der Vermischung der beiden letzten Schichten entgegenzuwirken. Ohne Änderung des Polymers der dritten Schicht ist dies jedoch nicht möglich. Die Anpassung der Konzentration brachte in der Messung der zweiten PMMA-Schicht aber das

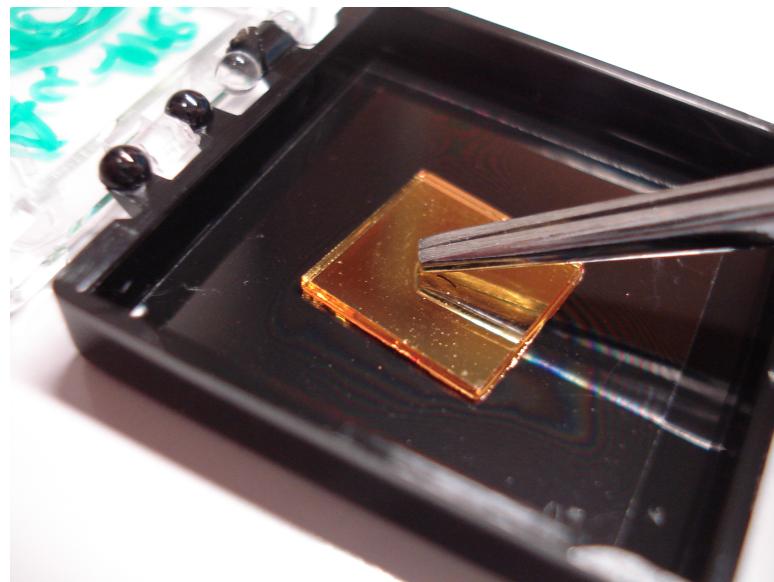


Abb. 4.5: Zu sehen ist eine geöffnete Kunststoffschachtel mit einem darin liegenden Deckglas. Auf das Deckglas wurden vorher die Gold-Nanodrähte durch Spincoating aufgebracht. Oben auf dem Deckglas liegt die Probe mit den fertigen Polymerschichten nach unten und wird von oben mit einer Pinzette auf das Deckglas gedrückt. Dadurch werden die Gold-Nanodrähte in die letzte Polymerschicht leicht eingedrückt.

gewünschte Ergebnis, auch wenn eine Unterscheidung der Polymerschichten durch die Ellipsometriemessungen schwer möglich ist, da der Brechungsindex zwischen den verwendeten Polymeren sehr wenig variiert. Da die Ellipsometrie mit einem He-Ne-Laser bei 633 nm durchgeführt wird, beeinflusst der Farbstoff die Messung nicht wesentlich.

Das Spincoating einer weiteren Schicht, vor allem aber der Nanodrähte, auf diese 3-lagige Polymerschicht ist nicht mehr möglich gewesen, ohne die unteren Schichten großflächig zu zerstören. Deshalb wurde für das Aufbringen der Nanodrähte eine etwas andere Methode eingesetzt. Zunächst wurden die Drähte direkt aus der vom Hersteller mitgelieferten Lösung auf ein Deckglas aus der Mikroskopie durch Spincoating verteilt. Danach wurde das fertige Schichtsystem auf die Golddrähte auf dem Deckglas aufgedrückt, so dass die Gold-Nanodrähte in der dritten Polymerschicht kleben blieben. Dieses Verfahren funktioniert sehr zuverlässig und ist in Abbildung 4.5 gezeigt. Eine Aufnahme mit dem Mikroskop der Firma Leica ist in Abbildung 4.6 zu sehen. Die Aufnahme wurde mit einem Objektiv mit 100-facher Vergrößerung aufgenommen. Die Beleuchtung ist von oben ohne Verwendung eines Dunkelfelds eingestrahlt. Die Oberfläche der gesamten 1 cm x 1 cm großen Fläche ist zum Großteil mit vielen solcher wie in Abbildung 4.6 gezeigten Nanodrähte belegt. Das heißt, es stehen nach einem Herstellungsprozesses sehr viele potentielle Spaser zur Verfügung. Es gibt eine gewisse Streuung der Länge der Nanodrähte, die vom Hersteller mit 10  $\mu\text{m}$  angegeben wird. Es sind jedoch

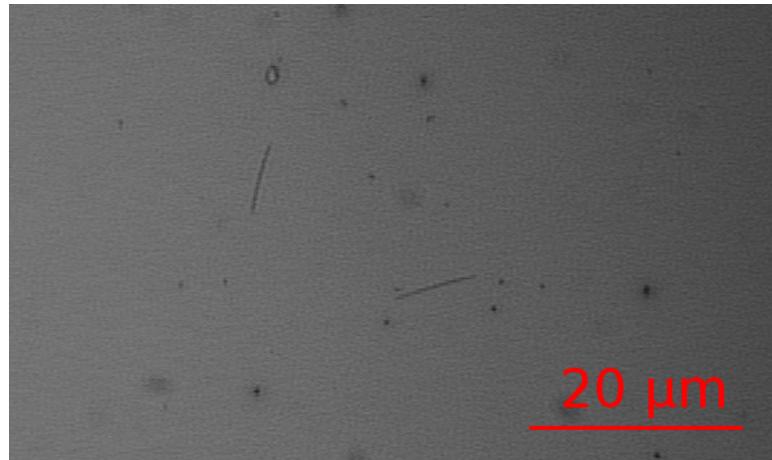


Abb. 4.6: Das Ergebnis der fertigen Probenoberfläche unter dem Mikroskop bei 100-facher Vergrößerung und Beleuchtung von oben ohne Dunkelfeld. Etwa in der Mitte sind zwei Nanodrähte erkennbar, mit einer Länge von ca.  $10\text{ }\mu\text{m}$ . Die schwarzen Flecken sind Verunreinigungen und Kristallbildung des Farbstoffes.

einige kürzere Drähte auf der fertigen Probe zu sehen. Dies deutet darauf hin, dass einige Drähte bei der Herstellung der Probe zerbrechen. Die in Abbildung 4.6 gezeigten Drähte scheinen nicht gebrochen zu sein, da sie ca. 10 nm lang sind. Die dunklen Flecken auf der Oberfläche um die Nanodrähte herum sind z. T. Kristallbildungen des Farbstoffes, z. T. auch Einschlüsse von Verunreinigungen. Es muss also ein Draht ausgesucht werden, der wenig von solchen Verunreinigungen gestört liegt.

Abschließend kann gesagt werden, dass die Präparation der Probe gelungen ist, sofern dies mit dem Mikroskop beurteilt werden kann. Zudem ist ein Herstellungsvorgang erarbeitet worden, der eine kostengünstige Vervielfältigung der Probe ermöglicht.



## 5 Simulation des Nanodraht-Spaser-Designs mittels der Finite-Elemente-Methode

### 5.1 Vorgehen zur Simulation des Schichtaufbaus

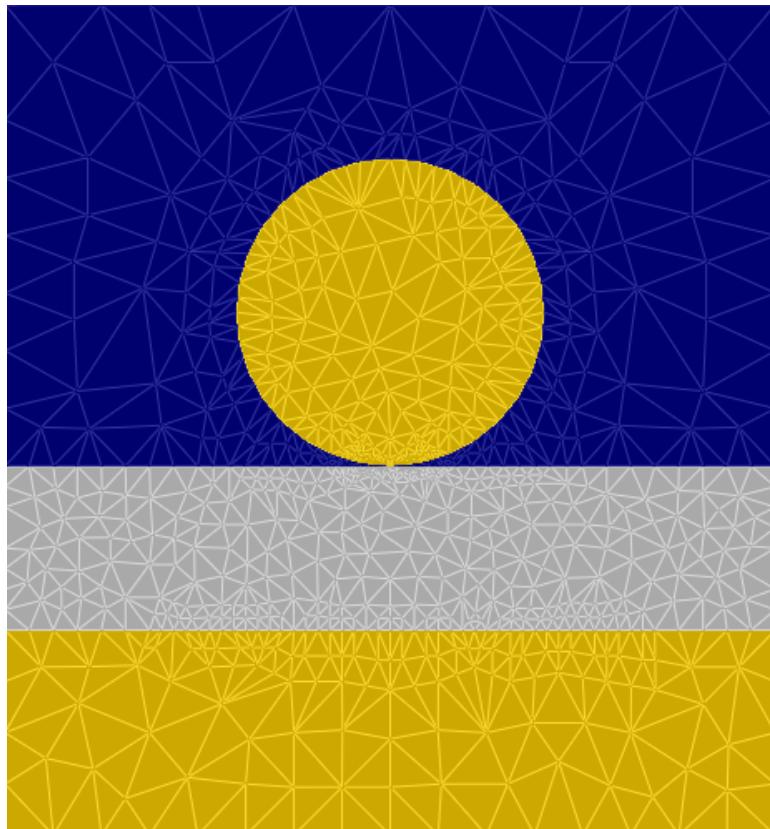


Abb. 5.1: Dargestellt ist der gesamte zweidimensionale Simulationsbereich. Dieser ist auf die  $x, y$ -Ebene, also den Querschnitt, beschränkt. Die in Goldgelb eingefärbten Bereiche sind die Bereiche mit Gold, in hellgrau der Bereich des Polymers und in dunkelblau die Luft.

In JCMwave wird nur die grundlegende Geometrie eingegeben, das hier mit weißen Linien dargestellte dreieckige Gitter wird von JCMwave berechnet, um auf dessen Gitterlinien das Feld zu berechnen. Der Algorithmus zum Berechnen des Gitters ist so ausgelegt, dass sich die Feinheit des Gitters an die Geometrie anpasst. Während der Simulation kann diese Anpassung anhand der resultierenden Feldverteilung erneut vorgenommen werden. Die initiale Größe der Dreiecke lässt sich grob vorgeben durch die Einstellung des minimalen Winkels in den Ecken der Dreiecke.

Das Verhalten des in Kapitel 4 vorgestellten Spaser-Systems wurde simuliert. Die Simulation wurde mit dem kommerziell erhältlichen Programm JCMwave [18] durchgeführt, das eine *finite element method* (FEM) verwendet. Dazu stand ein Computer mit einer 6-Kern-CPU und 64 GB Arbeitsspeicher zur Verfügung. Simuliert wurde die Wellenleitereigenschaft für die plasmonischen Moden des Resonators. Dazu wurde in JCMwave der sogenannte TimeHarmonic/PropagatingMode eingesetzt. Im Modus TimeHarmonic wird das elektromagnetische Feld in einen

zeitlichen und einen räumlichen Anteil zerlegt und der zeitliche Anteil wird harmonisch behandelt mit einer Winkelfrequenz  $\omega$ .

Im PropagatingMode wird eine Vakuum-Wellenlänge vorgegeben, für die die Propagation im Wellenleiter berechnet werden soll. Als einfallende Welle wird eine sich nur in  $z$ -Richtung ausbreitende ebene Welle angenommen, und auch im Resonator entlang der  $z$ -Achse wird die Ausbreitung als ebene Welle angenähert. Somit ergibt sich eine zweidimensionale Berechnung der Moden in der  $x, y$ -Ebene für die eingestrahlte Winkelfrequenz  $\omega$ .

Das Programm JCMwave erwartet als Eingabe eine Definition der Geometrie. Es wurde der Querschnitt des Schichtsystems als zweidimensionale Geometrie eingegeben. Der Durchmesser des Gold-Nanodrahtes wurde festgelegt auf 75 nm. Die 100 nm dicke Goldschicht des Substrats wurde auf 50 nm reduziert, um die Berechnung der Simulation zu beschleunigen. Im unteren Bereich der 100 nm Goldschicht ist das Feld genügend stark abgeklungen, so dass es zu Null angenähert werden kann. Die gesamte Polymerschicht inklusive der 5 nm dicken Abstandsschichten wurde mit einem typischen Brechungsindex von etwa 1.5 angenommen und als eine Schicht simuliert. Dies ist möglich, da die eingebetteten Farbstoffmoleküle den Brechungsindex für die Wellenlänge der Plasmonen nur unwesentlich beeinflussen. Letzteres ist der Fall, weil die optische Frequenz der Plasmonen der Emissionsfrequenz der Farbstoffmoleküle entspricht, und das Emissionsspektrum, wie in Kapitel 4 (Abbildung 4.3) gezeigt, kaum mit dem Absorptionsspektrum der Farbstoffmoleküle überlappt. In Abbildung 5.1 ist die in JCMwave eingegebene Geometrie zusammen mit dem automatisch erzeugten dreieckigen Gitter dargestellt.

## 5.2 Bestimmung der Simulationsparameter

Als Wellenlänge der einfallenden ebenen Welle wurde das Emissionsmaximum von Rhodamin B verwendet. Dieses liegt bei 570 nm. Der Brechungsindex in Luft wurde mit 1 angenähert und der Brechungsindex für Gold bei 570 nm Wellenlänge wurde als komplexer Brechungsindex eingegeben. JCMwave erwartet den Brechungsindex als Angabe mit der relativen Permittivität  $\epsilon$  und Permeabilität  $\mu$ . Dafür wurden die in Tabelle 2 angegebenen Werte verwendet.

| Material | $\epsilon = \epsilon_1 + i\epsilon_2$ | $\mu$ | $n$    | $\kappa$ |
|----------|---------------------------------------|-------|--------|----------|
| Luft     | 1.0                                   | 1.0   | 1.0    | 0        |
| Polymer  | 2.25                                  | 1.0   | 1.5    | 0        |
| Gold     | $-6.5438 + 1.6859i$                   | 1.0   | 0.3269 | 2.5789   |

Tabelle 2: Verwendete Brechungsindizes für die Simulation bei 570 nm.

Die komplexen Angaben versteht JCMwave im Sinne von Gleichung (4) aus Kapitel 2.1. Für die Simulationen bei anderen Wellenlängen wurde der Brechungs-

index für Gold entsprechend verändert. Die Werte für Gold wurden der Webseite <http://refractiveindex.info/> entnommen [11]. Die Webseite enthält eine Zusammenfassung und Interpolation mittels des Brendel-Bormann (BB) Modells von den Daten aus wählbaren Quellen. Die hier verwendeten Daten wurden aus der Quelle [12] berechnet.

### 5.3 Variation der Polymerschichtdicke

Die Simulation wurde nun mit den oben angegebenen Parametern und einer variablen Dicke der Polymerschicht durchgeführt. JCMwave berechnet bei der Simulation die Feldverteilung innerhalb der gesamten Geometrie (s. Abbildung 5.3 und 5.4) und gibt zusätzlich die Eigenwerte des zweidimensionalen Randwertproblems aus (s. Abbildung 5.2). Diese Eigenwerte sind die effektiven Brechungsindizes der Moden, die durch die Geometrie entstehen. Diese Brechungsindizes werden in der komplexen Form  $\tilde{n} = n + i\kappa$  ausgegeben. Ein hoher Realteil  $n$  zeigt an, dass in dieser Mode eine starke Verdichtung der Welleneigenschaften herrscht, so dass die Wellenzahl  $k = n k_0$  um den reellen Brechungsindex  $n$  gegenüber der Vakuumwellenzahl  $k_0$  vergrößert wird. Aus dem Imaginärteil  $\kappa$  lässt sich die Absorption der Mode berechnen. Ein großer Imaginärteil  $\kappa$  bedeutet, dass auch hohe Absorption auftritt. In Abbildung 5.2 sind die effektiven Brechungsindizes für die ersten beiden Moden dargestellt. Eine Mode mit einem hohen effektiven Brechungsindex bedeutet, dass das elektromagnetische Feld dieser Mode an die Elektronen im Metall ankoppelt. Es handelt sich also bei den Moden mit hohem effektiven Brechungsindex um plasmonische Moden. Weiterhin ist in Abbildung 5.2 zu sehen, dass nur die erste Mode diese plasmonischen Eigenschaften besitzt. Für eine größere Polymerschichtdicke  $d_{\text{gap}}$  als 60 nm hat auch diese Mode nur noch geringere plasmonische Eigenschaften, d. h. die Kopplung an die Elektronen im Metall ist geringer als bei kleinen Polymerschichtdicken  $d_{\text{gap}}$ . Um eine stark plasmonische Mode zu erhalten, muss also möglichst eine kleine Schichtdicke gewählt werden. Bei der kleinen Schichtdicke nimmt aber auch die Absorption der Plasmonen im Metall zu. Um die optimale Schichtdicke der Polymerschicht  $d_{\text{gap}}$  zu berechnen, muss nun zwischen diesen beiden Effekten abgewogen werden.

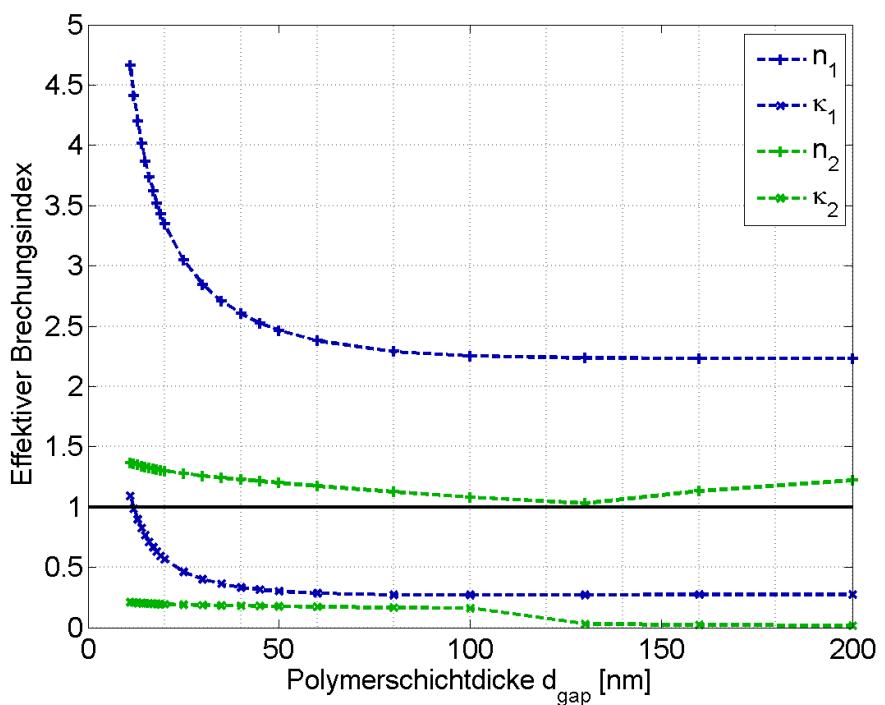


Abb. 5.2: Die FEM Simulation berechnet die Eigenwerte der Geometrie, d. h. die effektiven Brechungsindizes  $\tilde{n} = n + i\kappa$  für die verschiedenen Moden. Hier wurden nur die ersten beiden Moden betrachtet, da nur die erste Mode von Interesse ist. Abgebildet sind nur die Brechungsindizes für eine Wellenlänge von 570 nm. An dem starken Anstieg des effektiven Brechungsindex der ersten Mode für kleine Polymer-schichtdicken lässt sich erkennen, dass es sich um eine plasmonische und nicht um eine optische Mode handelt. Die zweite Mode ist bereits keine plasmonische Mode mehr.

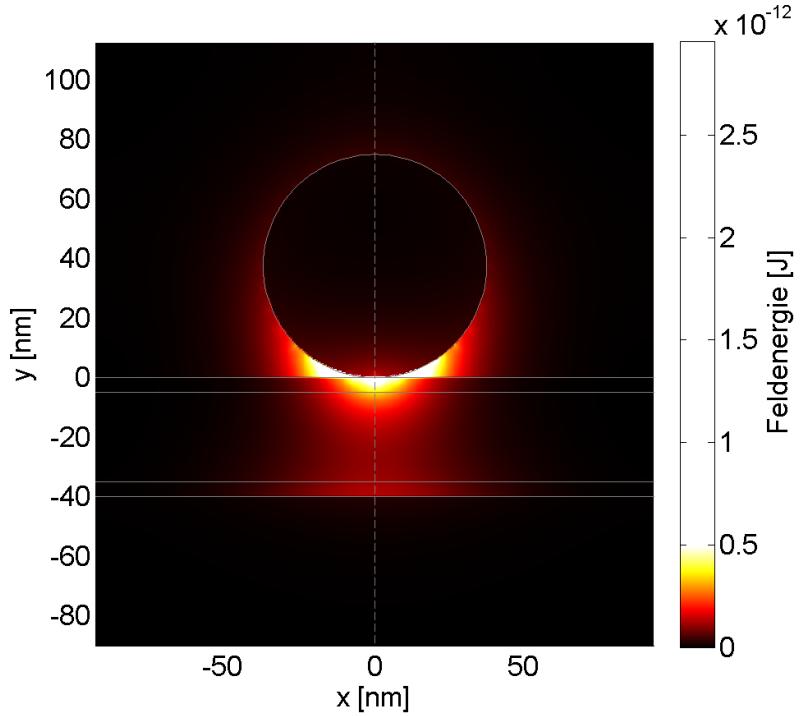


Abb. 5.3: Darstellung der aus der Simulation resultierenden Feldverteilung. Es sind außerdem die Schnittlinien eingezeichnet, an denen entlang die Schnitte in Abbildung 5.4 ausgeführt sind. Es zeigt sich auch, dass das Feld nur wenig in die 100 nm dicke Goldschicht eindringt und somit die Simulation von 50 nm ausreicht. Die größte Intensität befindet sich direkt unter dem Nanodraht.

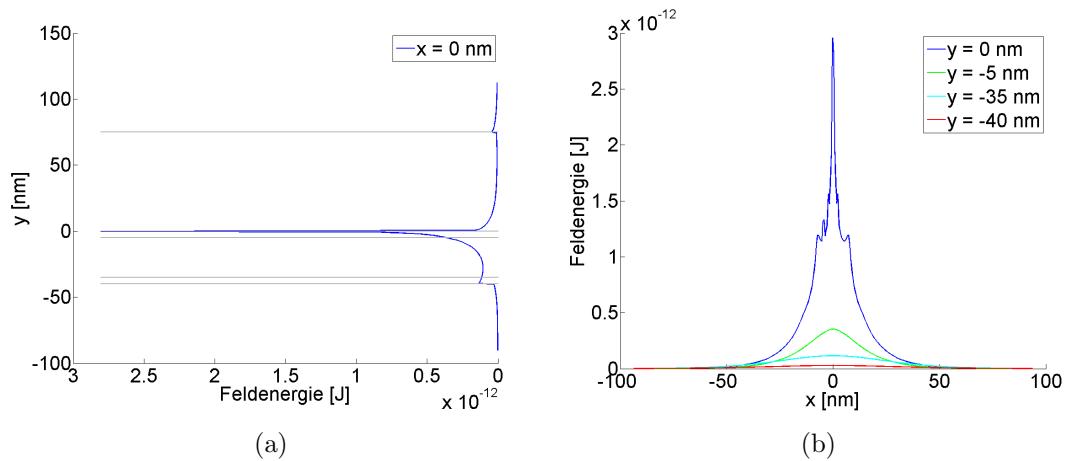


Abb. 5.4: Schnitte durch die Feldenergie der ersten plasmonischen Eigenmode in der  $x,y$ -Ebene. Die Schnittpositionen sind auch in Abbildung 5.3 eingetragen. Die besonders hohe Intensität direkt unter dem Nanodraht ist deutlich zu erkennen. Daran ist auch gut die Notwendigkeit der 5 nm dicken Abstandsschicht zu erkennen.

## 5.4 Identifikation geeigneter Größen zur optimalen Schichtdickenbestimmung

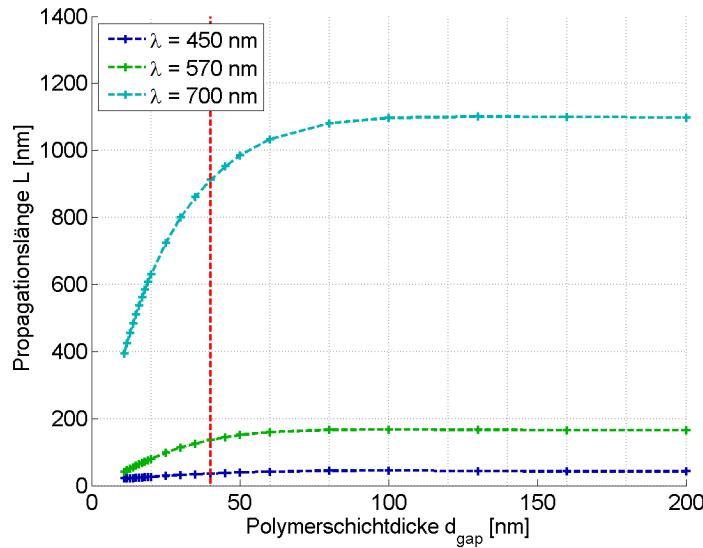


Abb. 5.5: Die aus der Simulation resultierende Propagationslänge der Plasmonen entlang des Nanodrahtes, also in z-Richtung. Nach dieser Länge ist die Intensität der Plasmonen auf  $1/e$  abgefallen. Sie wurde für verschiedene Polymerschichtdicken (Gap) berechnet, um die optimale Schichtdicke auswählen zu können. In rot ist die letztlich gewählte Polymerschichtdicke  $d_{\text{gap}} = 40 \text{ nm}$  eingetragen.

Bei der Optimierung der Polymerschichtdicke  $d_{\text{gap}}$  muss also ein möglichst hoher effektiver Brechungsindex erzielt werden, damit die Kopplung der Emitter an die plasmonische Mode optimal ist. Gleichzeitig muss die Absorption der Plasmonen im Metall minimiert werden.

Um ein besseres Verständnis der Absorption der Plasmonen im Metall zu erhalten, wurde die Propagationslänge  $L$  aus dem Simulationsergebnis des effektiven Brechungsindex berechnet. Die Simulation gibt direkt den effektiven Brechungsindex mit Real- und Imaginärteil aus. Die Propagationslänge berechnet sich dann zu

$$L = \frac{\lambda_0}{4\pi\kappa} \quad (23)$$

mit  $\kappa = \text{Im}(\tilde{n})$  wie in Gleichung (4) und (7) (Kap. 2.1). Nach dieser Propagationslänge  $L$  ist die elektromagnetische Feldstärke um den Faktor  $1/e$  abgefallen. In Abbildung 5.5 ist das Ergebnis dieser Propagationslänge für drei Wellenlängen dargestellt. Die grüne Kurve gibt die Werte bei 570 nm wieder und ist die für dieses Design entscheidende Größe. Zum Vergleich wurde auch die Wellenlänge von 700 nm (türkis) und 450 nm (blau) berechnet und dargestellt. Es zeigt sich, dass es für die Propagationslänge vorteilhaft ist, eine dickere Polymerschicht zu verwenden. Allerdings konvergiert die Propagationslänge bei einer Polymerschichtdicke

von etwas mehr als 60 nm gegen einen konstanten Wert. Das heißt, die Polymerschichtdicke  $d_{\text{gap}}$  muss nicht größer als etwa 60 nm gewählt werden. Bei der Wahl von mehr als 60 nm würde die Absorption nur unwesentlich geringer werden, aber die Feldintensität im Bereich des Farbstoffes weiter abnehmen.

Damit der Spaser möglichst effizient ist und dadurch mit möglichst wenig Anregungsleistung betrieben werden kann, müssen die Emitter des Farbstoffes möglichst effizient an die plasmonische Mode angekoppelt werden. Dafür ist es notwendig, dass die Emitter im Bereich der höchsten Intensität der plasmonischen Mode platziert sind.

Um also zu bestimmen, wie viel Energie der Mode im Bereich der Farbstoffmoleküle propagiert, wurde eine Größe eingeführt, die den Anteil der Energie, die im Bereich der Farbstoffmoleküle propagiert, ins Verhältnis zu der Gesamtenergie der Mode setzt. Diese Größe soll nutzbarer Modenenergieanteil  $V$  benannt werden und berechnet sich zu:

$$V = \frac{E_{\text{part}}}{E_{\text{tot}}} \quad (24)$$

$E_{\text{part}}$  bezeichnet den elektromagnetischen Fluss der plasmonischen Mode im Bereich der Farbstoffmoleküle.  $E_{\text{tot}}$  bezeichnet den gesamten elektromagnetischen Fluss der Mode.

Betrachtet man die soeben eingeführte Größe  $V$  nun in Abhängigkeit der gesamten Polymerschichtdicke  $d_{\text{gap}}$ , so wird  $V$  mit zunehmender Dicke  $d_{\text{gap}}$  immer größer und konvergiert gegen einen maximalen Wert, denn das Goldsubstrat spielt bei steigendem  $d_{\text{gap}}$  eine immer geringere Rolle und lässt sich bei sehr großem  $d_{\text{gap}}$  vernachlässigen. Mit dieser Größe  $V$  lässt sich also nicht so leicht die ideale Schichtdicke bestimmen. Bei Maximierung von  $V$  müsste eine maximale Schichtdicke gewählt werden, die das Grundkonzept des Designs verletzen würde. Deshalb wurde eine weitere Größe betrachtet, die relativer, nutzbarer Modenenergieanteil  $V_{\text{gap}}$  genannt werden soll und zu

$$V_{\text{gap}} = \frac{V}{d_{\text{gap}}} = \frac{E_{\text{part}}}{d_{\text{gap}} \cdot E_{\text{tot}}} \quad (25)$$

berechnet wird. Diese Größe gibt an, wie viele Emitter des Farbstoffes in den nutzbaren Modenenergieanteil  $V$  einbezogen sind. Für große Polymerschichtdicken ist zwar der Energieanteil der Mode im Bereich des Farbstoffes ( $V$ ) groß, aber ein großer Teil der Farbstoffmoleküle liegt im Bereich geringer Intensität und nimmt dadurch auch kaum am Spaser-Prozess teil. Die Größe  $V_{\text{gap}}$  muss also zusätzlich maximiert werden, um möglichst viele Emitter des Farbstoffes an die plasmonische Mode zu koppeln.

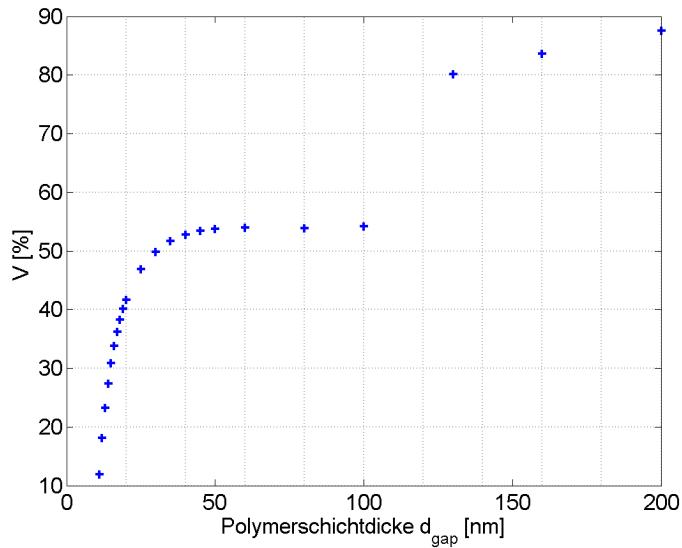


Abb. 5.6: Es wurde die Feldenergie der ersten plasmonischen Eigenmode über den Bereich der PVA-Schicht ohne die PMMA Schichten integriert und ins Verhältnis zur Energie der ersten plasmonischen Eigenmode über dem gesamten Bereich des Polymers inklusive der 5 nm dicken PMMA-Schichten gesetzt. Dieser Wert muss möglichst groß sein, damit vom Farbstoff viel Energie in die plasmonische Mode abgestrahlt wird und damit die Laserschwelle früher erreicht wird. Eine zu große Abstandsschicht führt allerdings zu einem geringen Anstieg des effektiven Brechungsindex (s. Abbildung 5.2) und ist deshalb zu vermeiden.

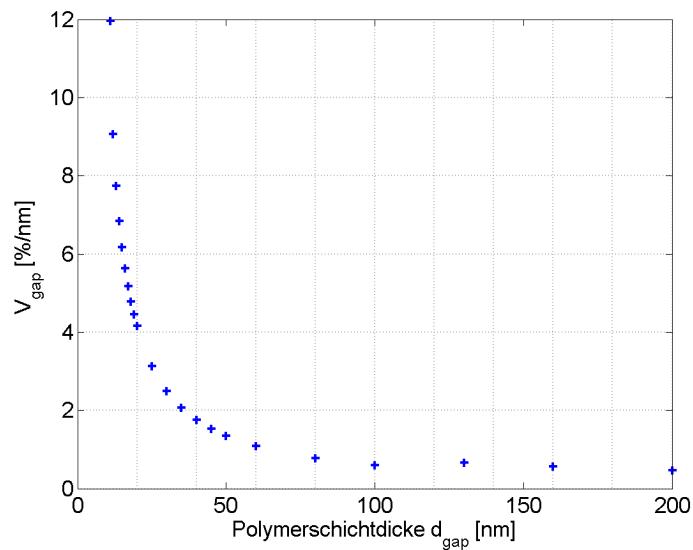


Abb. 5.7: Die Daten aus 5.6, aber geteilt durch die Dicke der PVA-Schicht in nm. Dadurch erhält man den Anteil an Energie, der im Durchschnitt in jedem Nanometer der mit Farbstoff gefüllten PVA-Schicht herrscht. Dieser Wert muss möglichst groß sein, denn davon hängt eine gute Ankopplung der Plasmonen an die plasmonische Mode im Resonator ab. Eine Gesamtdicke der Polymerschichten von unter 20 nm ist kaum mehr sinnvoll, da dann die Abstandsschichten ohne Farbstoff mit 10 nm Dicke zu viel Anteil an dem gesamten Zwischenraum erhalten.

## 5.5 Bestimmung der optimalen Schichtdicke

Mithilfe der Kurven aus Abbildung 5.6 und 5.7 wurde nun ohne weitere Berechnungen eine optimale Polymerschichtdicke  $d_{\text{gap}}$  ausgewählt. Da in der Polymerschichtdicke  $d_{\text{gap}}$  auch die zwei 5 nm dicken Abstandsschichten enthalten sind, ist eine Polymerschichtdicke von weniger als 15 nm kaum sinnvoll und mittels Spincoating auch kaum mehr herstellbar. Auf der anderen Seite ist eine Polymerschichtdicke von mehr als 60 nm nicht mehr sinnvoll, wie aus der Betrachtung der Propagationslänge hervorgeht. Der Bereich der idealen Polymerschichtdicke grenzt sich also auf etwa 20 nm bis 50 nm ein. Aus Abbildung 5.5 kann entnommen werden, dass für Polymerschichtdicken von 20 nm nur noch etwa die halbe Propagationslänge erreicht wird gegenüber einer Polymerschichtdicke von 40 nm. Dies lässt sich auch anhand Abbildung 5.6 erkennen. Zwischen 20 nm und 40 nm Polymerschichtdicke liegt ein Anstieg des Energieanteils im Farbstoff von etwa 15 % vor. Das heißt, für kleinere Polymerschichtdicken im Bereich um 20 nm propagiert ein deutlich größerer Anteil der Energie entlang des Nanodrahtes, so dass die Absorption höher ist als bei 40 nm Polymerschichtdicke. Der Unterschied der Intensität bezogen auf die Polymerschichtdicke unterscheidet sich zwischen 20 nm und 40 nm Polymerschichtdicke um etwas mehr als einen Faktor von zwei (s. Abbildung 5.7). Die beiden für den Spaser-Prozess wichtigen Größen kompensieren sich also für die Polymerschichtdicke im Bereich zwischen 20 nm und 40 nm. Dieser Bereich sollte also geeignet sein. Für diese Arbeit wurde eine Polymerschichtdicke von  $d_{\text{gap}} = 40 \text{ nm}$  ausgewählt. Dadurch ist die Propagationslänge größer, während der Verstärkungsfaktor für die Plasmonen kleiner ausfällt.

## 5.6 Bestimmung des Purcellfaktors

Zuletzt wurde aus dem Simulationsergebnis auch der Purcellfaktor  $F_p$  für  $d_{\text{gap}} = 40 \text{ nm}$  berechnet. Der Purcellfaktor gibt an, um wie viel die Emissionsrate durch die Stimulation  $\gamma$  gegenüber der spontanen Emissionsrate  $\gamma_0$  im Vakuum erhöht wird. Die Berechnung des Purcellfaktors wurde gemäß Barthes et al. vorgenommen [14]:

$$F_{p,u} = \frac{\gamma}{\gamma_0} = \frac{3\pi c \epsilon_0 E_u E_u^*}{k_0^2 \int_{A_\infty} (\vec{E} \times \vec{H})^* \cdot \vec{z} dA}. \quad (26)$$

Für  $u$  kann die  $x$ ,  $y$  oder  $z$  Komponente verwendet werden. Dabei gibt  $u$  die Orientierung des Dipols an, für den der Purcellfaktor berechnet werden soll. Mittels Gleichung (26) erhält man also die Purcellfaktoren  $F_{p,x}$ ,  $F_{p,y}$  bzw.  $F_{p,z}$  für einen Dipolemitter, der in  $x$ ,  $y$  bzw.  $z$  Richtung ausgerichtet ist. Die Felder  $\vec{E}$  und  $\vec{H}$  werden von JCMwave mittels einer Nachberechnung auf ein rechteckiges Gitter umgerechnet und ausgegeben. Dadurch kann der Purcellfaktor direkt aus dem Simulationsergebnis bestimmt werden. Das Flächenelement  $dA$  ist durch die Wahl der Gitterauflösung in der Nachberechnung bekannt.

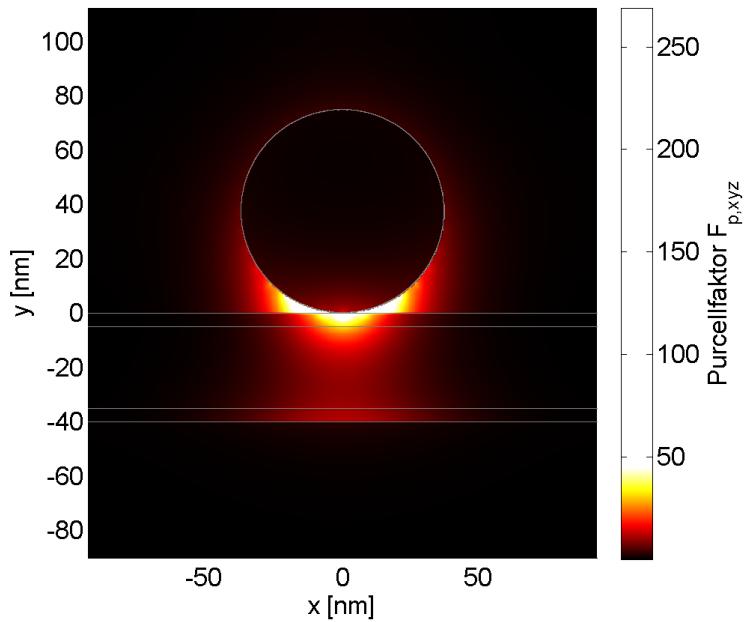


Abb. 5.8: Darstellung des aus der Simulation resultierenden Purcellfaktors  $F_{p,xyz}$  für eine Kombination aller möglichen Orientierungen des Dipolemitters. Es sind zusätzlich die Schnittlinien zwischen den Polymerschichten eingezeichnet. Im Vergleich mit Abbildung 5.3 zeigt sich eine große Ähnlichkeit, d. h. der Purcellfaktor ist an den Positionen hoch, an denen auch die Feldenergie hoch ist.

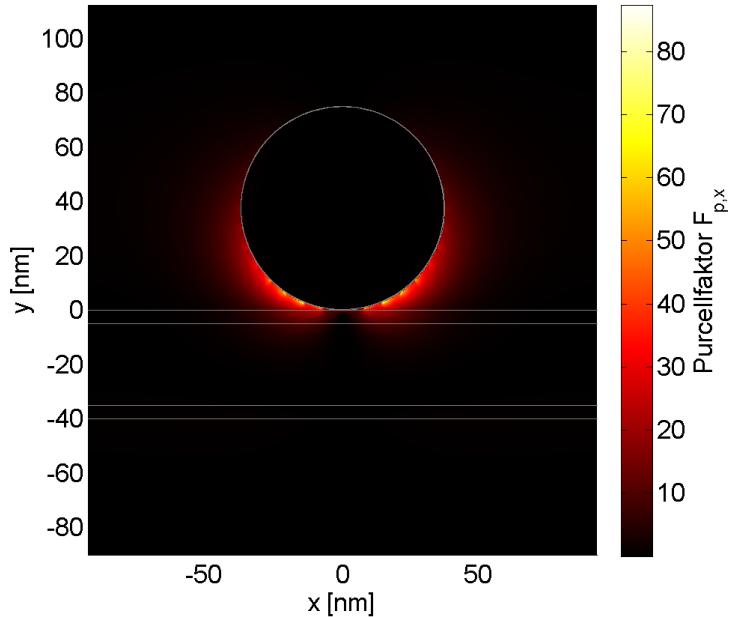


Abb. 5.9: Darstellung des aus der Simulation resultierenden Purcellfaktors  $F_{p,x}$  für einen horizontal orientierten Dipolemitter.

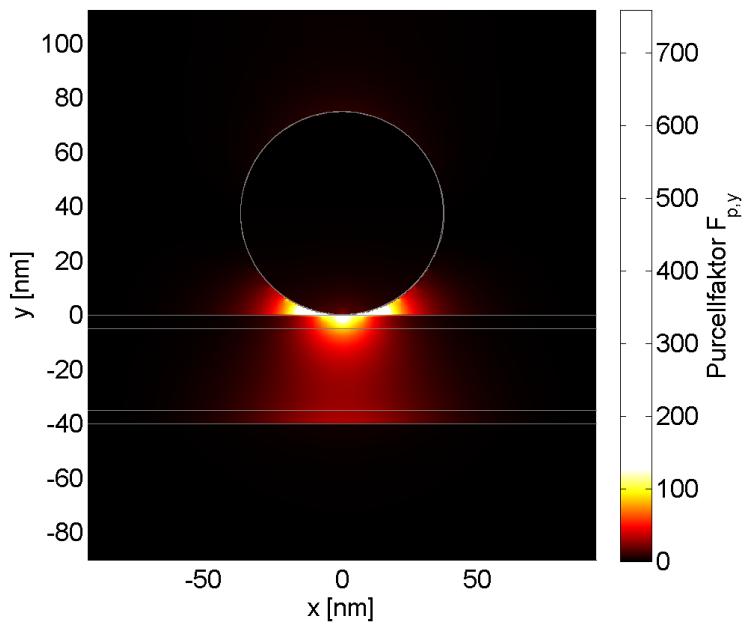


Abb. 5.10: Darstellung des aus der Simulation resultierenden Purcellfaktors  $F_{p,y}$  für einen senkrecht orientierten Dipolemitter.

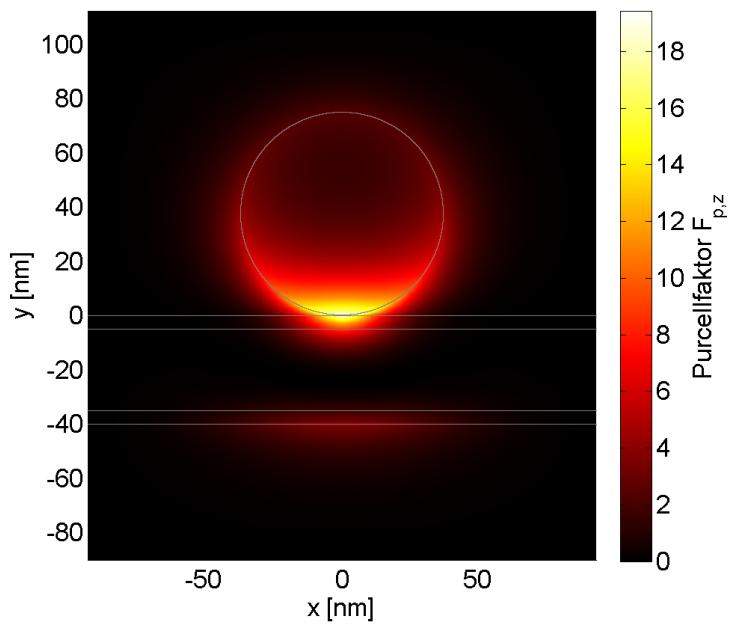


Abb. 5.11: Darstellung des aus der Simulation resultierenden Purcellfaktors  $F_{p,z}$  für einen in Propagationsrichtung orientierten Dipolemitter.

Der Purcellfaktor wurde für alle drei Ausrichtungen der plasmonischen Mode für eine Polymerschichtdicke von 40 nm und eine einfallende Wellenlänge von  $\lambda_0 = 570$  nm berechnet. In Abbildung 5.9, 5.10 und 5.11 ist das aus der Simulation berechnete Ergebnis für die Purcellfaktoren  $F_{p,x}$ ,  $F_{p,y}$  und  $F_{p,z}$  dargestellt. Aus diesen drei Purcellfaktoren wurde ein kombinierter Purcellfaktor  $F_{p,xyz}$  berechnet und in Abbildung 5.8 dargestellt. Der kombinierte Purcellfaktor  $F_{p,xyz}$  wurde unter der Annahme berechnet, dass im Farbstoff ein Drittel der Emitten in  $x$ ,  $y$  bzw.  $z$  Richtung orientiert sind. Der kombinierte Purcellfaktor  $F_{p,xyz}$  berechnet sich dann zu

$$F_{p,xyz} = \frac{F_{p,x} + F_{p,y} + F_{p,z}}{3}. \quad (27)$$

Es zeigt sich, dass der Purcellfaktor für eine Orientierung des Dipols entlang der  $x$  und  $z$  Achse um den Faktor 10 kleiner ist als der Purcellfaktor für einen entlang der  $y$ -Achse orientierten Dipol. Der maximale Purcellfaktor  $F_{p,y}$  geht zwar bis über 700, aber interessant ist nur der Bereich des Farbstoffes. In diesem Bereich liegt der Purcellfaktor bei maximal 80. Unterhalb des Nanodrahts ist der Purcellfaktor durchgehend größer als 30, erst deutlich abseits des Nanodrahts wird er geringer.

In der Realität ist die Orientierung jedes einzelnen Emitters im Farbstoff nicht bekannt. Dadurch werden nur die zufällig entlang der  $y$ -Achse orientierten Emitter einen wesentlichen Beitrag zum Spaser-Prozess geben. Schräg orientierte Emitter geben einen entsprechend verringerten Beitrag, so dass insgesamt nur etwa ein Drittel aller Moleküle im Farbstoff zum Spaser-Prozess beitragen. Dies ist im kombinierten Purcellfaktor  $F_{p,xyz}$  berücksichtigt worden. Entsprechend ist in Abbildung 5.8 der maximale Wert nur noch etwa 250 (statt über 700 für  $F_{p,y}$ ), und der maximale kombinierte Purcellfaktor im Bereich des Farbstoffes liegt bei etwa 30 (statt 80 für  $F_{p,y}$ ). Unterhalb des Nanodrahtes ist der kombinierte Purcellfaktor  $F_{p,xyz}$  immer größer als 10.

## 5.7 Zusammenfassung der Simulationen des Schichtsystems

Durch die zweidimensionale Simulation des hybriden Nanodraht-Spaser-Designs im Querschnitt konnte die plasmonische Mode anhand des effektiven Brechungsindex identifiziert werden. Außerdem konnte die Feldverteilung berechnet werden und damit die optimale Schichtdicke der Farbstoffschicht bestimmt werden. Es hat sich gezeigt, dass die optimale Schichtdicke des Farbstoffes zwischen 10 nm und 30 nm liegt (20 nm - 40 nm Polymerschichtdicke). Es wurde hier eine Farbstoffschichtdicke von 30 nm (40 nm Polymerschichtdicke) gewählt. Zudem konnte gezeigt werden, dass mit diesem Design eine Verstärkung der Emission der Emitter im Farbstoff in der Größenordnung von 50 erreicht wird.

# 6 Experimentelle Untersuchung des Gold-Nanodraht-Spasers

## 6.1 Experimenteller Aufbau

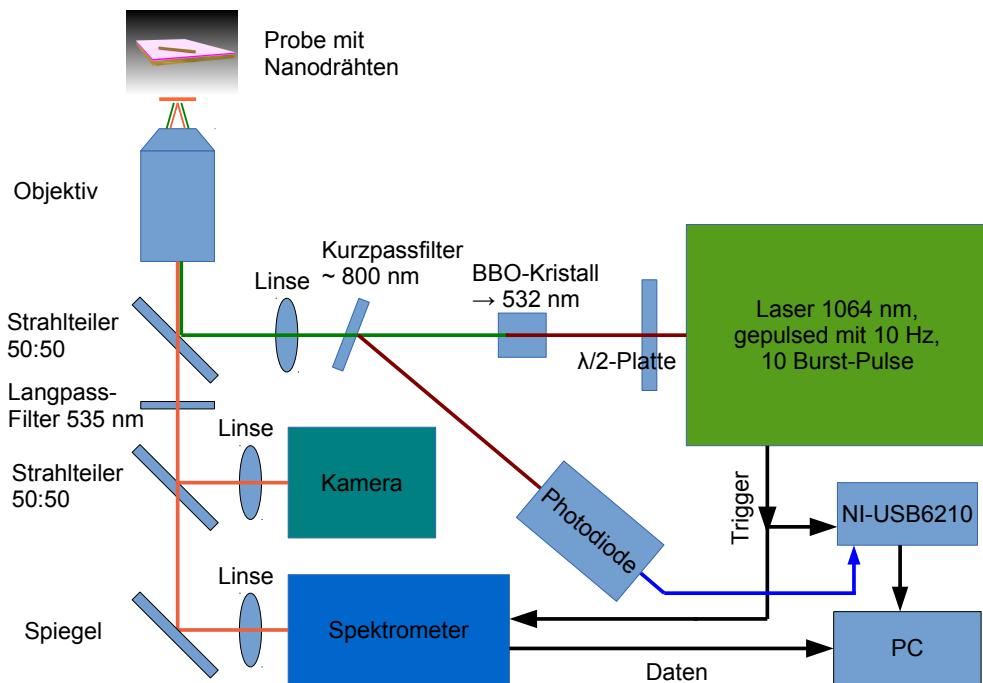


Abb. 6.1: Der zur Untersuchung der Probe verwendete experimentelle Aufbau. Er besteht im wesentlichen aus einem Mikroskop mit Einkopplung eines gepulsten Lasers bei 532 nm Wellenlänge, dessen Fokus aufgeweitet wird. In der Detektion wird ein Spektrometer mit Kamera verwendet. Die Datenerfassung mittels des Computers (PC) erfolgt synchronisiert zu den Laserpulsen. Der Laser hat eine Wellenlänge von 1064 nm und wird mittels eines Bariumborat-Kristalls (BBO-Kristall) auf 532 nm frequenzverdoppelt. Mittels einer  $\lambda/2$ -Platte kann die Konversionseffizienz im BBO-Kristall und damit die Ausgangsleistung bei 532 nm eingestellt werden.

Zur Anregung des Spasers auf der Probenoberfläche wurde ein gepulster, frequenzverdoppelter Laser mit einer Wellenlänge von 532 nm verwendet, der uns freundlicherweise vom Max-Born-Institut bereitgestellt wurde. Wie in Abbildung 6.1 dargestellt, wurde im Bereich vor der Frequenzverdoppelung durch den Bariumborat (BBO) Kristall eine  $\lambda/2$ -Platte integriert, mit der die Polarisation des Ausgangslichts mit 1064 nm Wellenlänge gedreht werden konnte. Durch die Drehung der Polarisation konnte die Konversionseffizienz von 1064 nm nach 532 nm Wellenlänge im BBO-Kristall variiert werden, so dass die Ausgangsleistung für die Wellenlänge von 532 nm variiert werden konnte.

Die Pulsrate des Lasers wurde auf 10 Hz eingestellt, wobei in jedem Puls 10 aufeinanderfolgende Burst-Pulse mit einem zeitlichen Abstand von  $10 \mu\text{s}$  verwendet wurden (s. auch Abbildung 6.2). Die Pulslänge der einzelnen Burst-Pulse lag im Bereich von etwa 25 ps. Die Pulsenegie lag im Bereich von bis zu 100 mJ.

Der in Abbildung 6.1 gezeigte Messaufbau zur Untersuchung der Probenoberfläche bestand im Wesentlichen aus einem Mikroskop mit integriertem Anregungslaser. Mittels eines Objektivs und einer Linse wurde die Probenoberfläche auf die Detektion abgebildet. Zur Detektion stand eine Kamera sowie ein Spektrometer zur Verfügung.

Der Laser zur Anregung der Probe wurde mittels eines 50:50 Strahlteilers ins Objektiv eingekoppelt. Vor dem Strahlteiler wurde der kollimierte Laserstrahl mit Hilfe einer Linse der Brennweite 150 mm fokussiert, so dass sich auf der Probenoberfläche eine Aufweitung des Laserfokus ergab. Dadurch war es möglich, den gesamten ca.  $10 \mu\text{m}$  langen Golddraht auszuleuchten. Die Abbildung der Probenoberfläche auf die Kamera und das Spektrometer blieb von dieser Strahlaufweitung unberührt.

Durch Verwendung der Kamera war es möglich, den Laserfokus mit einem Golddraht der Probe zu überlagern. Mit dem Spektrometer wurden die erwarteten spektralen Ereignisse untersucht die Emission des Spasers gemessen. Um die Emission des Spasers in Abhängigkeit der Leistung des Anregungslasers zu messen, wurde eine Photodiode ausgelesen, die von einem kleinen Anteil der Laserleistung bei 532 nm beleuchtet wurde, so dass eine zur Laserleistung proportionale

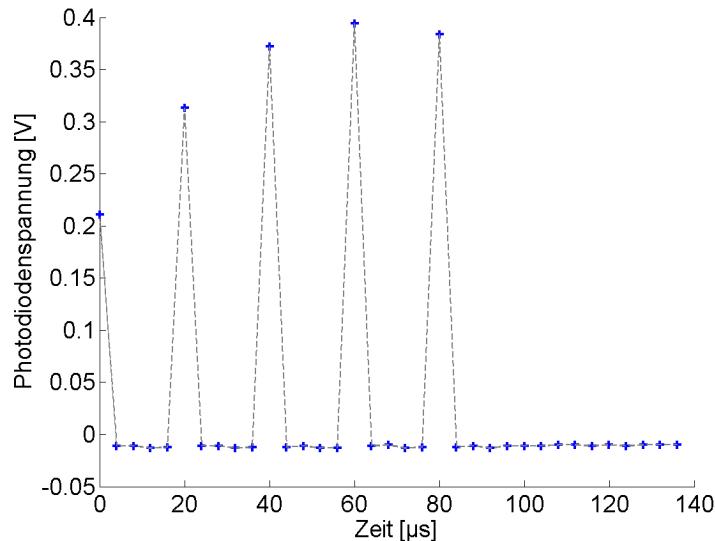


Abb. 6.2: Beispielhafte Messdaten der Photodiode mittels des Analog-Digital-Wandler (NI-USB6210) nach einem Trigger-Impuls vom Laser. Zu erkennen sind die Burst-Pulse des Lasers, die einen zeitlichen Abstand von  $10 \mu\text{s}$  aufweisen. Offensichtlich werden nicht alle 10 Burst-Pulse erkannt, da die Abtastrate des Analog-Digital-Wandlers nur 250 kHz beträgt.

Größe aufgenommen werden konnte.

Die gesamte Aufnahme der Messdaten wurde mit den 10 Hz Pulsen des Anregungslasers synchronisiert. Dazu wurde das Synchronisierungssignal des Lasers mit dem Spektrometer verbunden.

Die Kamera des Spektrometers wurde am USB-Port des Computers (PC) angeschlossen und mittels der Software Andor SOLIS ausgelesen. Diese Software unterstützt die Aufnahme von einer festen Anzahl von Spektren, wobei die Aufnahmezeitpunkte am Triggersignal gewählt werden.

Zum Auslesen des Signals der Photodiode wurde ein Analog-Digital-Wandler vom Typ NI-USB6210 von National Instruments verwendet, der ebenfalls am USB-Port des Computers angeschlossen wurde. Der Analog-Digital-Wandler NI-USB6210 ist zudem in der Lage, die Aufnahme eines Spannungsverlaufs an einem zusätzlichen Triggersignal vorzunehmen. Dafür wurde das 10 Hz Synchronisierungssignal vom Laser außerdem an den Analog-Digital-Wandler verbunden. Mittels einer in LabView geschriebenen Software wurden die Spannungsdaten vom Analog-Digital-Wandler auf dem Computer erfasst und gespeichert. In Abbildung 6.2 ist eine Aufnahme des Spannungsverlaufs vom Analog-Digital-Wandler dargestellt. Die Abtastrate des NI-USB6210 konnte mit 250 kHz gewählt werden. Da die Laserpulse sehr viel kürzer sind als die zeitliche Auflösung des Analog-Digital-Wandlers, werden offensichtlich nicht alle 10 Burst-Pulse des Lasers detektiert. Dennoch ist das Maximum dieses Signals etwa proportional zur tatsächlichen Laserleistung.

Die Aufnahme der Spektren sowie die Aufnahme des Signals der Photodiode wurden mittels eines MatLab-Scripts synchron gestartet und über einen festen Zeitraum aufgenommen. Durch die Synchronisierung der Aufnahme der Spektren mit dem Laser sowie die Verwendung der Burst-Pulse wurde eine Erhöhung des Signal-Rausch-Verhältnisses erzielt, da innerhalb der Integrationszeit des Spektrometers ein größerer zeitlicher Anteil vom Signal ausfüllt wurde.

## 6.2 Durchführung des Experiments

Um die Messungen durchführen zu können, ist es zunächst nötig, auf der Probenoberfläche einen möglichst frei liegenden Nanodraht zu finden. Dies wurde so gelöst, dass an dem Leica Mikroskop, welches auch zur Probenherstellung verwendet wurde, mit einer Vergrößerung von bis zu 100-fach und sehr guter Beleuchtung die Probe nach Bereichen abgesucht wurde, an denen einige frei liegende Drähte zu finden waren. Durch charakteristische Unebenheiten auf der Oberfläche ließen sich diese Bereiche später im Messaufbau leicht wiederfinden.

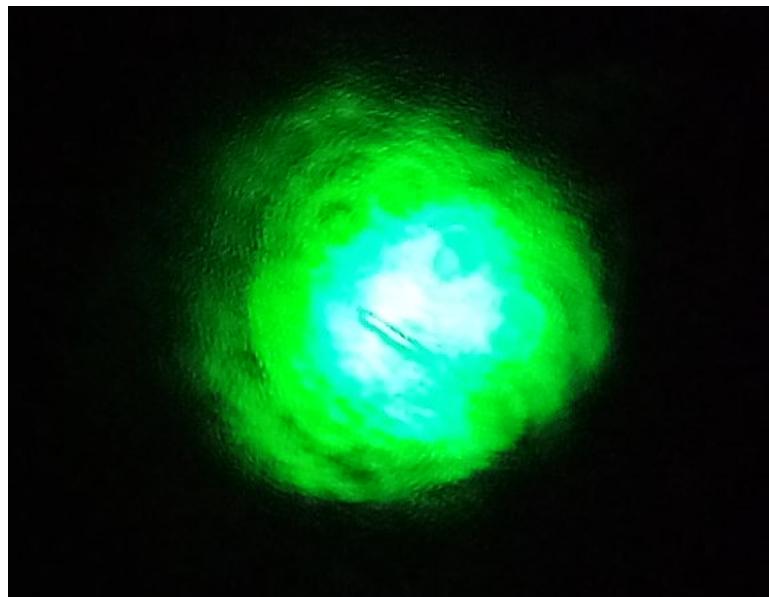


Abb. 6.3: Aufgeweiteter Laserfokus mit Nanodraht auf der Probenoberfläche überlagert. Der Durchmesser des Laserfokus ist größer als  $20\ \mu\text{m}$ .

Als Messaufbau für die Charakterisierungsmessungen wird die in Kapitel 6.1 bereits beschriebene Anordnung verwendet. Als Objektiv stand ein komplettes Mikroskop mit mehreren Objektiven zur Verfügung, das aber qualitativ nicht so hochwertig war wie das zur Voruntersuchung genutzte. Insbesondere eine gute Beleuchtung für hohe Vergrößerungsfaktoren ist unbedingt erforderlich und musste im Messaufbau aufwendig nachgerüstet werden.

Ist nun ein guter Nanodraht mit dem Mikroskop im Messaufbau gefunden, muss auch der Fokus des Lasers so mit dem Nanodraht überlagert werden, dass dieser vollständig ausgeleuchtet wird, wie in Abbildung 6.3 zu sehen. Im besonders intensiven Bereich des Laserfokus lässt sich die Interferenz, die vom Nanodraht ausgelöst wird, erkennen.

In dieser Konfiguration wurden anschließend die Spektren des Nanolasers aufgenommen, so dass über einen fest vorgegebenen Zeitraum von z. B. 100 s bei jedem mit 10 Hz ausgesendeten Laserpuls ein Spektrum auf dem PC abgespei-

chert wurde. Bei jedem Laserpuls wurde außerdem die Photodiode ausgelesen, auf die ein kleiner Teil des Laserlichts abgelenkt wurde. Der von der Photodiode erzeugte Spannungswert wurde digitalisiert und gespeichert, so dass eine zur Laserleistung proportionale Größe zu jedem Spektrum vorlag. Während dieser Messreihe wurde nun mit Hilfe der  $\lambda/2$ -Platte am Laser die Laserleistung manuell variiert. Sie wurde so variiert, dass die besonders hohe Leistung erst etwa in der Mitte der Messung auf die Probe eingewirkt hat, so dass vor allem unverfälschte Messdaten bei kleiner Anregungsleistung vorliegen. Nachdem die Leistung bis ans Maximum eingestellt wurde, wurde nochmals bei kleiner Anregungsleistung gemessen und die Leistung anschließend wieder bis zum Maximum erhöht.

### 6.3 Experimentelle Ergebnisse

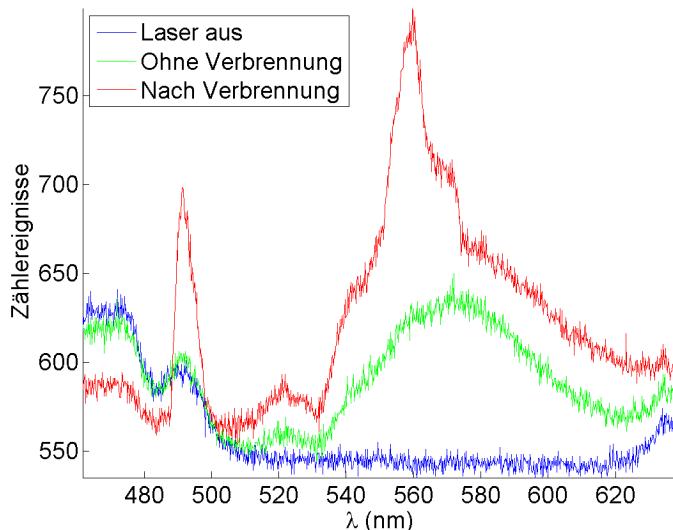


Abb. 6.4: Drei charakteristische Spektren, die in einer Messreihe bei unterschiedlicher Anregungsleistung aufgenommen wurden. Das blau gefärbte Spektrum ist bei minimaler, das grün gefärbte bei mittlerer und das rot gefärbte bei maximaler Laserleistung aufgenommen worden. Bei einer Leistung oberhalb des grün gefärbten Spektrums veränderte sich die Form zu der, die im rot gefärbten Spektrum zu sehen ist. Die Ausbildung der Spitze im rot gefärbten Spektrum ist auf das Verbrennen der Probenoberfläche zurückzuführen.

In Abbildung 6.4 sind drei Spektren aus der in Kapitel 6.2 beschriebenen Messreihe ausgewählt, die bei verschiedenen Anregungsleistungen aufgenommen wurden. Zwischen diesen drei charakteristischen Spektren ergaben sich keine wesentlichen Unterschiede in der Form der Spektren. Im ersten Spektrum (blau) ist der Laser auf minimaler Leistung eingestellt, so dass nur Effekte vom Hintergrundlicht zu sehen sind. Bei Erhöhung der Laserleistung wird nun zunehmend die Fluoreszenz des Rhodamin B Farbstoffes erhöht. Die grüne Kurve in Abbildung 6.4 zeigt

diese Fluoreszenz. Sie ist so ausgewählt, dass bei weiterer Erhöhung der Laserleistung das Spektrum grundsätzlich verändert wird, d. h., bis zu dieser Leistung ist nur die Fluoreszenz zu erkennen. Die Fluoreszenz liegt erwartungsgemäß bei ca. 540 nm bis 620 nm. Sollte nun der Spaser-Prozess einsetzen, so erwartet man, dass im Spektrum zusätzliche Spitzen mit einer geringen Linienbreite auftreten. Bis zur Leistung des grünen Spektrums in Abbildung 6.4 konnten diese Effekte nicht entdeckt werden.

Das rot dargestellte Spektrum in Abbildung 6.4 ist bei der maximalen Leistung des Lasers aufgenommen. Die Messungen wurden außerdem mehrfach und z. T. auch mit 1000 s Länge ausgeführt, um mögliche kurzzeitige Änderungen in den Messreihen zu erkennen. Es blieb trotzdem bei den grundsätzlichen drei Formen, die in Abbildung 6.4 gezeigt sind. Bei maximaler Leistung entstand nun also tatsächlich eine Spitze im Spektrum im spektralen Bereich der Fluoreszenz des Rhodamin B. Diese ist aber im Verhältnis zur Erwartung zu breit. Es wäre außerdem zu erwarten, dass mehrere Spitzen nebeneinander auftreten, wie dies im Kapitel 3.2, Abbildung 3.3b in der Einleitung bereits gezeigt wurde. Außerdem tritt im rot gefärbten Spektrum in Abbildung 6.4 eine zweite Spitze auf, deren Wellenlänge in dem Bereich liegt, in dem der Langpassfilter mit 530 nm mit einem Faktor von etwa  $10^6$  unterdrückt. Es muss sich also um einen Effekt auf der Probe handeln, der  $10^6$  mal stärker ist als die Fluoreszenz des Rhodamin B. Da diese spektrale Spitze nicht im grün gefärbten Spektrum zu sehen ist, handelt es sich bei dem roten Spektrum vermutlich um eine Veränderung der Probe, durch die das Licht des Anregungslasers stärker in die Detektion leuchtet als vorher.

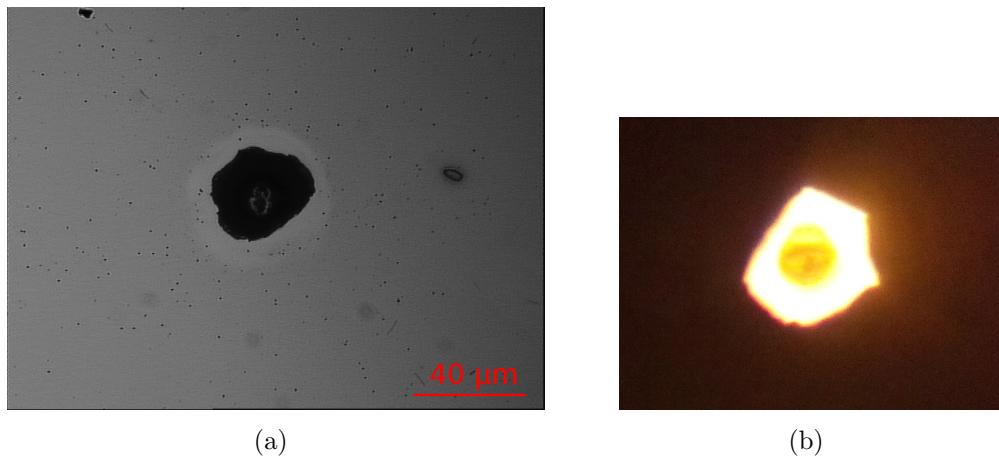


Abb. 6.5: (a) Mikroskopaufnahme der Probenoberfläche nach Aufnahme der Messreihe. Die Aufnahme wurde mit dem bei der Probenherstellung verwendeten Mikroskop bei 50-facher Vergrößerung ohne Dunkelfeldbeleuchtung erstellt. Die Beleuchtung ist von oben auf die Probenoberfläche eingestrahlt worden. (b) Farbaufnahme im Messaufbau. Die Beleuchtung kommt von unten, d. h., das Licht in der Mitte ist durch das Deckglas und durch die weggebrannte Goldschicht zu sehen. Diese Aufnahme bestätigt, dass auch der 100 nm dicke Goldfilm auf dem Deckglas vollständig zerstört wurde. In der Mitte des Brandflecks ist außerdem die Verbrennung/Verschmelzung des Deckglases im Bereich der größten Intensität des Laserfokus zu erkennen.

Betrachtet man die in Abbildung 6.5 gezeigten fotografischen Aufnahmen der Probenoberfläche nach der Messung an der Stelle, an der zuvor der Laserfokus positioniert wurde, so lässt sich die Verformung des Spektrums der in Abbildung 6.4 rot gefärbten Kurve auf das Verbrennen der Probe im Bereich des Laserfokus zurückführen. In Abbildung 6.5b ist insbesondere auch erkennbar, dass nicht nur der Nanodraht und die darunterliegende Goldschicht von 100 nm Dicke verbrannt sind, sondern auch Schmelzeffekte im unter der Goldschicht liegenden Deckglas aufgetreten sind.

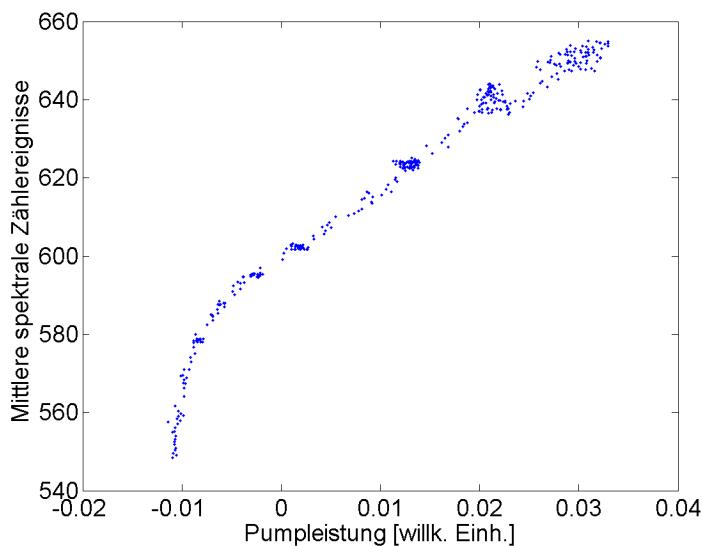


Abb. 6.6: Dargestellt ist die Korrelation der Anregungsleistung mit der Fluoreszenzintensität. Die Anregungsleistung wurde aus der Spannung einer Photodiode bestimmt und hat deshalb eine unbekannte Einheit. Die Zählereignisse im Spektrum wurden gemittelt über den spektralen Bereich von 540 nm bis 620 nm. Der für den Spaser notwendige Anstieg der Steigung ist nicht zu erkennen.

In Abbildung 6.6 ist das Ergebnis der Korrelation der Messdaten der Photodiode, d. h. der Laserleistung in unbekannter Einheit, mit der mittleren Intensität im Spektrum im Bereich der Fluoreszenz des Rhodamin B Farbstoffes (540 nm – 620 nm) dargestellt. Es zeigt sich auch hier kein Anstieg der Steigung, so wie er beim Auftreten des Spaser-Prozesses zu erwarten wäre. Hingegen zeigt sich ein Abfallen der Steigung bereits bei wenig Anregungsleistung. Dieser Abfall der Steigung lässt sich vermutlich auf das Verbrennen der Probenoberfläche zurückführen.

In dem Bereich der Anregungsleistung, in dem die Probenoberfläche nicht zerstört wurde, konnten letztendlich keine Spasing-Effekte gefunden werden. Dies bedeutet jedoch nicht, dass das Design grundsätzlich nicht spasing-fähig ist. Es bedeutet lediglich, dass genaue Untersuchungen des Messequipments durchgeführt werden müssen und dann entsprechende Anpassungen vorgenommen werden müssen. Insbesondere konnte bisher nicht untersucht werden, ob die vom Laser intern genutzte Anregungswellenlänge von 1064 nm genügend stark gefil-

tert wurde. Sollte ein nicht unerheblicher Anteil an dieser Wellenlänge bis in den Messaufbau eingedrungen sein, wäre die Verbrennung sehr wahrscheinlich dadurch hervorgerufen worden, bevor der Spaser-Prozess eintreten konnte. Es ist zu vermuten, dass der 1064 nm Anteil in der Anregung besonders bei kleiner Laserleistung einen verhältnismäßig großen Anteil besaß, da die Verbrennungen bereits in einem Leistungsbereich auftraten, in dem kaum Fluoreszenz vom Farbstoff zu erkennen war. Möglich ist aber auch, dass die Detektion des Fluoreszenzlichts sehr ineffizient war und überarbeitet werden muss.

## 6.4 Zusammenfassung der experimentellen Untersuchungen

Die experimentellen Ergebnisse zeigen also bisher keinen Spaser-Prozess. Dennoch konnte die prinzipielle Möglichkeit der Untersuchung des Spasers gezeigt werden. Abschließend bleibt die Frage, ob es möglich ist, die nötige Anregungsleistung am Verstärkermedium zu erreichen, ohne dabei die Goldstrukturen zu zerstören. Diese Frage kann nur beantwortet werden, wenn entweder der Spaser-Prozess experimentell nachgewiesen werden kann, oder wenn zusätzliche theoretische Betrachtungen unternommen werden könnten, aus denen die Unmöglichkeit des Spaser-Prozesses mit dem hier gewählten Design gefolgert werden müsste. Es erscheint realistisch, dass mit dem Grundprinzip dieses Designs der Spaser-Prozess erreicht werden kann. Offen bleibt, ob dies auch mit den hier gewählten Materialien und der eingesetzten Anregungswellenlänge gilt.

## 7 Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit wurde die Entwicklung eines verbesserten Designs eines Nanolasers basierend auf Oberflächenplasmonen (Spaser) vorgestellt.

Das Design wurde so optimiert, dass es einerseits leicht herstellbar ist und andererseits den Anforderungen eines Spasers gerecht werden sollte.

Die einfache Herstellbarkeit wurde erreicht, indem ein Schichtsystem konstruiert wurde, für das einige kommerziell erhältliche Bestandteile verwendet werden können. Die weitere Herstellung beschränkt sich dadurch auf gängige Arbeitsschritte wie das Herstellen von Polymerlösungen und Spincoating dieser Lösungen sowie das Auftragen der Nanodrähte auf die Polymerschichten.

Um die Anforderungen an einen Spaser zu erfüllen, wurden Simulationen durchgeführt, die eine Optimierung für die Wahl der Schichtdicken ergab. Durch die Simulation lassen sich zudem einige Parameter des Konzeptes evaluieren. So wurde beispielsweise festgestellt, dass die Propagationslänge von ca. 100 nm im Vergleich zur Länge des Nanodrahtes von einigen Mikrometern sehr klein ist. Das heißt, eine Vergrößerung dieses Parameters könnte für die Funktionalität des Designs nötig sein.

Obwohl die Hoffnung bestand, mit dem in dieser Arbeit untersuchten Ansatz ein erfolgreiches Spasing-Verhalten experimentell nachzuweisen, konnte dies aus den bisherigen Messdaten nicht abgeleitet werden. Dennoch konnte die entwickelte Methode zur Messung der Spasing-Aktivität erfolgreich angewendet werden. Dies legt einen wesentlichen Grundstein für weitere Arbeiten auf dem Gebiet und erlaubt die systematische, wiederholbare und vergleichbare Vermessung weiterer Proben in den kommenden Jahren.

Experimentell bleibt die Frage offen, ob bei der Filterung des verwendeten Lasers tatsächlich die interne Anregungswellenlänge von 1064 nm hinreichend entfernt wurde. Es liegt jedenfalls aufgrund der Erfahrungen im Labor die Vermutung nahe, dass die experimentellen Ergebnisse dadurch verhindert wurden, dass im nahen Infrarot einige Leistung auf die Probe eingestrahlt wurde und diese daher bei zu kleiner Leistung im Bereich von 532 nm bereits verbrannt hat. Da hier sehr hohe Spitzenleistungen vorliegen, ist eine Messung dieser Verhältnisse nur mit geeignetem Gerät möglich, was zur Zeit dieser Untersuchungen nicht vorhanden war.

Weiterhin bleibt die Frage offen, ob die Qualität der Polymerschichten ausreichend ist. Es könnte zu starkem Ineinandergreifen der PVA/Farbstoffschicht und der PMMA Abstandsschichten gekommen sein, was dazu führen würde, dass einige Farbstoffmoleküle sehr nah an die Goldflächen kommen und die Propagationslänge weiter verkleinert würde, so dass auch der Q-Faktor des Resonators kleiner werden würde.

Insgesamt wurde in dieser Arbeit ein neues Konzept für einen Nanolaser entwickelt, welches simulativ verifiziert und optimiert wurde und anschließend in einem experimentellen Aufbau untersucht wurde.

## 8 Ausblick

Wie aus der Zusammenfassung bereits hervorgeht, sind Optimierungen im experimentellen Bereich vor allem bei den verwendeten optischen Hilfsmitteln eine mögliche Verbesserung. Außerdem könnte der Prozess des Spincoatings optimiert werden, wenn andere Verfahren zum Herstellen der Polymerschichten angewendet werden könnten. Es könnten zum Beispiel andere Lösungsmittel und Polymere getestet werden, die sich nicht so stark gegenseitig lösen. Eine weitere Möglichkeit bestünde zum Beispiel darin, ein Schichtsystem aus anionischen und kationischen Polymeren schichtweise aufzubauen. Dadurch könnten glattere und weniger ineinanderfließende Schichten realisiert werden. Dieses Verfahren wurde im Rahmen dieser Arbeit bereits anfänglich getestet, war aber bisher nicht erfolgreich, da kein Polymer gefunden wurde, der gut an der Goldschicht haftet.

Es könnte zudem der Einfluss der Konzentration des Farbstoffes in der PVA-Schicht auf den Spaser-Prozess untersucht werden. Hierzu wären auch weitere Simulationen denkbar. Bei einer Änderung der Konzentration des Farbstoffes ist außerdem eine Untersuchung zur Vermeidung der Kristallbildung vorzunehmen.

Als eine Zwischenuntersuchung wäre es auch denkbar, die Propagationslänge der Plasmonen zu messen, indem der Nanodraht an einem Ende angeregt würde und über das Bleichen des Farbstoffes die Intensität entlang des Drahtes abgeschätzt würde.

Darüber hinaus wäre auch eine Anpassung der Anregungswellenlänge in den roten bis infraroten Bereich denkbar, so dass die Propagationslänge der Plasmonen im Resonator um einen Faktor von ca. 9 vergrößert werden könnte und dadurch auch der Q-Faktor vergrößert werden würde. Dafür sind jedoch Anpassungen im experimentellen Aufbau notwendig. Insbesondere muss ein entsprechender Laser verwendet werden, und zu diesem ein passender Farbstoff. Mögliche Farbstoffe könnten z. B. IR140 mit einer Emissionswellenlänge von 870 nm oder auch ATTO Rho101 mit einer Emissionswellenlänge von 610 nm sein.

Um noch weiter in die Zukunft zu schauen, wäre auch eine weitere Veränderung des Designs möglich. Insbesondere könnte Gold gegen andere Stoffe ersetzt werden. Würde z. B. Silber verwendet, wäre die Absorption im sichtbaren Bereich bereits deutlich kleiner. Auch der Wechsel zu Halbleitermaterialien wäre zu überprüfen. Halbleiter hätten den Vorteil, dass sie nicht wie Moleküle schnell ausbleichen. Auf der anderen Seite würde der Einsatz von Halbleitern ein angepasstes Design und vor allem eine aufwendigere Herstellung erfordern.

## **Danksagung**

Ich möchte mich insbesondere bei Herrn Prof. Oliver Benson und seiner Nano-Optik Arbeitsgruppe für die Möglichkeit der Durchführung dieser Masterarbeit bedanken. Außerdem möchte ich mich bei Günter Kewes bedanken, der mir immer wieder Ideen zum weiteren Vorgehen geliefert hat.

Weiterhin soll Dr. Ingo Will vom Max-Born-Institut Berlin und seinen Mitarbeitern für die Bereitstellung des Lasers gedankt werden.

Stefan Kirstein soll für die Bereitstellung des Ellipsometrie-Messaufbaus gedankt werden. Andreas Ott und auch Stefan Kirstein möchte ich zudem für die Unterstützung bei der Herstellung der Proben danken.

Prof. Benson und Günter Kewes gilt außerdem Dank für die erfolgte Motivierung dieser Arbeit.

Außerdem muss gesagt werden, dass die Arbeit ohne die Unterstützung aus der Familie nicht möglich gewesen wäre. Vor allem die finanzielle Unterstützung durch meine Eltern, insbesondere die bedingungslose finanzielle Unterstützung durch meine Mutter, sei hier hervorgehoben.



## Persönliche Stellungnahme

An dieser Stelle möchte ich kurz meine persönliche Meinung zur aktuellen Forschung in der Physik darstellen.

Wie bereits in der Einleitung gesagt, verbraucht eine Berechnung grundsätzlich keine Energie. Nur das Auslesen des Ergebnisses der Berechnung erfordert, dass ein Energieverbrauch entsteht. Technisch gesehen ist es also sinnvoll, den Energieverbrauch der Geräte immer weiter zu minimieren. Dadurch werden immer feinere Geräte verfügbar werden.

In der Wissenschaft sollte dennoch der Schwerpunkt auf dem Verständnis der Phänomene liegen. Das bedeutet, dass vor allem die Ausarbeitung eines wirklichen Weltverständnisses notwendig ist. Ohne ein Weltverständnis kann auch kein vollständiges Verständnis einzelner Phänomene, z. B. physikalischer Phänomene, erlangt werden. Den Versuch, dieses Weltverständnis durch Weiterentwicklung der technischen Möglichkeiten zu erlangen, halte ich persönlich für uneffizient. Nach einer beliebig langen Zeit wird zwar auch auf diesem Wege ein Fortschritt in Bezug auf das Weltverständnis erlangt werden. Dennoch sollte die Erforschung dieses Weltverständnisses systematischer angegangen werden und in die Physik einbezogen werden. Soweit mir bekannt ist, ist dies bisher nur sehr unzureichend geschehen. Dabei bin ich der Meinung, dass insbesondere die bereits bekannten Phänomene und Vorgänge in der Welt ein tiefgründigeres Verständnis ermöglichen. Dazu müsste intensiver an einzelnen Aufgabenstellungen gearbeitet werden können. Insbesondere die Ausarbeitung der grundlegenden Fragen bezüglich des Messprozesses sollten weiter hinterfragt werden. Dadurch könnte ein grundlegendes und in allen Gebieten anwendbares Weltverständnis erlangt werden. Der technische Fortschritt und damit auch die Möglichkeit der effizienteren numerischen Berechnung würde dann als Folge eines Weltverständnisses auftreten und nicht, wie es meiner Ansicht nach zur Zeit häufig geschieht, das Weltverständnis aus dem technischen Fortschritt erzeugt werden.



## Publikationen

- Vortrag im Rahmen der DPG-Tagung 2015 an der TU-Berlin:  
Friedemann G  deke, G  nter Kewes, and Oliver Benson — AG Nano Optik,  
Institut f  r Physik, Humboldt-Universit  t zu Berlin

### Nanowire-film gap plasmon waveguides for spaser resonators

Surface plasmon amplification by stimulated emission of radiation (spaser) might be an essential part of future nano-photonic devices. Spasers are sub-wavelength sized light sources and could be used in quantum information technology or nano-lithography [1]. We report on numerical and experimental investigations on an ultra-compact resonator design for spasers. We use organic gain media in a waveguide which is formed by a gap between a gold film and a gold nanowire. The design follows Ref. [2] and [3] and includes emitter-free spacing layers between active medium and metal [4] which will be beneficial to achieve lower spasing thresholds. We optimize our design towards a well defined energy distribution in the gap and low propagation losses. We present a feasible fabrication technique based on relatively simple and quick methods like spin-coating, ellipsometry and stamping as well as first fluorescence studies.

[1] Stockman, M. I., Journal of Optics 12, 024004 (2010) [2] Oulton, R. F. et al., Nature 461, 629-632 (2009) [3] Russell, K. J. et al., Nature Photonics 6, 459-462 (2012) [4] Kewes, G. et al., Arxiv 1408.7054 (2014)



## Literatur

- [1] Moore, G. E. *Cramming more components onto integrated circuits* Electronics **38**, Number 8 (1965)
- [2] Bergman, D. J., and Stockman, M. I. *Surface plasmon amplification by stimulated emission of radiation: Quantum generation of coherent surface plasmons in nanosystems*. Physical Review Letters **90**, 027402 (2003)
- [3] Sorger, V. J., and Zhang, X. *Spotlight on Plasmon Lasers*. Science **333**, 709-710 (2011)
- [4] Oulton, R. F. et al. *Plasmon lasers at deep subwavelength scale*. Nature **461**, 629 (2009)
- [5] Oulton, R. F. et al. *Plasmon lasers at deep subwavelength scale. SUPPLEMENTARY INFORMATION*. Nature **461**, 629 (2009)
- [6] Russell, K. J. et al. *Large spontaneous emission enhancement in plasmonic nanocavities*. Nature Photonics **6**, 459 (2012)
- [7] Noginov, M. A. et al. *Demonstration of a spaser-based nanolaser*. Nature **460**, 1110-1112 (2009)
- [8] Stefan Alexander Maier *Plasmonics, Fundamentals and Applications*, Springer (2007) ISBN 978-0-387-33150-8
- [9] Hall, D. B., Underhill, P., and Torkelson, J. M. *Spin Coating of Thin and Ultrathin Polymer Films*. Polymer Engeneering and Science **38**, 2039 (1998)
- [10] Barnes, W. L., Dereux, A., and Ebbesen, T. W. *Surface plasmon subwavelength optics*. Nature **424**, 824-830 (2003)
- [11] <http://refractiveindex.info/>  
Abgerufen am 15.07.2015.
- [12] Aleksandar D. Rakić, Aleksandra B. Djurišić, Jovan M. Elazar, and Marian L. Majewski *Optical properties of metallic films for vertical-cavity optoelectronic devices* Appl. Opt. **37**, 5271-5283 (1998)
- [13] Stockman, M. I. *The spaser as a nanoscale quantum generator and ultrafast amplifier* Journal of Optics **12**, 2 (2010)
- [14] Barthes, J. et al. *Purcell factor for a point-like dipolar emitter coupled to a two-dimensional plasmonic waveguide* Phys. Rev. B **84**, 073403 (2011)
- [15] Kewes, G. et al. *Threshold Limitations of the SPASER* arXiv 1408.7054 (2014)

- [16] Kaufmann, A., Kleine, C., Kirstein, S. *Versuch im F-Praktikum Physik: Ellipsometrie an dünnen Polymerfilmen*  
[https://www.physik.hu-berlin.de/de/pmm/dokumente/fopraktikum/  
anleitung\\_elli.pdf](https://www.physik.hu-berlin.de/de/pmm/dokumente/fopraktikum/anleitung_elli.pdf)  
Abgerufen am 10.11.2015.
- [17] Platypus Technologies, LLC  
5520 Nobel Drive, Suite 100  
Madison, WI 53711, USA  
<http://www.platypustech.com/ultraflatgold.html>  
Abgerufen am 27.05.2015.
- [18] JCMwave (Berlin, Germany)  
<http://www.jcmwave.com>  
Abgerufen am 10.11.2015.
- [19] Rhodamin B Spektrum aus PhotochemCAD  
<http://omlc.org/spectra/PhotochemCAD/html/009.html>  
Abgerufen am 31.10.2015.
- [20] Rhodamin 6G Spektrum aus PhotochemCAD  
<http://omlc.org/spectra/PhotochemCAD/html/083.html>  
Abgerufen am 31.10.2015.
- [21] Du, H., Fuh, R.-C. A., Li, J., Corkan, L. A., Lindsey, J. S. *PhotochemCAD. A Computer-Aided Design and Research Tool in Photochemistry and Photobiology* Photochem. Photobiol. **68**, 141-142 (1998)
- [22] Dixon, J. M., Taniguchi, M., Lindsey, J. S. *PhotochemCAD 2. A Refined Program with Accompanying Spectral Databases for Photochemical Calculations* Photochem. Photobiol. **81**, 141-142 (2005)

## Abkürzungsverzeichnis

**BBO** Bariumborat

**FEM** *Finite Element Method*, Numerische Simulation der Moden elektromagnetischer Felder im Resonator

**FDTD** *Finite Difference Time Domain*, Numerische Simulation der Propagation des elektromagnetischen Feldes gemäß der Maxwell-Gleichungen

**PC** Personal Computer

**PMMA** Polymethylmethacrylat

**PVA** Polyvinylalkohol

**QIT** Quanteninformationstechnologie

**RhB** Rhodamin B

**SPP** *surface plasmon polariton*, Oberflächenplasmonen

**TE** Transversal Elektrisch

**TM** Transversal Magnetisch

**U/min** Umdrehungen pro Minute

# Abbildungsverzeichnis

|      |  |    |
|------|--|----|
| 1.1  | Größenvergleich zwischen Nanolaser und Virus . . . . .   | 2  |
| 1.2  | Beispiel eines Halbleiter-Nanodraht-Spasers . . . . .  | 3  |
| 1.3  | Beispiel eines Goldkugel-Spasers . . . . .   | 4  |
| 2.1  | Permittivität von Gold, Vergleich mit Messdaten für Gold . . . . .                             | 8  |
| 2.2  | Dispersionsrelation oberhalb der Plasmafrequenz . . . . .                                      | 9  |
| 2.3  | Metallisch-dielektrische Grenzfläche. . . . .  | 10 |
| 2.4  | Eindringtiefe der Oberflächenplasmonen . . . . .   | 11 |
| 2.5  | Dispersionsrelation für SPPs . . . . .   | 12 |
| 2.6  | Energieniveau Schema . . . . .   | 13 |
| 2.7  | Spaserschwellen . . . . .  | 16 |
| 2.8  | Illustration des Ellipsometrieaufbaus . . . . .  | 20 |
| 3.1  | Nanopartikel-Spaser von Noginov et al. . . . .   | 23 |
| 3.2  | Messungen am Nanopartikel-Spaser von Noginov et al. . . . .                                    | 24 |
| 3.3  | Halbleiter-Spaser von Oulton et al. . . . .  | 25 |
| 3.4  | Feldintensität beim Halbleiter-Spaser . . . . .  | 26 |
| 3.5  | Nanoresonator von Russel et al. . . . .  | 27 |
| 3.6  | Messdaten zum Nanoresonator von Russel et al. . . . .  | 28 |
| 4.1  | Illustration des Gold-Nanodrahtes mit Polymer-Schichtsystem . . .                              | 30 |
| 4.2  | Querschnitt des Spasers . . . . .  | 32 |
| 4.3  | Spektrum von Rhodamin B und 6G . . . . .   | 33 |
| 4.4  | Ultraflaches Gold von Platypus Technologies . . . . .  | 34 |
| 4.5  | Aufdrücken der Nanodrähte auf das Polymer-Schichtsystem . . .                                  | 36 |
| 4.6  | Nanodrähte aufgenommen mit dem Mikroskop . . . . .   | 37 |
| 5.1  | FEM-Simulationsbereich und Gitter . . . . .  | 39 |
| 5.2  | Eigenwerte als Ergebnis der FEM-Simulation . . . . .   | 42 |
| 5.3  | Querschnitt mit Simulationsergebnis und Schnittpositionen . . .                                | 43 |
| 5.4  | Schnitte vom Simulationsergebnis . . . . .   | 43 |
| 5.5  | Plasmonische Propagationslänge für verschiedene Polymerschichtdicke und Wellenlängen . . . . . | 44 |
| 5.6  | Energie in der Molekülschicht bei 570 nm . . . . .   | 46 |
| 5.7  | Mittlere Energie in 1 nm Molekülschicht . . . . .  | 46 |
| 5.8  | Purcellfaktor im Querschnitt der Simulation ( $F_{p,xyz}$ ) . . . . .                          | 48 |
| 5.9  | Purcellfaktor im Querschnitt der Simulation ( $F_{p,x}$ ) . . . . .                            | 48 |
| 5.10 | Purcellfaktor im Querschnitt der Simulation ( $F_{p,y}$ ) . . . . .                            | 49 |
| 5.11 | Purcellfaktor im Querschnitt der Simulation ( $F_{p,z}$ ) . . . . .                            | 49 |
| 6.1  | Experimenteller Aufbau . . . . .   | 51 |
| 6.2  | Zeitliche Abfolge der Laserpulse . . . . .   | 52 |
| 6.3  | Aufgeweiteter Laserfokus beleuchtet Nanodraht . . . . .  | 54 |
| 6.4  | Fluoreszenzspektren . . . . .  | 55 |
| 6.5  | Verbrannte Probenoberfläche . . . . .  | 56 |
| 6.6  | Fluoreszenzintensität in Abhängigkeit der Anregungsleistung . . .                              | 57 |

## **Tabellenverzeichnis**

|   |  |    |
|---|--|----|
| 1 | Konzentrationen und Einstellungen für das Spincoating der korrekten Polymerschichtdicken . . . . . | 35 |
| 2 | Brechungsindizes für die Simulation bei 570 nm . . . . .   | 40 |



## **Eigenständigkeitserklärung**

Hiermit versichere ich, dass ich die vorliegende Arbeit selbstständig verfasst und keine anderen, als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel verwendet habe. Ich versichere außerdem, dass die Arbeit unter Beachtung der Prüfungsordnung ausgeführt wurde und dies meine erstmalige Einreichung einer Masterarbeit ist.

Berlin, den 12.11.2015

(Unterschrift)