

Abschlussbericht

nanoQUIT:

Entwicklung von quantenpunktbasierenden Einzelphotonenquellen für Emissionswellenlängen um 1,55 μm

Zuwendungsempfänger: Dr. Ralf Meyer, Walter Schottky Institut, Technische Universität München	Förderkennzeichen: 01BM471
Vorhabenbezeichnung: Förderschwerpunkt: nanoQUIT Teilvorhaben: Entwicklung von quantenpunktbasierenden Einzelphotonenquellen für Emissionswellenlängen um 1,55 μm	

Laufzeit des Vorhabens:
01.01.2005 bis 31.12.2008

Teil 1

1 Ziel des Projektes

Ziel dieses Teilvorhabens im Rahmen des Förderschwerpunktes nanoQUIT war die Realisierung einer hocheffizienten, elektrisch gepumpten Einzelphotonenquelle bei der für Telekommunikationsanwendungen wichtigen Wellenlänge von 1,55 μm . Im Rahmen des von uns favorisierten Konzepts sollten dazu Quantenpunkte als Emitter in einen photonischen Kristall eingebettet und elektro-optisch mit einer monolithisch integrierten LED gepumpt werden. Für die Umsetzung dieses Konzeptes waren zuvor eine Reihe von materialwissenschaftlichen und prozesstechnologischen Fragestellungen wie die Abscheidung von Quantenpunkten auf InP-Basis oder die Herstellung der entsprechenden photonischen Kristalle, sowie ihre Wechselwirkung miteinander, zu untersuchen.

Konzept einer effizienten Einzelphotonenquelle:

Für die Erzeugung einzelner Photonen ist ein Quantenemitter notwendig. Ein halbleiterbasierender Quantenpunkt bildet angesichts seiner atomartigen elektronischen Struktur die Möglichkeit der Einzelphotonenemission und soll daher die Grundlage der Einzelphotonenquelle bilden. Da eine punktförmige, isotrope Lichtquelle in alle Raumrichtungen abstrahlt, aber nur wenige Photonen aufgrund des hohen Brechungsindexunterschieds zwischen Halbleiter und Luft den Halbleiter verlassen können, ist es zur Effizienzsteigerung notwendig, den Quantenpunkt in eine geeignete photonische Umgebung einzubetten, um so die Emission richten zu können. Photonische Kristalle bieten die Möglichkeit die photonische Umgebung des Quantenpunktes maßzuschneidern und stellen gleichzeitig Resonatoren hoher Güte dar. Auf diese Weise kann die Emission in den Halbleiter unterdrückt und gleichzeitig die Abstrahlung in die Resonatormode verstärkt werden. Dabei sind allerdings die Emission des Quantenpunktes wie auch die Resona-

tormode spektral äußerst scharf definiert. Die verschiedenen Fertigungstoleranzen erlauben es jedoch nicht, dass die Quantenpunkte und der photonische Kristall von Hause aus so präzise zu fertigen sind, dass ihre Resonanz garantiert ist. Es muss daher eine Möglichkeit bestehen, die beiden Teile, Emitter und Resonator, nachträglich spektral aufeinander abzustimmen. Dazu wurden bisher sowohl thermische Abstimmung, als auch eine Abstimmung des Resonators über Gaskondensation eingesetzt. Im Gegensatz zu diesen eher statischen Ansätzen soll in unserem Konzept, mit einem schnellen Mechanismus die Quantenpunktemission in die optische Mode des Resonators geschoben werden um so dynamisch eine schnelle und deterministische Emission der einzelnen Photonen zu erzwingen. Daher verwenden wir den *Quantum Confined Stark Effects* (QCSE). Dabei wird ein elektrisches Feld über einen Schottky-Kontakt in Sperrrichtung angelegt und so die Emission des Quantenpunktes zu längeren Wellenlängen hin verschoben. Da aber dadurch eine gleichzeitige elektrische Befüllung des Quantenpunktes mit Ladungsträgern nicht möglich ist, sollen diese optisch, direkt am Ort des Quantenpunktes, mittels eines Lichtpulses erzeugt werden. Das Konzept sieht vor, diesen Lichtpuls in einer darunterliegenden, monolithisch integrierten LED zu erzeugen und ist in Abbildung 1 schematisch dargestellt.

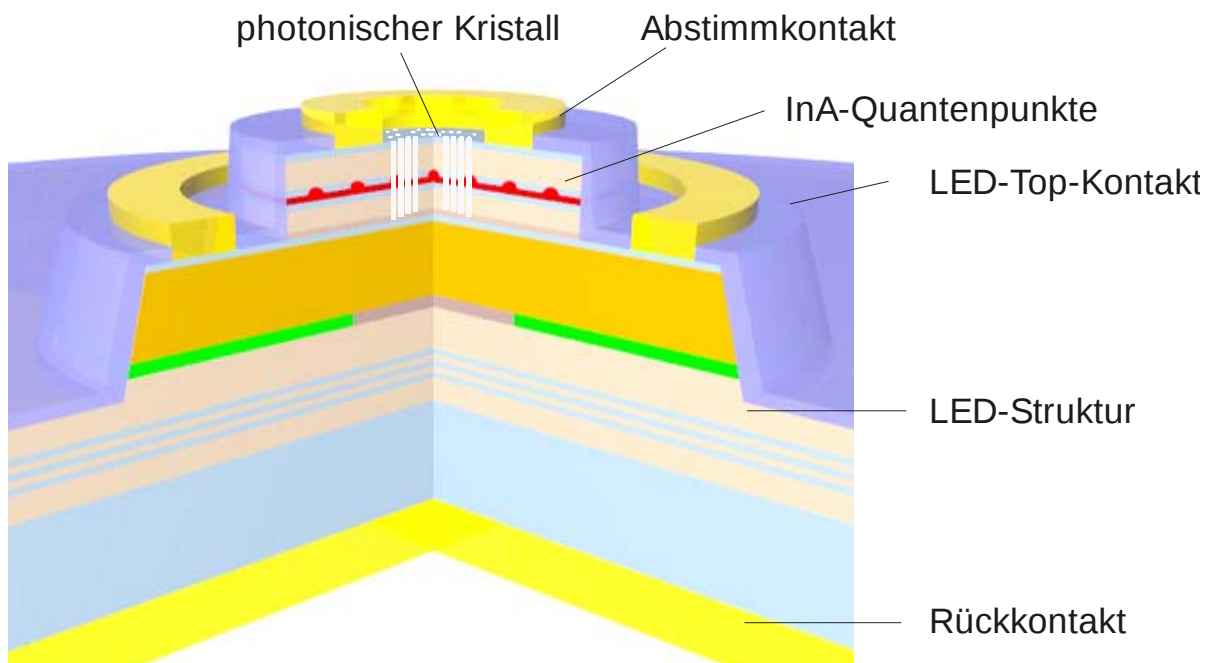


Abb. 1: Favorisiertes Konzept bestehend aus Quantenpunkten, Resonator und LED

2 Ursprünglicher Arbeitsplan

Die im Rahmen dieses Projektes notwendigen Arbeiten ließen sich zwei völlig unterschiedlichen Bereichen zuordnen. Einerseits waren es materialwissenschaftliche Fragen, die gelöst werden mussten, also wie z.B. Quantenpunkte mit einer Emissionswellenlänge um $1,5\text{ }\mu\text{m}$ realisiert werden können und wie Resonatoren in den entsprechenden Materialien zu fertigen sind. Andererseits stand die Evaluierung des Konzepts für ein Bauelement an, was zumindest grundsätzlich von der Materialfrage als unabhängig angesehen werden kann. Die beiden Themenbereiche wurden daher parallel bearbeitet. Zu Beginn des Projektes gehörte die Herstellung von Quantenpunkten mit Emissionswellenlängen von $1,55\text{ }\mu\text{m}$ nicht zum Stand der Technik. Weil aber schon zu Beginn des Projektes Herstellungsprozesse für kurzweilig emittierende Quantenpunkte (bei ca. 900nm) in geringer Oberflächendichte, sowie die Herstellung photonischer Kristalle auf Galliumarsenid (GaAs)-Basis bekannt waren, konnte schon in einer frühen Phase des Projekts auch mit der Evaluierung des Bauelementkonzeptes auf GaAs-Basis begonnen werden.

Beschreibung der Meilensteine im Einzelnen:

Meilenstein 1: Wachstum von Quantenpunkten mit Emissionswellenlängen um $1,55\text{ }\mu\text{m}$
Zu diesem Zeitpunkt sollten nach Optimierung der Wachstumsparameter die Abscheidung von Quantenpunktstrukturen, deren Emissionswellenlänge des Grundzustandes um $1,55\text{ }\mu\text{m}$ liegt, reproduzierbar möglich sein (Monat 12 der Projektlaufzeit, M12).

Meilenstein 2: Strukturen mit niedriger Quantenpunktdichte
Durch Veränderung der Abscheidebedingungen sollten nun auch Strukturen mit niedrigen Quantenpunktdichten herstellbar sein (M18).

Meilenstein 3: Herstellung 2-dimensionaler photonischer Kristalle
Ausgehend von teilweise bereits vorhandenem Know-How bei der trockenchemischen Strukturierung von (AlGaIn)As/InP-Heterostrukturen sollte zu diesem Zeitpunkt die Herstellung von 2-dimensionalen photonischen Kristallen mit definierten Eigenschaften auf InP-Basis zuverlässig möglich sein (M18).

Meilenstein 4: Fertigung von Mikroresonatoren
Zum Ende des 24-ten Monats der Projektlaufzeit sollte das Design und die Technologieentwicklung zur Fertigung von kompletten Mikroresonatoren mit einem Wellenleiter, Quantenpunkten als aktivem Material und DBR-Spiegeln abgeschlossen worden sein (M24).

Meilenstein 5: Single-Photon-Counting bei Wellenlängen bis $1,5\text{ }\mu\text{m}$
Zeitgleich sollte der bereits vorhandene Messplatz für die Einzelphotonenzählung durch den Einsatz neuartiger Detektoren auf Wellenlängen bis zu $1,5\text{ }\mu\text{m}$ erweitert worden sein (M24).

Meilenstein 6: Spannungsgesteuerte Mikroresonatoren mit Quantenpunkten

Zu diesem Zeitpunkt soll ein elektrischer Abstimmmechanismus zwischen Quantenpunkt-emission und Resonatormode entwickelt worden sein.

Meilenstein 7: Photon-Anti-Bunching

Mit den in Meilenstein 6 gefertigten, optisch gepumpten und elektrisch abstimmbaren Mikroresonatoren sollte der Effekt des „Photon-Antibunchings“ in der Emission von einzelnen Quantenpunkten in einer optisch gepumpten Mikrokavität demonstriert worden sein (M36).

Meilenstein 8: Optisch gepumpte Einzelphotonenquelle

Zu diesem Zeitpunkt sollte ein Demonstrator einer optisch gepumpten, hocheffizienten Einzelphotonenquelle realisiert worden sein (M42).

Meilenstein 9: Evaluierung der Fertigung elektrisch gepumpter Einzelphotonenquellen
Aufbauend auf den Ergebnissen mit optisch gepumpten Einzelphotonenquellen sollten die Voraussetzungen für die Fertigung einer elektrisch gepumpten Quelle evaluiert worden sein (M48).

Aufgabe	2005	2006	2007	2008
Epitaxie				
Abscheidung von Quantenpunkten auf InP	M1			
Herstellung von Quantenpunktstrukturen mit niedriger Dichte		M2		
Technologie				
Herstellung photonischer Kristalle auf InP-Basis		M3		
Fertigung von Mikroresonatoren			M4	
Herstellung von Mikrokontakten				
Optische Charakterisierung				
Photolumineszenzspektroskopie an einzelnen Quantenpunkten				
Optimierung der Einzelphotonenzählung für 1,3 - 1,5µm			M5	
Photonkorrelationsspektroskopie				M7
Bauelemente				
Spannungsgesteuerte Mikroresonatoren mit Quantenpunkten				M6
Optisch gepumpte Einzelphotonenquellen				M8
Evaluierung von Konzepten zur Fertigung elektrisch gepumpter Einzelphotonenquelle				M9

Tabelle 1: Arbeitsplan laut Antrag

3 Technischer Stand zu Beginn des Projektes

Zu Beginn des Projektes waren grundlegende wachstumsrelevante Parameter wie Wachstumsrate, Temperatur, V-III-Verhältnis und Oberflächenbedeckung für die Bildung von selbstorganisierten (Ga)InAs-Quantenpunkte auf GaAs-Substrat bekannt [1]. Des Weiteren konnten geringe Oberflächendichten der Quantenpunkte erreicht werden. Die Emissionswellenlänge solcher Quantenpunkte lag allerdings bei etwa 900 nm. Solche Quantenpunkte konnten in neutralem und geladenem Zustand [2] mittels Mikrophoto-lumineszenzmessungen untersucht werden. Für die Herstellung von langwelligen InAs-Quantenpunkten auf InP-Basis gab es allerdings noch keine Erkenntnisse. Daher musste auf diesem Gebiet noch fundamentale Entwicklungsarbeit geleistet werden. Die Charakterisierung von langwelligen Quantenpunkten erforderte den Aufbau neuer Messplätze und die Anschaffung neuer Detektoren.

Auch wurden erste Versuche zur Herstellung und Charakterisierung von photonischen Kristallen auf GaAs-Basis durchgeführt, jedoch waren noch keine Kenntnisse über die Herstellung von Nanostrukturen auf InP-Basis vorhanden. Allerdings waren viele bekannte Elemente der Prozesstechnologie auf InP-Basis, aufgrund der erfolgreichen Herstellung von InP-basierenden VCSELn an unserem Lehrstuhl, auch für die Entwicklung eines Bauteils für eine Einzelphotonenquelle nutzbar.

Teil 2

1. Verwendung der Zuwendungen

Personal:

Trotz des umfangreichen Arbeitsprogramms konnte aus Budget-Gründen nur eine Doktorandenstelle beantragt werden. Trotz dieser erheblichen Einschränkung wurden parallel die Epitaxie-Technik der Quantenpunkte auf InP-Basis, sowie die Prozess-technik für Resonatoren und ein Bauteilkonzept auf InP-Basis entwickelt. Dabei hat dieses Projekt von vorhandenen Erfahrungen im Bereich der Spektroskopie und der Technologieentwicklung am Lehrstuhl und Institut profitieren können.

Betrieb der Epitaxieanlage:

Die Wachstumsparameter für die reproduzierbare Herstellung von Quantenpunkten sind nicht mit denen des umgebenden Matrixmaterials kompatibel. Wie unter Punkt 2 (Erzielte Ergebnisse) dargestellt, ist ein extrem niedriger Indiumfluss absolut notwendig für die Herstellung von Quantenpunkten niedriger Dichte auf InP-Basis, für die Epitaxie des umgebenden Materials wird aber ein wesentlich höherer Fluss benötigt. Daher wurde eine zweite Indium Zelle (Typ: Downward-Looking-Indium-Cell) beschafft. Um Quantenpunkte sowie Teststrukturen für Resonatoren und Bauelemente mittels Molekularstrahlepitaxie zu entwickeln, waren zahlreiche InP-Wafer notwendig (ca. 35 Stück im Jahr). Darüber hinaus fielen (wie veranschlagt) laufende Kosten für den Betrieb der Molekularstrahlepitaxieanlage an.

Messtechnik:

Damit die Quantenpunktproben und photonischen Kristalle orts aufgelöst optisch charakterisiert werden konnten, musste ein konfokaler Mikrophotolumineszenz-Aufbau für den entsprechenden Wellenlängenbereich um 1,55 μm aufgebaut und betrieben werden. Dies hat die Anschaffung eines Monochromators, sowie eines InGaAs-Photodiodenarrays sowie entsprechender Kleinteile (Fasern, Faserkoppler, Spiegel, Linsen) erfordert.

Da keine Si-APDs für zeitaufgelöste Messungen oder Einzelphotonen-Messungen verwendet werden können, mussten für den Wellenlängenbereich um 1,55 μm GaInAs-APDs angeschafft werden. Wie unter Punkt 5 genauer ausgeführt wird, sind diese nur im gepulsten Betrieb einsetzbar, daher musste auch die Anregung gepulst erfolgen. D.h. als Anregungs-Laser wurde ein ps-Laser verwendet, die Verlängerung des Garantievertrages wurde daher in diesem Projekt beantragt.

2. Erzielte Ergebnisse

Epitaxie:

Einfahren der neuen Indium-Zelle:

Wie unter „Verwendung der Zuwendungen“ bereits dargelegt, wurde die Molekularstrahlepitaxieanlage um eine spezielle „Downward-Looking-Zelle“ der Firma Veeco Instruments erweitert und in den ersten Monaten des Projekts in Betrieb genommen. Da alle unteren Ports der Gen-II Anlage bereits mit Sumozellen (Aluminium, Gallium, Indium I, Tellur) belegt waren, konnte oben nur der Typ der „Downward-Looking-Zelle“ eingebaut werden. Eine zweite Indium-Zelle war nötig, da die Epitaxie von Quantenpunkten niedriger Dichte auf InP-Basis nur mit äußerst geringen Raten möglich ist. Allerdings wird das umgebende Matrixmaterial (AlGaInAs) mit einer 50 – 100 mal höheren Rate abgeschieden. Eine Veränderung der Indium-Rate mit nur einer Zelle um solche Größenordnungen ist praktisch kaum durchführbar. Dies würde zum einen lange Wachstumsunterbrechungen erfordern, die sich negativ auf die Kristallqualität auswirken würde, zum anderen wäre die Reproduzierbarkeit nicht gegeben.

Quantenpunkte auf GaAs-Basis:

Da zu Beginn dieses Projekts nicht klar war, ob die Epitaxie von Quantenpunkten auf GaAs mit geringer Dichte und Emissionswellenlängen bei 1,55 μm (bei tiefen Temperaturen 5-50 Kelvin) möglich sein könnte, wurde zunächst versucht die bereits bekannte Herstellung von GaAs-basierten InAs-Quantenpunkten zu längeren Wellenlängen hin zu erweitern.

Die Emissionswellenlänge von Quantenpunkten hängt natürlich entscheidend von der Bandlücke des verwendeten Materials für die Quantenpunkte, aber auch vom Matrixmaterial, von der Größe der Quantenpunkte und von der hydrostatischen Verspannung im Quantenpunkt ab (welche starken Einfluss auf die Bandlücke hat). Auf GaAs-Basis wurde daher versucht die Bildung der selbstorganisierten Quantenpunkte unter Berücksichtigung all dieser Effekte zu beeinflussen.

Um nun die Wellenlänge der InAs-Quantenpunkte auf GaAs-Substrat zu längeren Emissionswellenlängen hin zu verschieben, wurde zunächst versucht, das Quantenpunktmaterial dahingehend zu optimieren. Ein Einbau von Antimon (Sb) in den InAs-Quantenpunkt oder reine InSb-Quantenpunkte würde die Bandlücke des Quantenpunktes absenken. Leider zeigten entsprechende Versuche keinen Erfolg. Der Grund hierfür liegt in der höheren Gitterfehlpassung von In(As)Sb auf GaAs im Vergleich zu InAs auf GaAs. Dies führt zu sehr kleinen Quantenpunkten, in denen die Übergangsenergie aufgrund der viel höheren Quantisierungsenergie sogar ins kurzwellige verschoben wurde. Zwar gelang es einer Gruppe in Japan Antimon in bereits gebildete Quantenpunkte einzubauen, aber eine schlechte optische Aktivität war unter anderem die Folge. Diese lässt sich auf eine höhere Anzahl von Fehlstellen zurückführen, die aufgrund der hohen Verspannung entstehen [3]. Des Weiteren führt Antimon auf der Oberfläche zu hohen Dichten, da Antimon als Kondensationskeim für Quantenpunkte dient [4]. Eine Optimierung des Matrixmaterials ist nicht möglich, da die Bandlücke des Matrixmaterials

auf GaAs-Basis nicht durch ein anderes gitterangepasstes Matrixmaterial abgesenkt werden kann.

Eine Erhöhung der Wellenlänge von InAs-Quantenpunkten auf GaAs-Basis konnte mittels eines sog. „strain reducing layer“ (SRL) erreicht werden. Die Quantenpunkte werden dabei mit einer SRL-Schicht bestehend aus GaInAs überwachsen. Da diese SRL-Schicht selbst verspannt ist, ist deren vertikale Gitterkonstante (in Wachstumsrichtung) größer als die von GaAs und der darin eingebettete Quantenpunkt in vertikaler Richtung weniger verspannt. Diese Absenkung der Verspannung führt auch zu einer Absenkung der Bandlücke und damit zu einer Verschiebung der Emission zu längeren Wellenlängen. Experimentell konnte auf diese Weise eine Rotverschiebung von 1,26 μm auf 1,32 μm erreicht werden ($\text{Ga}_{0,82}\text{In}_{0,18}\text{As}$, 3nm dick) Allerdings nimmt für dickere SRL-Schichten bzw. Schichten mit höheren Indium-Gehalt die Verspannung so weit zu, dass die optische Qualität aufgrund von Defektbildung stark abnimmt.

Auch wenn die Wellenlänge von 1,5 μm auf GaAs-Substrat nicht erreicht werden konnte, so konnten doch grundlegende Untersuchungen vor allem über den Einfluss der Wachstumsrate durchgeführt werden. So konnte erstmals mit dem Einsatz extrem niedriger Wachstumsraten auch auf GaAs-Basis eine geringe Quantenpunktdichte auf fast dem gesamten Wafer erreicht werden. Entscheidend für eine geringe Quantenpunktdichte ist eine hohe Migrationslänge der ankommenden Indium-Atome, wofür eigentlich eine hohe Temperatur nötig ist. Bei hoher Temperatur findet aber verstärkt auch Desorption vor allem der In-Atome statt und da der Desorptionsprozess ein thermisch aktivierter Prozess ist, wirken sich bei höheren Temperaturen kleine Temperaturschwankungen auf dem Wafer stärker auf die desorbierte Indium-Menge und damit auf die InAs-Bedeckung und die effektive Indium-Rate aus. Kleinere Temperaturschwankungen treten auf dem Wafer immer in der Nähe der Halteklammern oder einfach durch leicht unterschiedliche Montage des Wafers auf der Halterung auf. Weil aber eine geringere Wachstumsrate eine längere Migrationszeit und damit eine größere Migrationslänge der ankommenden Indium-Atome erlaubt, kann gleichzeitig die Wachstumstemperatur niedriger gewählt werden. Eine niedrigere Temperatur bei gleichzeitig hoher Migrationslänge führt so zu einem stabileren Satz von Wachstumsparametern über den gesamten Wafer. Dieser Zusammenhang ist entscheidend bei der Epitaxie von Quantenpunkten auf InP-Substrat, da dort das Quantenpunkt看stum nur in einem sehr engen Parameterraum möglich ist.

Quantenpunkte auf InP-Basis:

Da schon zu Beginn des Projektes nicht ausgeschlossen wurde, dass die Wellenlänge von 1,55 μm auf GaAs-Substrat nur schwer oder gar nicht zu erreichen sein wird und andererseits InP-basierende Materialien prinzipiell die Emission bei 1,55 μm ermöglichen, wurde schon früh mit der Abscheidung von InAs auf InP-basierenden Matrixmaterialien begonnen. Die Möglichkeit sowohl Aluminium-Indium-Arsenid (AlInAs) als auch Gallium-Indium-Arsenid (GaInAs) gitterangepasst auf InP herstellen zu können, ermöglicht den Einsatz verschiedener gitterangepasster (den Quantenpunkt umgebenden) Matrixmaterialien mit unterschiedlicher Bandlücke. Damit existiert eine weitere Möglichkeit, die Emissionswellenlänge von Quantenpunkten maßzuschneidern.

Allerdings bilden sich bei der Deposition von InAs auf InP-Substrat oder den gitterangepassten Materialien AlInAs oder GaInAs keine Quantenpunkte, sondern elongierte Nanostrukturen, sog. Quantum Dashes. Diese treten in hoher Oberflächendichte auf und sind entlang der [110]-Richtung ausgerichtet. In Abbildung 2 ist eine „atomic force microscopy“ (AFM) Messung dieser Nanostrukturen gezeigt.

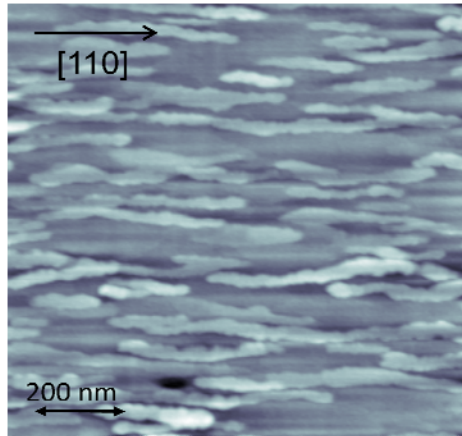


Abb. 2: $1\mu\text{m}^2$ AFM-Aufnahme von Quantum Dashes auf GaInAs

Diese Quantum Dashes haben eine Höhe von bis zu 5 nm, eine Breite von ca. 40 nm und eine längliche Ausdehnung von mehreren hundert Nanometern. Aufgrund der starken Elongation ist nicht zu erwarten, dass diese Quantum Dashes einzelne, (genügend weit) voneinander getrennte Energieniveaus besitzen, um sie für die Erzeugung einzelner Photonen einsetzen zu können. Des Weiteren sind diese Strukturen für die Einbettung in photonische Kristalle aufgrund ihrer hohen Dichte nicht geeignet, da nur ein einzelner Quantenpunkt an die Kavitätsmode gekoppelt werden soll.

Über die Gründe der Bildung von Quantum Dashes finden sich in der Literatur verschiedene, teils widersprüchliche Angaben. Unter anderem wurde die Bildung von Gruppe-V-Dimeren an der Oberfläche [5] oder der Betrag der Gitterfehlpassung [6] als Grund angeführt. Daher waren auf diesem Gebiet grundlegende Untersuchungen notwendig, um die Migrationslänge der Indium-Atome vor allem senkrecht zur Ausrichtung der Quantum Dashes zu erhöhen. Dabei entdeckten wir, dass nicht nur die anisotrope Migrationslänge, sondern auch die Menge an Indium an der Wachstums-Oberfläche einen entscheidenden Einfluss auf die Bildung der Nanostrukturen hat. Dabei ist nicht nur das in der Oberflächenschicht gezielt abgeschiedene Indium entscheidend, sondern auch das aus dem tieferliegenden Matrixmaterial nach oben segregierte Indium. Es wurden daher Versuche angestellt Indium-freie Wachstumsoberflächen auf InP-Basis herzustellen. Dies konnte mit den nachfolgend beschriebenen Gallium-Antimonid-Sublayer auch erreicht werden.

Quantenpunkte mit GaSb-Sublayer:

Aufgrund der Tatsache, dass sich vor allem auf stark indiumhaltigen Schichten Quantum Dashes ausbilden, wurde versucht direkt unter die Quantenpunkte dünne indiumfreie Schichten abzuschneiden (Sublayer). Die angestellten Wachstumsuntersuchungen zeigten, dass sich am besten ein stark kompressiv verspannter, nur zwei Monolagen dicker (ca. 0,6 nm) Sublayer aus Gallium-Antimonid (GaSb) eignet. Indium segregiert nicht durch den ohnehin schon stark verspannten Sublayer, da sich dabei die Legierung GaInSb ausbilden würde, die eine noch höhere Verspannungsenergie besitzen würde. Abbildung 3 zeigt AFM-Messungen von Quantenpunkten auf GaInAs gitterangepasst auf InP (**Meilenstein 1**). Diese Quantenpunkte haben eine Höhe von ca. 10 nm und einen Durchmesser von ca. 40 nm. Damit sind sie von der Größe her mit den bekannten Quantenpunkten auf

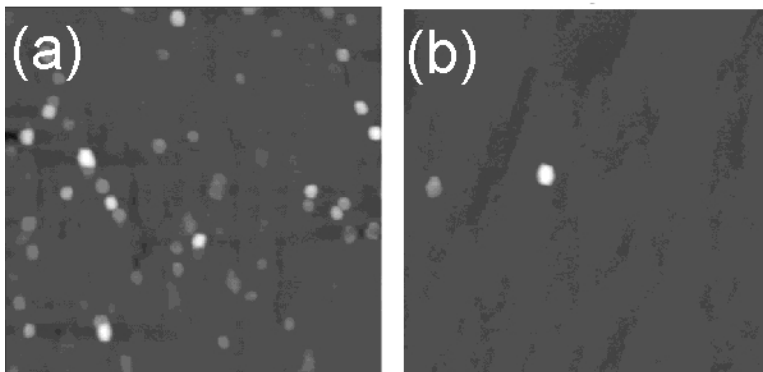


Abb. 3: 1 μm^2 AFM-Aufnahme von Quantenpunkten auf InP-Basis mit GaSb-Sublayer: (a) 2,3 ML InAs Bedeckung, (b) 2,1 ML InAs Bedeckung

GaAs vergleichbar. Auch geringe Oberflächendichten von einem Quantenpunkt pro Quadratmikrometer konnten erreicht werden (**Meilenstein 2**). Diese Quantenpunkte erfüllten die strukturellen Anforderungen (Geometrie, Dichte), daher wurden diese nun eingehend optisch untersucht.

Photolumineszenzmessungen (PL) an einzelnen Quantenpunkten deuteten aller-

dings auf eine Typ-II-Bandstruktur hin. Insbesondere PL-Messungen in Anwesenheit eines elektrischen Feldes zeigten ein hohes Dipolmoment (etwa. $1 \text{ e} \times \text{nm}$), dies deutet auf ein räumlich getrenntes Elektron-Loch-Paar hin. Bandstrukturberechnungen des AlGaInAs/GaSb/InAs-QP/AlGaInAs Systems zeigen, dass das Loch in der zweidimensionalen Benetzungsschicht gebunden ist, während das Elektron im Quantenpunkt lokalisiert ist. Der daraus folgende geringere Überlapp zwischen Elektron und Loch bewirkt eine längere Lebensdauer. Daher zeigten die Quantenpunkte nur wenig Photolumineszenz und waren daher für unsere Zwecke leider weniger geeignet.

Verwendung von extrem niedrigen Wachstumsraten:

Aufgrund der schwachen Photolumineszenz der Quantenpunkte auf GaSb-Sublayer, mussten weitere grundlegende Untersuchungen zum Quantenpunktwachstum auf InP-Basis angestellt werden. Die Einflüsse von Wachstumsrate, Temperatur und Bedeckung wurden unter Berücksichtigung der morphologischen Erkenntnisse auf InP-Basis, die mit den GaSb-Sublayer Quantenpunkten gewonnen wurden, weitergehend untersucht. Ziel war es, einen Parameterraum zu finden, der sowohl eine geringe Segregation von Indium aus dem Matrixmaterial (begünstigt die Bildung von Quantum Dashes) als auch eine hohe Migrationslänge der Indium-Atome auf der Oberfläche erlaubt (geringe Quantenpunkt-Dichte). Da beide Vorgänge thermisch aktivierte Prozesse sind, werden für eine hohe Migrationslänge höhere Temperaturen aber für eine geringere Segregation eigentlich geringere Temperaturen benötigt.

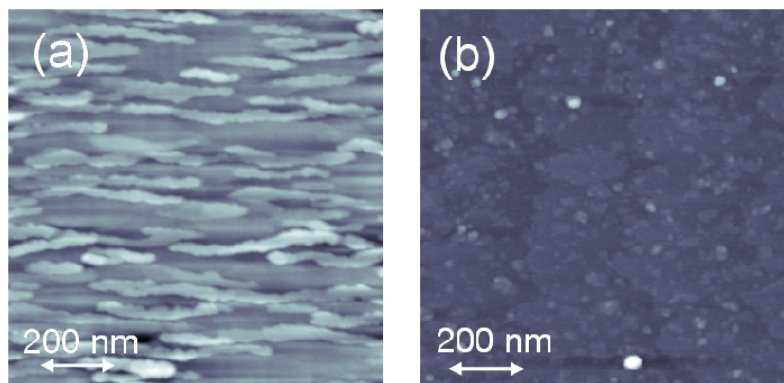


Abb. 4: $1\ \mu\text{m}^2$ AFM-Aufnahme von Quantenpunkten auf InP-Basis: (a) 0,03ML/s InAs-Rate, (b) 0,006 ML/s InAs-Rate

Der Einsatz äußerst geringer Wachstumsraten erlaubt hingegen die Verwendung einer geringeren Wachstumstemperatur bei gleichzeitig langer Migrationszeit und damit hoher Migrationslänge der ankommenden Indium-Atome. Die Wachstumsrate der Quantenpunkte lag bei 0,006 Monolagen pro Sekunde (ML/s) und war damit

etwa um den Faktor 100 geringer als die Wachstumsrate des umgebenden Matrixmaterials. Unter Einsatz dieser geringen Rate konnte ein enger Parameterraum gefunden werden, in welchem sich Quantenpunkte geringer Dichte ausbilden. Abbildung 4 zeigt AFM-Messungen zweier Proben mit jeweils einer InAs-Bedeckung von 2,1 ML und einer Wachstumstemperatur (Thermoelement) von 535°C , die mit Raten von 0,03 ML/s (Abb. 4a) bzw. 0,006 ML/s (Abb. 4b) epitaxiert wurden. Zu erkennen ist ein Übergang von Quantum-Dash-artigen Strukturen, bei einer Rate von 0,03 ML/s, mit einer Breite von ca. 40 nm einer Höhe von 2-4 nm und Längen von mehreren hundert Nanometern hin zu Plateaus an deren Rändern sich Quantenpunkte anlagern. Bei einer Rate von 0,006 ML/s bilden sich schließlich einzelne Quantenpunkte in geringer Oberflächendichte.

Unter Verwendung dieser niedrigen Rate lassen sich in einem engen Parameterfenster (Wachstumstemperatur 525°C - 535°C Thermoelement; 2,1 – 2,6 ML InAs-Bedeckung) reproduzierbar Quantenpunkte herstellen. Da auf GaInAs die ankommenden Indium-Atome die höchste Oberflächenbeweglichkeit besitzen, wurde das Matrixmaterial AlGaInAs als sogenanntes „digital alloy“ hergestellt, d.h. GaInAs und AlInAs werden in Sekundenabständen entsprechend den Anteilen des Aluminiums und Galliums epitaxiert. Mit dieser Methode kann als letzte Schicht unter dem Quantenpunkt (zwei Monolagen Dicke) immer GaInAs verwendet werden, so ist es so möglich auch auf Proben mit hohem Aluminiumgehalt niedrige Quantenpunktdichten zu erreichen

Zwar war das Problem der Quantum-Dash-Bildung schon zu Beginn des Projektes in mehreren wissenschaftlichen Veröffentlichungen publiziert, dennoch hat die Lösung dieses Problems und die Entwicklung von Quantenpunkten in geringer Oberflächendichte auf InP (**Meilenstein 1 und 2**) und mit hoher optischer Qualität mehr Zeit in Anspruch genommen als ursprünglich geplant.

Optische Charakterisierung:

Da in dem entwickelten Herstellungsverfahren auf InP-Basis nur Proben mit Quantenpunkten in geringer Dichte fabriziert werden konnten, musste die optische Charakterisierung mittels Mikro-Photolumineszenz (μ -PL) bei tiefen Temperaturen durchgeführt werden. Abbildung 5 zeigt einen typischen Aufbau für die Charakterisierung einzelner Quantenpunkte.

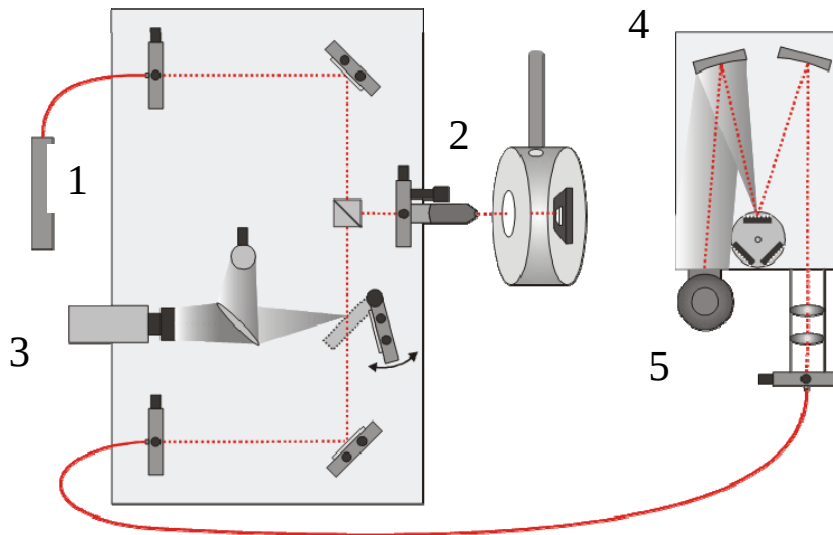


Abb. 5: Messaufbau für Mikrophotolumineszenz
(1) Anregungslaser, (2) Helium-Durchfluss-Kryostat, (3) CCD-
Imaging, (4) Gitterspektrometer, (5) InGaAs-Diodenarray

Dabei wird ein Anregungslaser (1) über eine Singlemode-Faser in das Setup eingekoppelt und über einen Spiegel und Strahlteiler mit einem Objektiv auf die Probe fokussiert, die sich in einem Helium-Durchfluss-Kryostaten (2) befindet. Die Größe des Laser-Fokus definiert daher die räumliche Auflösung mit der gemessen werden kann. Da der Fokus beugungsbegrenzt ist, ist die räumliche

Auflösung im Bereich (abhängig von der Wellenlänge des Anregungslasers) eines Quadratmikrometers. Die Position des Messflecks auf der Probe und der Fokus des Lasers kann über einen Klappspiegel und ein CCD-Imaging-System (3) überprüft werden. Das PL-Licht wird wiederum über eine Glasfaser gesammelt und in ein Triax-Spektrometer (4) eingekoppelt. Die Detektion erfolgt mit dem erwähnten InGaAs-Diodenarray (5). Der ganze Aufbau ist modular gehalten, so dass ohne größere Umbauten der Anregungslaser (gepulste Anregung) oder das Spektrometer umgebaut werden können (Single Photon Counter).

Charakterisierung der Quantenpunkte auf InP-Basis:

Die Quantenpunkte, die mittels des „ultra low growth rate“-Verfahrens hergestellt wurden, wurden mit Hilfe des oben beschriebenen μ -PL-Aufbaus charakterisiert. Wie oben bereits erwähnt, kann durch Variation der Bandlücke des Matrixmaterials die Quantisierungsenergie im Quantenpunkt verändert werden. So emittieren Quantenpunkte auf AlInAs bei etwa 1100 nm (Aluminiumanteil 48%) und Quantenpunkte eingebettet in AlGaInAs mit einem Aluminiumanteil von 4-15 % im optischen C-Band um 1550 nm. Abbildung 6 zeigt zwei Spektren einzelner Quantenpunkte in den beiden Absorptionsminima von Glasfasern, im optischen O-Band um 1300 nm und optischen C-Band um 1550 nm. Die Abbildungen zeigen einzelne, spektral schmale Emissionslinien. Messungen bei verschiedenen Anregungsleistungen zeigen sowohl ein exzitonisches, wie auch

biexzitonisches Verhalten mit einer Sättigung zu höheren Leistungen. Die Emissionslinien sind daher eindeutig auf Quantenpunkte zurückzuführen.

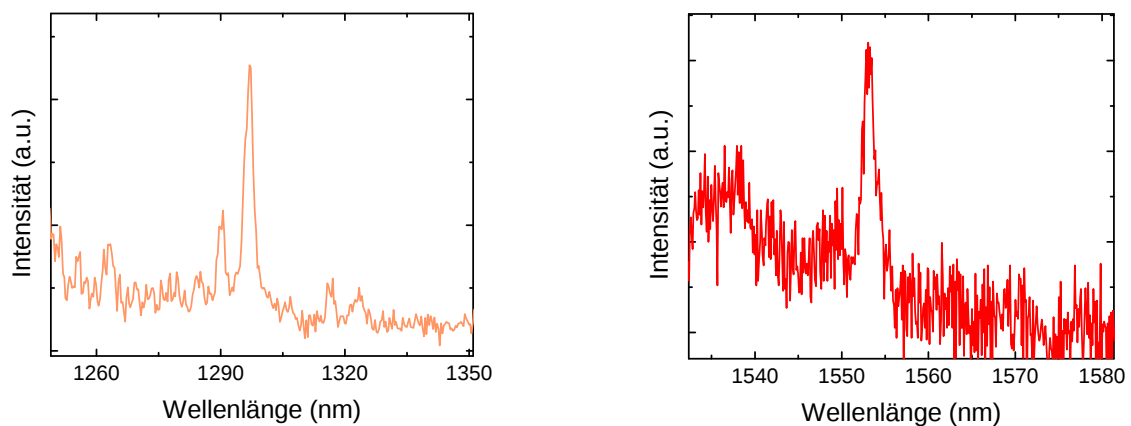


Abb. 6: μ -PL Messungen von Quantenpunkten im optischen O-Band (links) und optischen C-Band (rechts)

Einzelphotonenzählung mittels „single photon avalanche diodes“:

Mit der Verfügbarkeit von Quantenemittern bei Telekommunikationswellenlängen, konnten nun der Meilensteine 5, die Zählung einzelner Photonen und der Meilenstein 6, die Korrelationsmessungen, d.h. der Nachweis der Einzelphotonenemission angegangen werden.

Wie im Punkt „**Messtechnik**“ bereits kurz erwähnt, wurden für dieses Projekt sogenannte „single photon avalanche diodes“ (SPAD) der Firma idQuantique (Model id201) angeschafft. Um Rauschen durch thermisch generierte Ladungsträger zu minimieren, müssen diese im Gegensatz zu Silizium basierenden SPADs, im „gate“-Modus betrieben werden, d.h. die Öffnungszeit des Detektors ist nur sehr kurz (2,5-10 Nanosekunden). Die maximale Trigger-Frequenz bei den verwendeten SPADs beträgt vier Megahertz. Im Falle einer Detektion (Photon oder Dark-count) ist die Totzeit des Detektors sehr lange (einige Mikrosekunden) um sog. „after pulsing“ zu vermeiden (d.h. Dark-counts aufgrund vorheriger Messungen). Dies limitiert zusätzlich die Detektionsrate. Diese Messmethode setzt voraus, dass die Öffnungszeit des Detektors mit dem Zeitraum eines zu erwartenden ankommenden Photons synchronisiert wird, die Detektionswahrscheinlichkeit des Photons liegt je nach Betriebsmodus bei bis zu 25%. Der Messaufbau ist in Abbildung 7 gezeigt und aufgrund des modularen Aufbaus relativ ähnlich zu dem Aufbau, der in Abb. 5 dargestellt wurde. Die Filterung einer einzelnen Quantenpunkt-Emissionslinie erfolgt nicht wie in Abb. 5 mittels Spektrometer, sondern in einer Kombination aus „long-pass“ Filtern und (durchstimmbaren) Bandpassfiltern. Die Anregung der Probe erfolgt mittels eines gepulsten ps-Laser (1) (Ti-Sap-Laser), die Laserpulse werden gleichzeitig mit einer Photodiode (2) detektiert und das elektrische Signal als Trigger-Signal an die SPAD (3) weitergeleitet. Da die Frequenz des modengekoppelten Ti-Sap-Lasers bei 80 MHz liegt, also höher als die Frequenz des Detektors, kann nur jeder zwanzigste Laserpuls verwendet werden. Die elektrischen Signale aus SPAD-Detektor und Photodiode werden mittels eines

picoquant „TimeHarp Moduls“ ausgelesen, das eine Zeitauflösung im Picosekundenbereich erlaubt (4). Auf diese Weise lassen sich einzelne Photonen detektieren und zeitaufgelöste Photolumineszenzmessungen durchführen. Es wurden von einer einzelnen Quantenpunktemissionslinie wie in Abb. 5 gezeigt ca. 70 Ereignisse (Einzelphotonen- oder Multiphotonen-Pulse) pro Sekunde gezählt (**Meilenstein 5**). Ein auf den ersten Blick gering erscheinender Wert. Wird aber die geringe Detektionsrate (Faktor 20 niedriger als Si-SPAD) berücksichtigt, ist dieser Wert vergleichbar mit InAs-Quantenpunkten auf GaAs. Lebensdauermessungen an den InP-basierenden Quantenpunkten ergaben Lebensdauern der Exzitonen im Quantenpunkt von $0,7 (\pm 0,2)$ ns. Dieser Wert ist im Bereich dessen, was auch für Quantenpunkte auf GaAs gemessen wurde und spricht daher für eine hohe optische Qualität, da offensichtlich keine schnellen, nicht strahlenden Rekombinationen stattfinden.

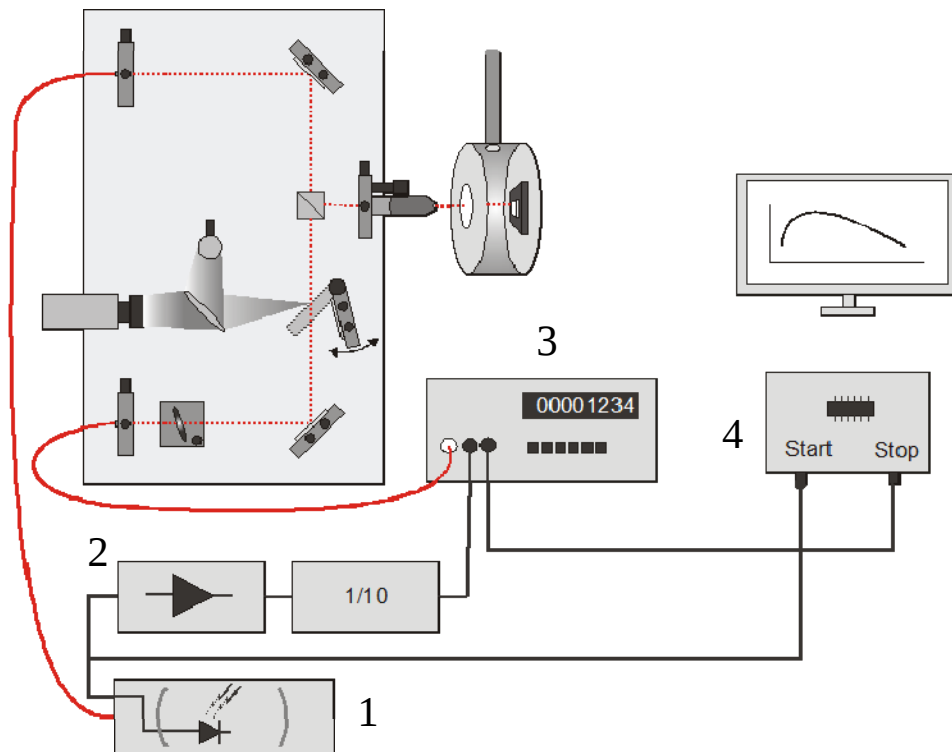


Abb. 7: Messaufbau mit Einzelphotonendetektor:
(1) Anregungslaser (gepulst), (2) Photodiode, (3) InGaAs-SPAD, (4) TimeHarp-Ausleseelektronik

Photonenkorrelationsmessungen:

Der in Abbildung 6 gezeigte Messaufbau ist zwar empfindlich genug, um einzelne Photonen zu messen, kann aber nicht zwischen einem oder mehreren Photonen unterscheiden. Der Grund hierfür liegt in der Betriebsart der Detektoren: Um genügend sensitiv auf einzelne Photonen zu sein, werden die Detektoren im sog. „Geiger-Modus“ betrieben, d.h. die angelegte Spannung ist so groß, dass jeder generierte Ladungsträger in der Verarmungsregion eine sich selbst aufrechterhaltende Lawine erzeugen kann. Um daher den Nachweis von Einzelphotonenemission zu führen, wird ein „Hanbury Brown Twiss“ (HBT)-Experiment verwendet (**Meilenstein 7**). Statt einem Einzelphotonenzähler werden nun zwei verwendet und das Licht über einen 50/50-Strahlteiler auf beide Detek-

toren verteilt. Dabei wird die Korrelation der beiden Detektorsignale gemessen. Treffen nur einzelne Photonen auf den Strahlteiler, kann auch immer nur ein Detektor ein Ereignis messen. Enthalten die Lichtpulse mehr als ein Photon, messen beide Detektoren ein

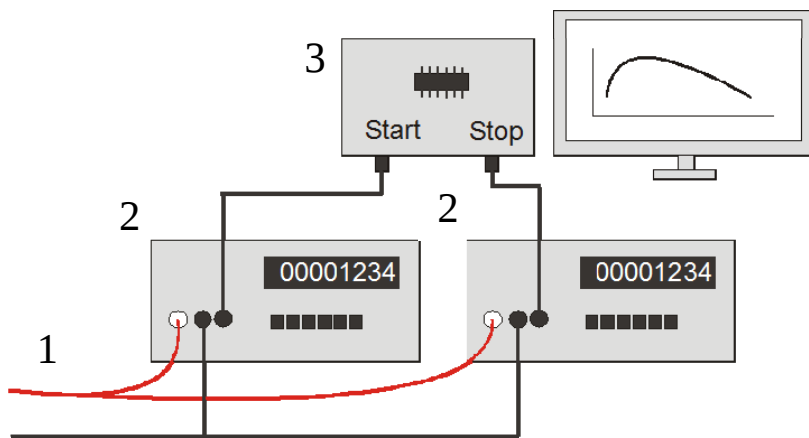


Abb. 8: Messaufbau für HBT-Messungen

(1) Strahlteiler, (2) Einzelphotonendetektoren, (3) picoquant-Karte

Ereignis. Der Messaufbau von Abbildung 7 wird daher wie in Abbildung 8 dargestellt modifiziert: Über einen 2x2 Faserkoppler, der als Strahlteiler dient (1), wird das ankommenden Licht in die beiden SPADs (2) geleitet und die Korrelation der beiden Detektorsignale mit der picoquant-Karte (3) gemessen. Wie oben beschrieben, wurden von einer Quantenpunktlinie etwa 70 counts/s mit einem Hin-

tergrund von ca. 400 count/s gemessen. Dies ist etwa um den Faktor 20 geringer, als mit Si-SPADs möglich wäre und die benötigte Integrationszeit bei Korrelationsmessungen steigt mit den Signal-Rausch-Verhältnis quadratisch an. Daher war an Quantenpunkten im „bulk“-Material (d.h. ohne maßgeschneiderte photonische Umgebung) der Einzelphotonennachweis praktisch leider nicht durchführbar. Dies zeigt umso mehr die Notwendigkeit, die Sammlungseffizienz der Einzelphotonen mittels eines photonischen Kristalls zu steigern.

Technologie: Herstellung von photonischen Kristallen

Herstellung photonischer Kristalle:

Die Entwicklung eines Ätzprozesses für das Quantenpunktmatrixmaterial Al(Ga)InAs erwies sich als aufwändig, da der etablierte CH_4/H_2 -Ätzprozess für InP aufgrund des im Matrixmaterial enthaltenen Aluminiums nicht funktioniert. Daher wurde mit hohem Aufwand an einem Ar/Cl₂-basierenden Ätzprozess gearbeitet. Ein Argon-Chlor-basierender Ätzprozess führt zu schwer flüchtigem InCl₃, welches erst bei ca. 180°C verdampft. Da unser RIE-System über keine Heizung verfügt, wird InCl₃ praktisch nicht abtransportiert. Das Ergebnis solcher Ätzprozesse ist in Abbildung 9 gezeigt. Die REM-Aufnahme zeigen Rauigkeiten im Bereich von fünfzig bis hundert Nanometer, was in der Größenordnung der Durchmesser der Löcher in den zu realisierenden photonischen Kristallen liegt. Der Ausweg bestand nun zum einen darin bei sehr niedrigem Druck zu arbeiten, der unterhalb des Dampfdrucks von InCl₃ liegt. Dies erleichtert den chemischen Abtransport der bei der Ätzung entstehenden Produkte (z.B. InCl₃). Zum andern hat es sich als vorteilhaft erwiesen, die Si₃N₄-Ätzmaske nicht komplett durchzustrukturieren, d.h. die Löcher des photonischen Kristalls in der Ätzmaske nicht direkt bis zum Halbleiter gehen zu lassen, sondern ca. 10-20 nm darüber enden zu lassen. Zu Beginn des Ätzprozesses wird daher

nur Si_3N_4 abgetragen und auf diese Weise wird die Probe soweit im Plasma aufgeheizt, dass das Verdampfen von InCl_3 ermöglicht wird.

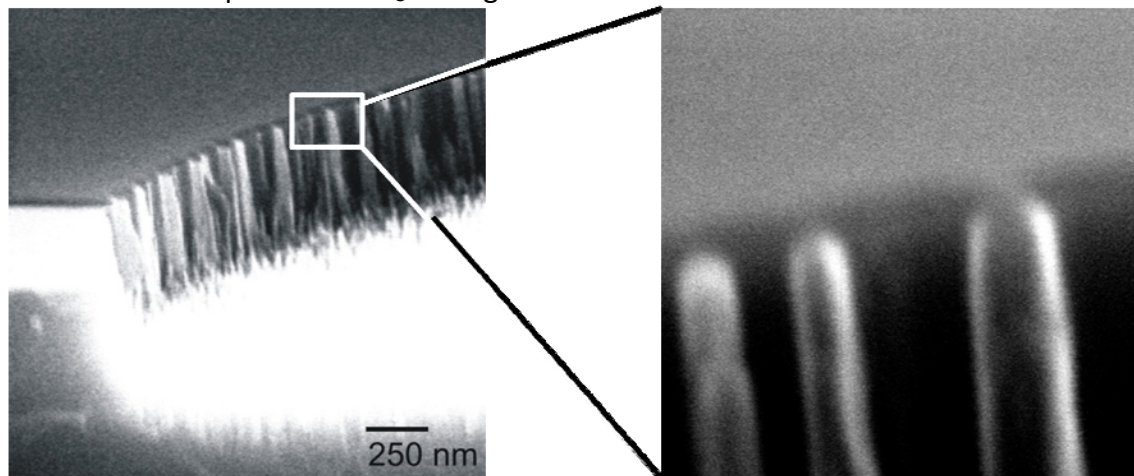


Abb. 9: Standard Ar/Cl_2 -Ätzprozess mit Materialablagerungen (rechts)

Der hierauf aufbauende Herstellungsprozess für photonische Kristalle ist schematisch in Abbildung 10 gezeigt. Als Teststrukturen wurde eine Schichtfolge aus InP - $\text{Al}(\text{Ga})\text{InAs}$ - $\text{InAs}(\text{QDs})$ - $\text{Al}(\text{Ga})\text{InAs}$ verwendet. Da Quantenpunkte auf InP -Basis zunächst noch nicht zur Verfügung standen, wurde als aktives Material im photonischen Kristall Quantum Dashes verwendet. Diese bilden einen breitbandigen Emitter und sind daher für die Charakterisierung des Kristalls besonders geeignet.

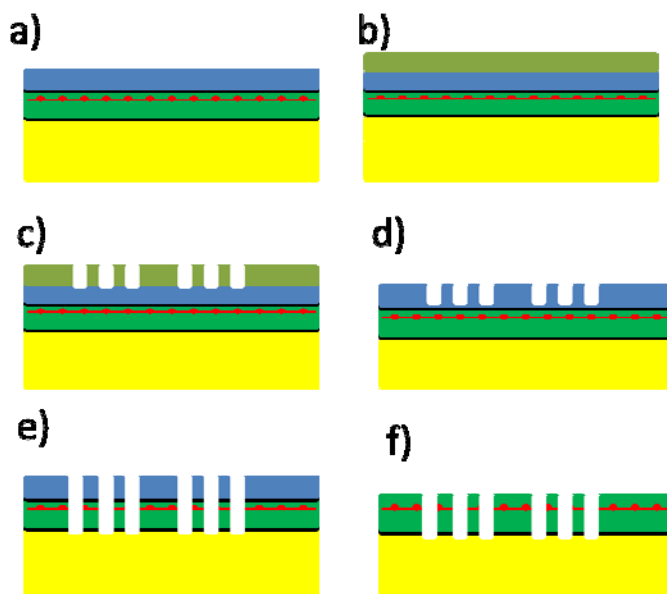


Abb. 10: (a) Abscheidung von Si_3N_4 ,
(b) Aufspinnen von PMMA,
(c) Elektronenstrahlolithographie, (d)
Übertragung der PMMA-Maske in Si_3N_4 , (e)
Chlor-Argon-Ätzprozess, (f) Maske entfernen

Für die Herstellung des photonischen Kristalls, wird aufgrund seiner kleinen Dimensionen Elektronenstrahlolithographie benötigt. Polymethylmethacrylat-Lack (PMMA) ist sensitiv auf die Belichtung mit Elektronen, würde aber dem trockenchemischen Ar/Cl_2 -Ätzprozess nicht standhalten. Daher wird in ersten Prozessschritt Si_3N_4 (270 nm) abgeschieden (a), welches als Maske für den Ar/Cl_2 -Prozess dienen soll. Auf diese Si_3N_4 -Maske wird nun PMMA (120 nm) aufgesponnen (b), mittels Elektronenstrahlolithographie belichtet und entwickelt (c). Die strukturierte PMMA-Maske wird mittels eines trockenchemischen CF_4 -Ätzprozesses in das Si_3N_4 übertragen (d) und anschließend folgt der

Übertrag in den Halbleiter mit einem trockenchemischen Ar/Cl_2 -Prozess (e). Die Si_3N_4 -Maskenreste werden abschließend mit einem CF_4 -Ätzprozess entfernt.

Ein erster Kristall, der mit diesem Fertigungsprozess hergestellt worden ist, ist in Abbildung 11 gezeigt (**Meilenstein 3**). Der Abstand der Löcher beträgt dabei 405 nm, der Radius der Löcher etwa 140 nm. Die Ätztiefe beträgt ca. 700 nm.

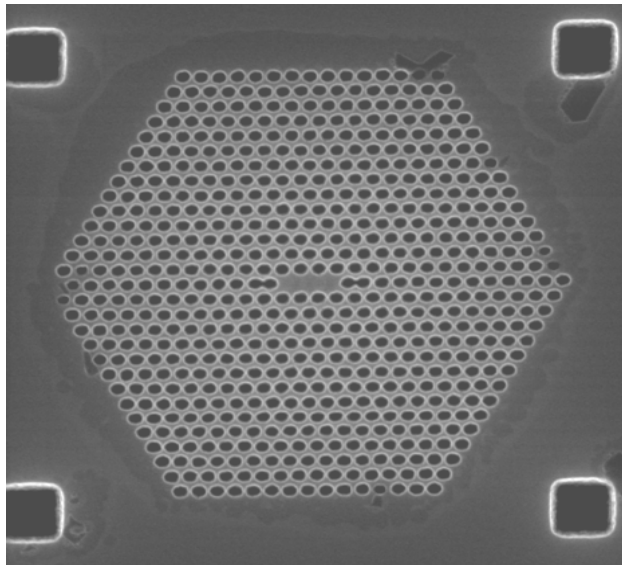


Abb. 11: Photonischer Kristall auf InP-Basis

Fertigung von Mikroresonatoren:

Um nun Resonatoren hoher Güte zu fabrizieren wird in den photonischen Kristall ein sog. „Defekt“ eingebaut. Diese „Störung“ der Periodizität kann Resonatoren hoher Güte bereitstellen. Der in Abb. 11 gezeigte photonische Kristall wurde mit einer L3-Kavität versehen. Die L3-Kavität unterstützt mehrere, zum Teil polarisierte Moden. Entsprechende „finite difference time domain“ Simulationen (FDTD) sind in Abbildung 12a) gezeigt. Die Abbildung zeigt die Feldverteilung innerhalb der Kavität. Die schematische Probenstruktur ist in Abbildung 12b gezeigt.

Die aktive Schicht aus InAs-Quantum

Dashes wiederum ist eingebettet in 300 nm AlInAs. Um keine Photonen in das Substrat zu verlieren, wurde der Kristall auf einen DBR aus AlInAs und AlGaInAs, mit einem dreizehnprozentigen Aluminiumanteil epitaxiiert. Ortsaufgelöste Photolumineszenzmessungen mit dem unter „optische Charakterisierung“ beschriebenen Messaufbau sind in Abbildung 12c abgebildet. Die Abbildung zeigt die breitbandige Emission der InAs-Nanostrukturen, und die optischen Moden (M1, M2, M3), die teils stark polarisiert sind. Die erreichten Q-Faktoren betrugen 2200 (**Meilenstein 4**).

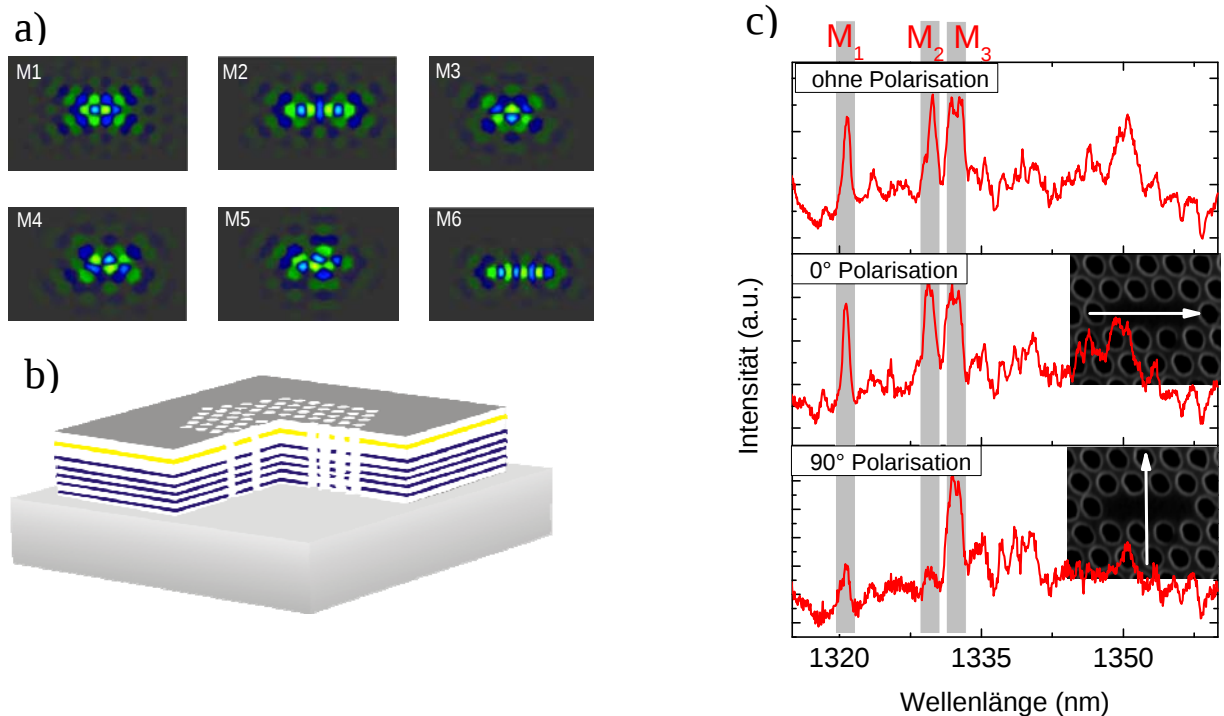


Abb. 12: (a) FDTD-Simulationen des elektrischen Feldes, (b) Probenstruktur des Resonators, (c) Photolumineszenzmessungen der einzelnen Moden

Bauelemente:

Das Konzept (**Meilenstein 9**):

Für ein Konzept, dass mit Resonatormoden und Quantenpunkten arbeitet, ist ein Abstimmungsmechanismus zwischen Resonatormode und Quantenpunktemission zwingend notwendig, da wegen der inhomogenen Ensembleverbreiterung der Quantenpunkte und der begrenzten Fabrikationsgenauigkeit der photonischen Kristalle diese bei unterschiedlichen Wellenlängen liegen. In der Literatur sind mehrere Möglichkeiten beschrieben, um die Emissionswellenlänge der optischen Mode eines photonischen Kristalls zu verschieben, z.B. Temperatur-Tuning [7] und Gas-Kondensation [8]. Auch die Quantenpunktemission kann mittels Temperatur oder Spannung verschoben werden [9].

Das hier verfolgte Konzept sieht für das Bauelement vor, den Quantenpunkt in einem Zustand mit Ladungsträgern zu befüllen in dem er noch nicht resonant mit der optischen Mode des Resonators ist und anschließend die Emissionslinie des Exzitons schnell in Resonanz mit der optischen Mode zu bringen, um so gezielt die Emission nur eines einzelnen Photons zu erzwingen. Dies erfordert einen schnellen Abstimmmechanismus der elektrisch implementiert werden sollte. Ein elektrisches Feld am Ort der Quantenpunkte wird eine Rotverschiebung der Emission aufgrund des *Quantum Confined Stark Effects* (QCSE) verursachen. Dieses Feld kann mit Hilfe eines Schottky-Kontakts, der in Sperrrichtung betreiben wird, realisiert werden. Allerdings ist eine gleichzeitige Injektion von Ladungsträgern in den Quantenpunkt wie z.B. bei sog. Single-Dot-LEDs nicht möglich.

Das Konzept sieht daher ein Bauteil mit drei elektrischen Kontakten vor, welches Wellenlängenabstimmung und Pumpen der Quantenpunkte gleichzeitig und unabhängig voneinander erlaubt und hohe Effizienz durch Einsatz eines photonischen Kristalls gewährleistet. Die Ladungsträger sollen am Ort des Quantenpunkts mittels eines Lichtpulses generiert werden. Dieser Lichtpuls soll in einer monolithisch integrierten LED unterhalb der Quantenpunktschicht erzeugt werden.

Erste Umsetzung auf GaAs-Substrat:

Da die Herstellung von Quantenpunkten und photonischen Kristallen auf GaAs-Substrat schon zu Beginn des Projektes bekannt war, wurde schon früh begonnen das oben beschriebene Konzept auf GaAs-Substrat umzusetzen. Das Bauteil ist schematisch in Abbildung 13 gezeigt. Als Basis dient *n*-dotiertes (Si: $2,5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$) GaAs-Substrat, auf das epitaktisch eine 400 nm dicke *n*-GaAs-Pufferschicht (Si: $3 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$) aufgebracht wird. Zur Verbesserung der Materialqualität wird danach ein Übergitter aus GaAs/Al_{0,3}Ga_{0,7}As epitaxiert. Anschließend wird der aktive Bereich der LED abgeschieden: 200 nm *n*-GaAs-Stromzuführung, Ga_{0,9}In_{0,1}As Quantentöpfe als aktive Zone und 200 nm *p*-GaAs (Beryllium $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$). Darauf wird eine Al_{0,985}Ga_{0,015}As-Schicht zur Stromeinengung, die 600 nm GaAs *p*-Zuleitungsschicht (Be: $1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$) und die Kontaktschicht epitaxiert (Be: $1 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$). Anschließend wird dann der aktive Bereich der Einzelphonenquelle mit den InAs-Quantenpunkten hergestellt, welche in einer 300 nm Al_{0,3}Ga_{0,7}As- und 30 nm GaAs-Matrix eingebettet sind, gefolgt von einer *n*-dotierten GaAs-Deckschicht (Si: $1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$).

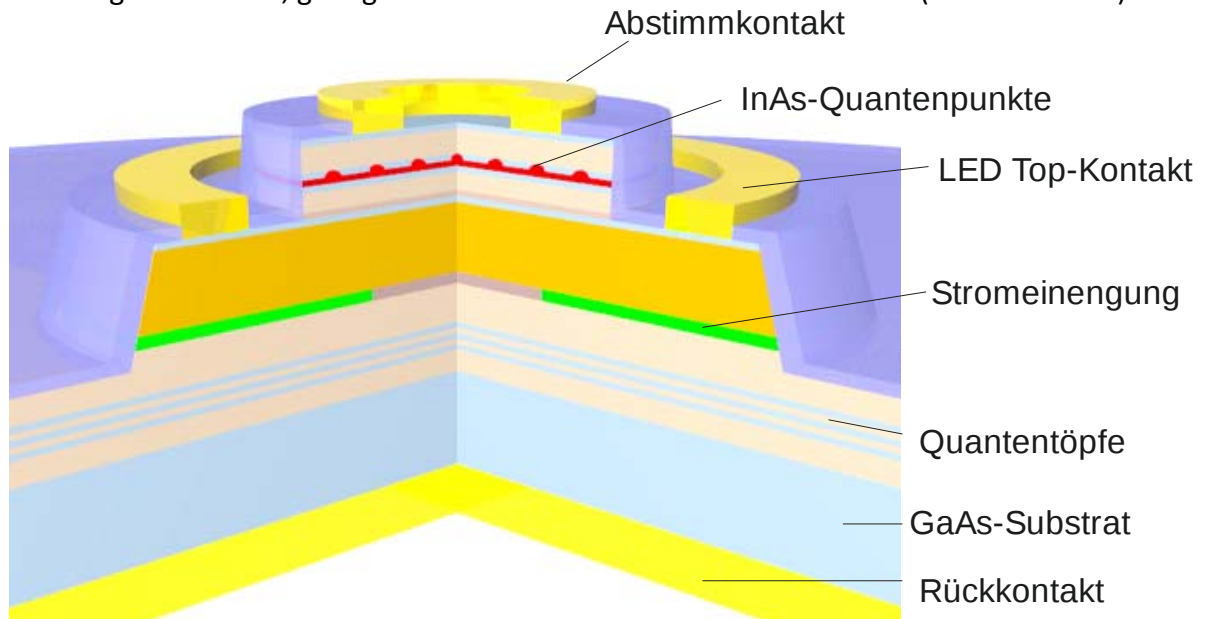


Abb. 13: Schematische Darstellung des Bauteils auf GaAs

Mittels einer Kombination aus mehreren trockenchemischen Ar/Cl₂-Ätzprozessen und selektiven nasschemischen Ätzen (HF konzentriert) werden die Mesen für die Quantenpunkte ($\varnothing$ 11 μm) und die Stromeinengung und Kontakte ($\varnothing$ 22,5 μm) geätzt. Die Stromeinengung ($\varnothing$ 8 μm) selbst wird durch laterale hydrolytische Oxidation von Al_{0,985}Ga_{0,015}As zu Al₂O₃ realisiert. Anschließend werden die Seitenwände mit SiO₂

passiviert und Ti-Pt-Au (50 nm/50 nm/500 nm) Top-Kontakte und ein Ni-Au-Ge-Au (13 nm/33 nm/10 nm/200 nm) Rückkontakt aufgedampft.

Vor der Fabrikation der Mesen und der Kontakte werden die photonischen Kristalle hergestellt, an denen die Maske für die Quantenpunktmesa ausgerichtet wird. Der Herstellungsprozess der Kristalle funktioniert ähnlich zu dem im Kapitel „Technologie: Herstellung von photonischen Kristallen“ beschriebenen Prozess für photonische Kristalle auf InP-Basis. Der Kristall wird nach den trockenchemischen Ätzprozessen selektiv mit Flusssäure unterätzt, so dass eine Membranstruktur entsteht. Diese Membran gewährleistet Wellenführung in der Ebene durch Totalreflexion und bietet so einen 3-dimensionalen Einschluss für die optischen Moden. Abbildung 14 (rechts) zeigt eine Rasterelektronen-Mikroskop (REM) Aufnahme einer photonischen Kristall-Membran auf GaAs-Basis und Abbildung 14 (links) ein fertig prozessiertes Bauteil mit bereits integriertem photonischen Kristall in der oberen Mesa.

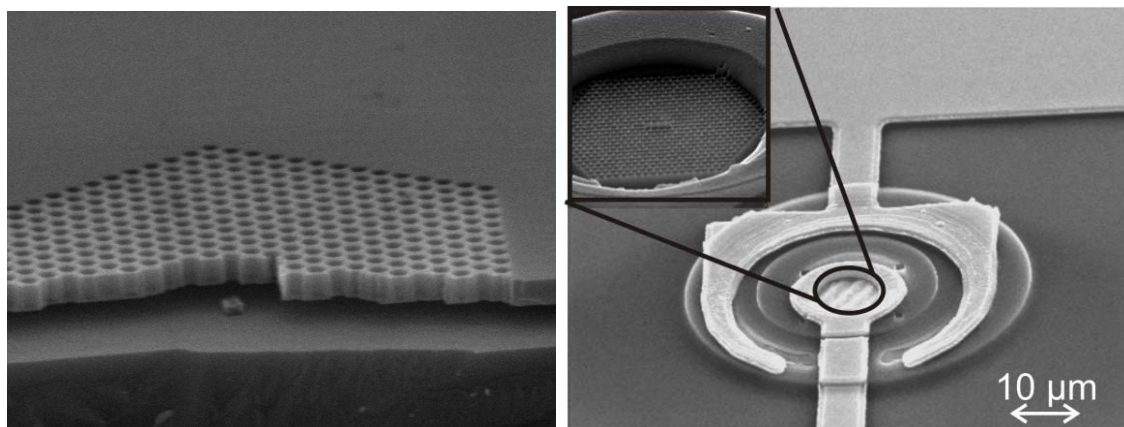


Abb. 14: links: REM-Aufnahme eines fertig prozessierten Bauteils, rechts: photonische Kristall-Membran auf GaAs

Optische Charakterisierung:

Photolumineszenzmessungen auf dem fertig prozessierten Bauteil sind in Abbildung 15 (links) dargestellt. Die blaue Kurve zeigt eine Photolumineszenzmessung bei der neben der Quantenpunktmesa angeregt wurde. Zu erkennen ist das Photolumineszenzsignal des *n*-dotierten GaAs-Substrates (bei etwa 830 nm) und das Photolumineszenzsignal der Quantentöpfe der Diode (bei 870 nm). Wird dagegen mit dem Laser auf der oberen Mesa ($\varnothing$ 11 μ m) angeregt, wie bei der roten Kurve in Abbildung 12 (links), so wird zusätzlich Photolumineszenzsignal von Quantenpunkten gemessen (Einsatz Abb. 12, links). Die Quantenpunkte konnten auch wie im Konzept vorgesehen, elektro-optisch gepumpt werden. Die Lumineszenz der Quantenpunkte bei verschiedenen Strömen durch die LED ist in Abbildung 12 (rechts) gezeigt.

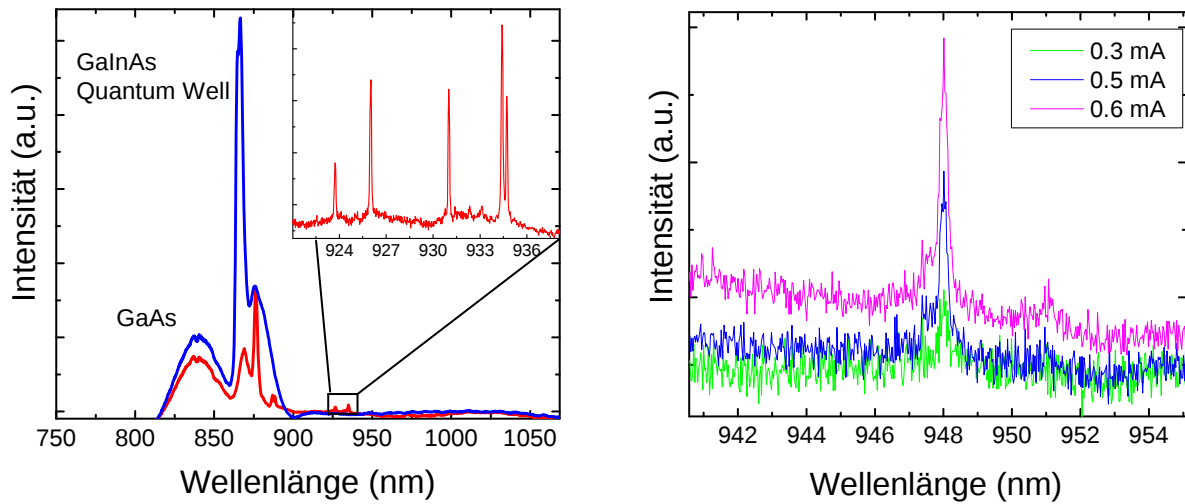


Abb. 15: links: PL-Messungen neben (blau) und auf (rot) der Quantenpunktmesa, rechts: Anregung der Quantenpunkte mittels der monolithisch integrierten LED

Das Konzept sieht weiterhin vor, dass die Emissionswellenlänge der Quantenpunkte mit Anlegen einer Spannung zwischen dem LED-Top-Kontakt und dem Kontakt auf der Quantenpunktmesa abgestimmt werden soll. Eine entsprechende Messung ist in Abbildung 16 gezeigt. Hierbei konnte in Abhängigkeit der Spannung und des damit resultierenden elektrischen Feldes am Ort der Quantenpunkte eine Verschiebung der Emissionswellenlänge der Quantenpunkte um 0,8 nm gemessen werden. Typischerweise haben auch InAs-Quantenpunkte auf GaAs-Substrat aufgrund ihrer Geometrie bereits ein kleines intrinsisches Dipolmoment. Liegt dieses in Feldrichtung schiebt die Emissionswellenlänge zuerst zu kürzeren Wellenlängen.

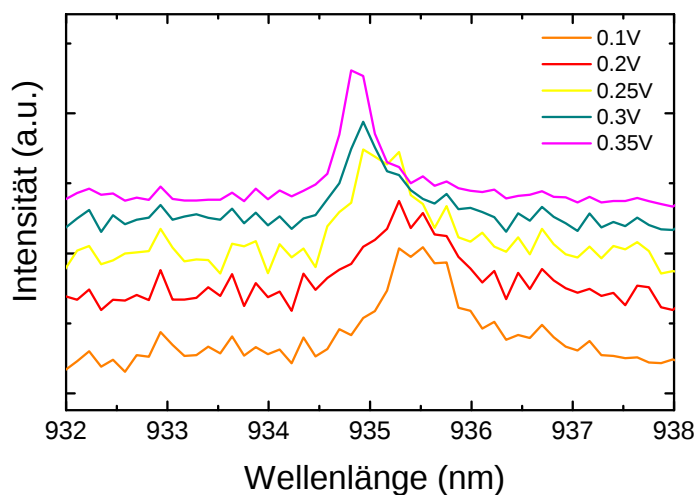
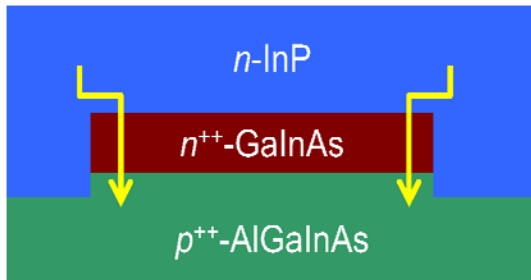


Abb. 16: PL-Messung eines Quantenpunkts bei verschiedenen Spannungen

Insgesamt wurden damit ein Prozess (Epitaxie, Prozessierung) für die Realisierbarkeit des Konzepts auf GaAs entwickelt und die grundlegenden Funktionen des Konzepts demonstriert.

Technologietransfer auf InP-Substrat:

Mit den zu Verfügung stehenden Quantenpunkten und Resonatoren auf InP-Basis wurde dieses Konzept auch auf InP-Basis übertragen. Allerdings stellt die Übertragung dieses Konzeptes auf InP in Bezug auf Epitaxie und Prozesstechnologie eine große Herausforderung dar. So kann z.B. die Stromeinengung auf InP-Basis nicht mit hydrolytischer Oxidation bewerkstelligt werden. Um dennoch eine Einengung des Stromes zu erreichen, wird auf das Konzept des vergrabenen Tunnelkontakts, das von den Vertical-Cavity Surface-Emitting-Laser (VCSEL), die an unserem Lehrstuhl entwickelt wurden, zurückgegriffen.



Der vergrabene Tunnelkontakt ist schematisch in Abbildung 17 gezeigt. Bei einem vergrabenen Tunnelkontakt fließt der Strom in Sperrrichtung über einen $p^{++}n^{++}$ -Übergang, der aufgrund seiner hohen Dotierung nur eine äußerst dünne Barriere hat. Ausserhalb der Tunneldiode sperrt eine $p^{++}n$ -Diode.

Abb. 17: Schema eines vergrabenen Tunnelkontakts

Die Realisierung des Tunnelkontaktes erfordert allerdings eine Strukturierung der

Probe mit anschliessenden Überwachungen für die Kontaktierung der LED und die Abscheidung der Quantenpunkte. Die erste Überwachung der Tunnelkontakte erfolgt mit metallorganischer Gasphasenepitaxie (MOVPE), die zweite Überwachung für die Quantenpunkte mit Molekularstrahlepitaxie (MBE). Diese Technologie mit Mehrfachepitaxie stellt einen erheblichen Mehraufwand im Vergleich zur GaAs-Technologie dar. Die restliche Prozessarbeit für die Mesen, Passivierung und Kontakte ist ähnlich zum Bauteil auf GaAs-Substrat. Abbildung 18 zeigt das Konzept auf InP-Substrat und ist ähnlich zu dem Bauteil auf GaAs. Die LED wird auf n -dotiertem InP-Substrat abgeschieden ($4,5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$), gefolgt von einem AlInAs/GaInAs-Übergitter und einer n -dotierten 500 nm AlInAs-Pufferschicht ($3 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$). Darauf wird die aktive Zone (6 nm AlGaInAs Quantentopf), eingebettet in eine 60 nm Barrierematerial, abgeschieden. Beendet wird die erste Epitaxie mit den dotierten p^{++} -AlGaInAs- ($1,5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$) und n^{++} -GaInAs- ($1,5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$) Schichten.

Nach dieser ersten Epitaxie erfolgt die lithographische Strukturierung und trockenchemische Ätzung. Die erste Überwachung mit n -InP findet in der MOVPE statt. Die obere Mesa wird dann wieder mittels MBE hergestellt, die InAs-Quantenpunkte sind dabei wieder in eine Matrix aus AlInAs und AlGaInAs eingebettet. Zusätzliche Quantenpunkte auf der Oberfläche wurden abgeschieden, um die Morphologie der InAs-Strukturen auf strukturierten Oberflächen zu untersuchen.

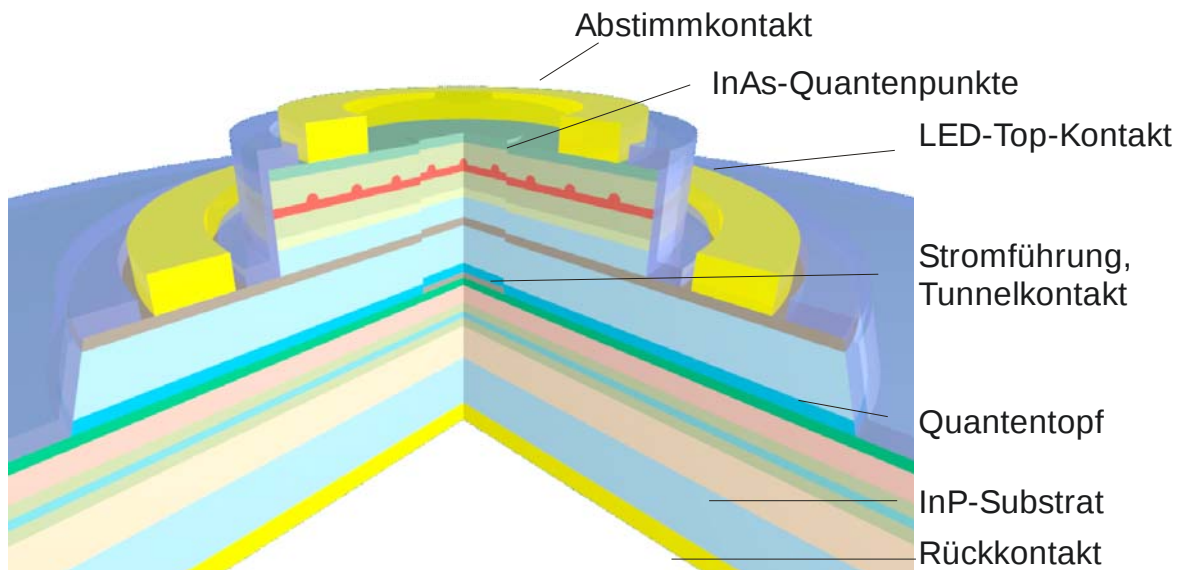


Abb. 18: Bauteil für eine Einzelphotonenquelle basierend auf InP-Substrat

Charakterisierung:

Die auf InP-Substrat hergestellten Bauteile wurden sowohl mittels AFM als auch optisch und elektrisch charakterisiert. Die AFM-Messungen an den Oberflächenquantenpunkten ergaben, dass sich statt der Quantenpunkte in geringer Dichte wie geplant vorwiegend Quantum-Dash-artige Strukturen in hoher Oberflächendichte gebildet haben, wie in Abbildung 19a gezeigt. Ihre Geometrie ist ähnlich der in Abbildung 2 gezeigten Dashes. Dies ist auf die veränderten Ausgangsbedingungen im Gegensatz zur Teststruktur zurückzuführen. Diese Quantenstrukturen wurden auf strukturiertes, dotiertes und mehrfach epitaxiertes Material abgeschieden, welches etwas andere thermische Eigenschaften (bzw. Wärmeabsorption) besitzt. Ein Optimierungsbedarf an dieser Stelle wäre nötig, war aber zeitlich nicht mehr durchführbar. Dennoch konnten prinzipielle elektrische und optische Untersuchungen durchgeführt werden. Sowohl das elektro-optische Pumpen der Nanostrukturen als auch die Manipulation der Emission mittels des QCSE konnten untersucht werden. Die Photolumineszenzmessungen zeigen aufgrund der hohen Quantum-Dash-Dichte keine einzelnen scharfen Emissionslinien, trotzdem sind die gemessenen Spektren auf der Quantenpunktmesa stark ortsabhängig, was zeigt, dass die Emission aus diesen Nanostrukturen kommt. Eine Verschiebung einzelner Linien mittels QCSE mit der angelegten Spannung ist daher auch nicht beobachtbar. Allerdings lässt sich anhand des Abfalls der Intensität des Photolumineszenzsignals erkennen, ob und welches Feld am Ort der InAs-Nanostrukturen vorliegt. Sowohl der Tunnelkontakt (siehe Abbildung 19c) zur Stromeinengung, als auch die elektro-optische Anregung der Nanostrukturen (Abbildung 16b) und ein elektrisches Feld am Ort der Quantenpunkte (Abbildung 19d) mittels QCSE konnte demonstriert werden.

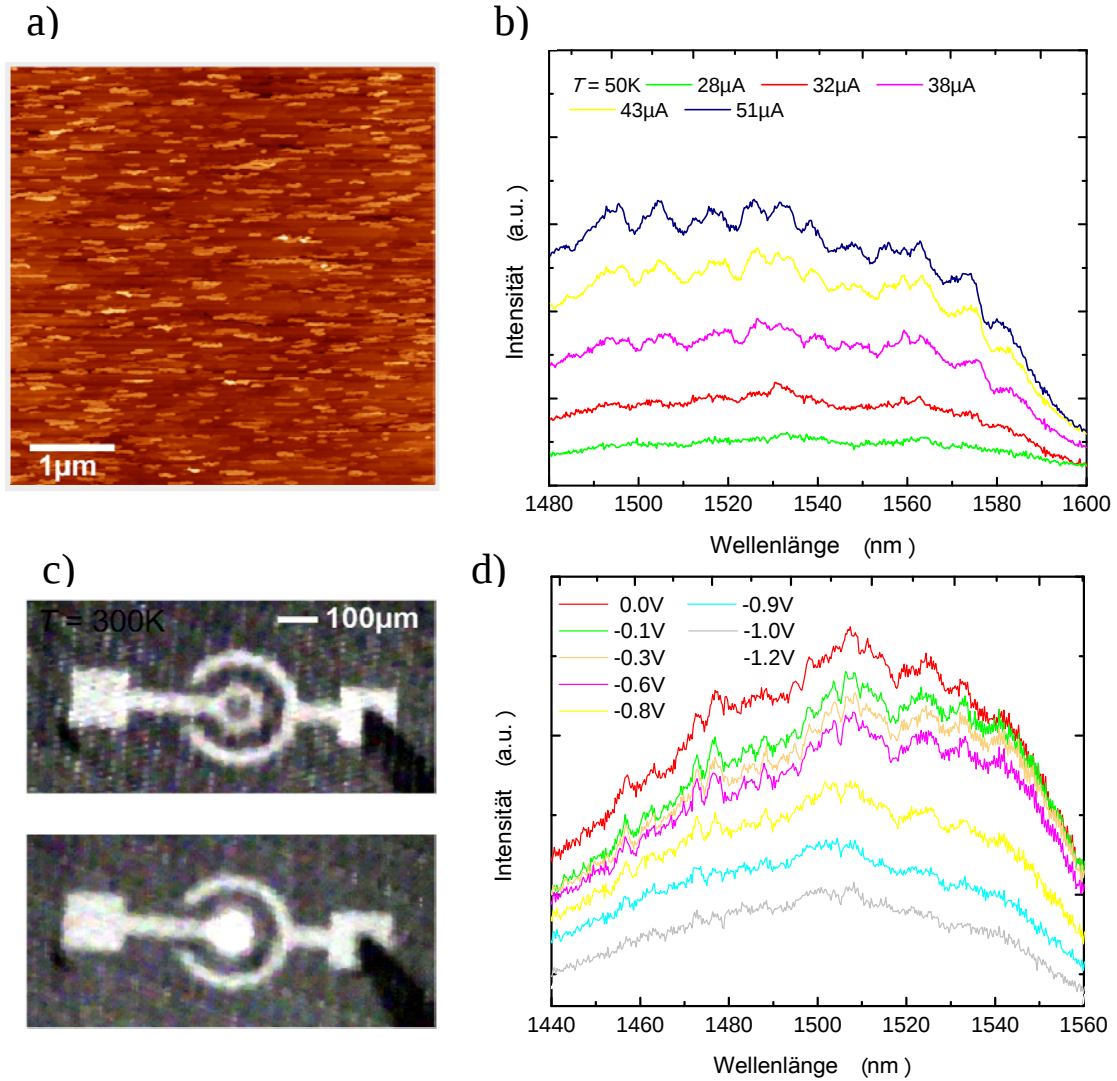


Abb. 19: (a) AFM-Aufnahme der Quantum Dashes auf der Oberfläche, (b) Elektrolumineszenz in Abhängigkeit des LED-Stroms, (c) Mikroskopbild der LED ohne Strom (oben) und mit Strom (unten), (d) Verringerung des Elektrolumineszenzsignals bei Sperrspannung zwischen Abstimmkontakt und LED-TOP-Kontakt.

3. Gegenüberstellung mit den vorgegebenen Zielen:

Meilenstein 1 und 2:

Die Entwicklung eines Herstellungsprozesses für Quantenpunkte in geringer Dichte bei 1,55 μm hat sich als aufwändiger erwiesen als zunächst geplant, da das Parameterfenster äußerst schmal ist. Morphologisch gute Quantenpunkte wurden bereits früher mit Hilfe des GaSb-Sublayers erreicht, doch aufgrund ihrer schwachen optischen Lumineszenz waren sie als Quantenemitter ungeeignet. Die erfolgreiche Herstellung von Quantenpunktproben mit geringer Oberflächendichte und guter optischer Qualität gelang erst im ersten Halbjahr 2008 und damit ein halbes bis ganzes Jahr später als im Antrag geplant.

Meilenstein 3 und 4:

Da 2007 längere und schwerwiegendere Probleme mit den Ätzanlagen und Abscheideanlagen auftraten, konnte die Herstellung von photonischen Kristallen erst mit Verspätung angegangen werden. Dennoch konnte die Herstellung von Mikroresonatoren in der veranschlagten Zeit bewerkstelligt werden.

Meilenstein 5 und 7:

Voraussetzung für die Einzelphotonenzählung und Korrelationsmessungen bei 1,55 μm sind entsprechende Quantenemitter, sprich Quantenpunkte. Daher konnten diese Meilensteine erst 2008 angegangen werden. Lebensdauermessungen und Einzelphotonenzählung waren möglich (**Meilenstein 5**), für Korrelationsmessungen von Quantenpunkten ohne geeignete photonische Umgebung fehlte aufgrund des Betriebsmoduses der InGaAs-SPAD die nötige Zählrate, um in realistischen Zeiträumen solche Messungen durchführen zu können. Da der Messaufbau steht und funktioniert, sollten Korrelationsmessungen an Quantenpunkten in photonischer Umgebung möglich sein.

Meilenstein 6,8 und 9:

Parallel zur Entwicklung der Quantenpunkte wurde auch das Konzept einer elektro-optisch-gepumpten Einzelphotonenquelle entwickelt und auf GaAs umgesetzt und evaluiert. Des Weiteren wurde ein entsprechender Fabrikationsprozess auch auf InP-Substrat entwickelt. Diese Arbeiten gehen über **Meilenstein 9** „Evaluierung eines Konzeptes“ bereits hinaus. Zum Ende des Projektes lagen aufgrund der Verzögerungen bei der Entwicklung der Quantenpunkte und Resonatoren noch keine spannungsgesteuerten Mikroresonatoren mit Quantenpunkten und damit optisch gepumpte Einzelphotonenquellen auf InP-Basis vor. Doch wurden parallel zu den Arbeiten auf InP-Basis grundlegende Untersuchungen in der "Nanostructure Spectroscopy" Gruppe von Jonathan Finley über die Kopplung von Resonatormoden und Quantenpunkten auf GaAs-Basis durchgeführt. Dabei wurden Quantenpunkte mittels Ti:Sap-Lasers gepulst angeregt und mittels eines konfokalen $\mu\text{-PL}$ -Aufbaus (ähnlich dem in Abbildung 6,7 und 8 gezeigten) gemessen. Dabei konnte eine Sammlungseffizienz der Einzelphotonen von über 25 Prozent erreicht werden [10]. (**Meilenstein 6 und 8**). Diese hohe Effizienz konnte aufgrund des Umverteilungseffektes der Photonen aufgrund der photonischen Bandlücke des photonischen Kristalls, also noch ohne Kavitätsmode, erreicht werden.

4 Voraussichtliche Nutzen, weitere Verwertbarkeit

Die Komponenten für eine Einzelphotonenquelle (Emitter, Resonator, Bauteilkonzept) wurden erfolgreich hergestellt und können als Grundlage für weiterführende Arbeiten auf dem Gebiet der Quantenkommunikation verwendet werden.

5 Veröffentlichte Ergebnisse

- “Influence of Indium-free sublayers on the formation of self-assembled quantum dots on InP(001)-Substrates”, DPG Frühjahrstagung, Dresden, Germany (2006)
R. Enzmann, S. Dachs, G. Böhm, R. Meyer, M.-C. Amann
- „Formation of self-assembled quantum dots on AlInAs and GaInAs matrices using a GaSb sublayer”, Applied Physics Letters, 91 (2007) 083111-3
R. Enzmann, S. Dachs, R. Meyer, J. Finley, M.-C. Amann
DOI: 10.1063/1.3116551
- „Growth of low density quantum dots on AlInAs and GaInAs using a thin GaSb sublayer”, LWQD International Workshop on Long Wavelength Quantum Dots: Growth and Applications, Rennes, France (2007)
R. Enzmann, S. Dachs, R. Meyer, J. J. Finley, M.-C. Amann
- „Towards an electrically driven single photon source”, DPG Frühjahrstagung, Berlin, Germany (2008)
C. Jendrysik, R. Enzmann, D. Baierl, C. Seidel, A. Heindl, S. Türkcan, G. Boehm, R. Meyer, J. J. Finley, M.-C. Amann
- “Towards an Electro-Optically Driven Single Photon emitting Device”, The 8th International Conference on Nanotechnology (IEEE-nano2008), Arlington Texas, USA (2008)
R. Enzmann, C. Jendrysik, C. Seidel, A. Heindl, D. Baierl, G. Boehm, R. Meyer, J. J. Finley, M.-C. Amann
DOI: 10.1109/NANO.2008.27
Best Paper Award
- „Growth of low density quantum dots on AlGaInAs by MBE using ultra low growth rates”, Semiconductor Quantum Dot Devices and Applications, Rennes, France (2008)
R. Enzmann, C. Seidel, C. Jendrysik, D. Baierl, M. Kraus, G. Boehm, R. Meyer, J. J. Finley, M.-C. Amann
- “Formation of self-assembled quantum dots using ultra low growth rate for applications in the telecommunication regime at 1.3 and 1.5 μm ”, The 22nd General Conference of the Condensed Matter Division of the European Physical Society (EPS-CMD 22), Rom, Italy (2008)
C. Seidel, R. Enzmann, D. Baierl, C. Jendrysik, R. Meyer, J. J. Finley, M.-C. Amann

- „InAs Quantum Dots on AlGaInAs emitting in the optical C-Band at 1.55 μm “, 21th International Conference on Indium Phosphide and Related Materials, Newport Beach, CA, USA (2009)
R. Enzmann, M. Kraus, M. Bareiss, C. Seidl, D. Baierl, G. Boehm, R. Meyer, J. Finley, M.-C. Amann
ISBN: 978-1-4244-3433-6
- „InAs Quantum Dots emitting at 1.55 μm grown on InP-Substrate using MBE“, DPG Frühjahrstagung, Dresden, Germany (2009)
M. Bareiss, R. Enzmann, M. Kraus, R. Meyer, G. Boehm, J. Finley, M. C. Amann
- „Growth of low-density quantum dots emitting at telecommunication wavelengths“, Semiconductor Integrated Optoelectronics Conference (SIOE), Cardiff, UK (2009)
R. Enzmann, M. Bareiss, M. Kraus, G. Boehm, J. Finley, R. Meyer, M.-C. Amann
- “Concept of a Single Photon Source based on InP for Emission at 1.55 μm “, International Conference on Nanomaterials and Nanosystems” (NanoMats2009), Istanbul, Turkey (2009) (submitted). Enzmann, C. Jendrysik, M. Bareiß, C. Grasse, G. Böhm, R. Meyer, J.J. Finley, and M.-C. Amann

6 Referenzen

- [1] Arzberger, M. "Wachstum, Eigenschaften und Anwendungen selbstorganisierter InAs-Quantenpunkte" *Dissertation* (2001)
- [2] Finley, J. "Charged and neutral exciton complexes in individual self-assembled In(Ga)As quantum dots" *Phys. Rev.* , B63, 073307. (2001)
- [3] Kudo M. "InAsSb Quantum Dots Grown on GaAs Substrates by Molecular Beam Epitaxy" *Jap. Jour. of Appl. Phys.* , 45-47. (2005)
- [4] Guimard D. "High density InAs/GaAs quantum dots with enhanced photoluminescence intensity using antimony surfactant-mediated metal organic chemical vapor deposition" *Appl. Phys. Lett.* , 89,183124. (2006)
- [5] Garcia J.M. "InAs/InP(001) quantum wire formation due to anisotropic stress relaxation: in situ stress measurements" *J. Cryst. Growth* , S. 227-228.(2001)
- [6] Balakrishnan G. "Analysis of atomic structure in InAs quantum dashes grown on AlGaAsSb metamorphic buffers." *J. Vac. Sci. Technol.* (2004)
- [7] Wild B. "Temperature tuning of the optical properties of planar photonic crystal microcavities." *Appl. Phys. Lett.* , 84,846. (2004)
- [8] Mosor S. "Scanning a photonic crystal slab nanocavity by condensation of xenon" *Appl. Phys. Lett.* , 87,141105. (2005)
- [9] Fry P. "Photocurrent spectroscopy of InAs/GaAs self-assembled quantum dots." *Phys. Rev. B* , 62, 16784 (2000)
- [10] Kaniber M. "Highly efficient single-photon emission from single quantum dots within a two-dimensional photonic band-gap" *Physical Review B* , 77, 073312. (2008)