GEFÖRDERT VOM



Abschlussbericht QK_QuaHL-Rep

Zuwendungsempfänger:	Förderkennzeichen:			
Universität Kassel, Prof. Dr. Johann Peter Reithmaier	16BQ1038			
Vorhabensbezeichnung: "Quanten-Repeater Plattformen auf der Basis von Halbleitern" Teilprojekt: (a) "1,55 µm Quantenpunkten im InP-Materialsystem" Teilprojekt: (b) "NV-Zentren in nanokristallinen Diamantstrukturen"				
Laufzeit des Vorhabens:				
01.11.2010 - 31.10.2013				
Berichtszeitraum:				
01.11.2010 - 31.10.2013				

Kurze Darstellung zu:

1. Aufgabenstellung des Teilprojektes zum Verbundprojekt (*z.B.* welche Aufgaben hatte Ihr Teilprojekt in Verbindung mit dem gesamten Verbundprojekt, wo lagen die Schwerpunkte zur gemeinsamen Erfolgsschreibung, etc.)

Das Ziel des Projekts war geeignete elektronische Quantensysteme in Festkörpern (wie z.B. Quantenpunkte in Halbleiter, bzw. NV-Zentren in Diamant) darzustellen und strukturell so zu isolieren bzw. abzustimmen, damit für Quantenrepeaterfunktionen anwendbare Eigenschaften generiert werden können. Beispiele dazu sind lange Kohärenzzeiten, die notwendig sind für die Darstellung von QuBits, bzw. die Abstimmung von Energiezuständen für die Verschränkung von Quantenzuständen. Wichtige Voraussetzung dazu sind Strukturen mit kleiner, bzw. für die Anwendung angepasste homogene Linienbreiten und die Möglichkeit einzelne Quantenzustände gezielt zu adressieren, entweder optisch oder elektronisch. Beide Aspekte werden hier berücksichtigt. Die Arbeiten werden im Rahmen von zwei separaten Teilvorhaben durchgeführt:

[a] 1,55 µm Quantenpunkten im InP-Materialsystem (UKAS-QP) und

[b] NV-Zentren in nanokristallinen Diamantstrukturen (UKAS-NCD)

2. Voraussetzungen, unter denen das Vorhaben während der gesamten Förderperiode durchgeführt wurde (z. B. welche Voraussetzungen wurden benötigt und umgesetzt um Ihr Projekt durchzuführen etc.)

Fur die Durchführung des Teilprojekts UKAS-QP wurde eine Molekularstrahlepitaxieanlage (MBE) eingesetzt. Das Wachstum selbstorganisierter InAs-Quantenpunkte erfolgte auf InP-Substraten mittels MBE. Die benutzte Anlage verfügt über zwei Feststoff-Ventil-Crackerzellen, die die Gruppe V-Materialien Arsen und Phosphor zur Verfügung stellen. Dies ermöglicht eine genaue Kontrolle, aber auch einen raschen Wechsel der Flüsse. Für die Abscheidung nanokristalliner Diamantschichten im Teilprojekt UKAS-NCD steht eine Hot-Filament CVD-Anlage zur Verfügung, die die Verwendung einer Reihe von Prozessgasen und deren Mischungen erlaubt (CH₄, H₂, N₂, Ar). Die Strukturierung von NCD-Schichten und III-V-Halbleitern für beiden Teilprojekte wurde mit Hilfe einer hochauflösenden Elektronenstrahl-Lithographie (Raith eLine) und zwei RIE-Anlagen (Oxford Plasmalab 80) im Reinraum der Arbeitsgruppe im Institut für Nanostrkturtechnologie und Analytik an der Universität Kassel durchgeführt. Zur Erzeugung lokaler NV-Zentren in NCD wurde ein FIB-System (Focused Ion Beam, Zeiss NVision 40) sowie eine RTA-Anlage (Rapid Thermal Annealing) eingesetzt. Die Charakterisierung der Morphologie und Topography von NCD- oder QP-Schichten und -strukturen erfolgte mittels Rasterelektronenmikroskopie (SEM, Hitachi S-4000) sowie Raster-Kraftmikroskopie (AFM, Nanoscope Dimension 3100). Die Untersuchung grundlegender spektraler Eigenschaften von InAs-QPkte und Farbzentren wurden mit Hilfe von Tieftemperatur -Mikro-Photolumineszenz bei ca. 4 K durchgeführt.

3. Planung und Ablauf des Vorhabens (*z*.*B.* wich der Ablauf gravierend von der ursprünglichen Planung bei Projektantrag ab und wenn ja warum, wie ist der Ablauf der ursprünglichen Planung voran geschritten etc.)

Zu Teilprojekt (a), UKAS-QP:

Zu QP_AP1: Wachstum und Optimierung von 1,55 µm QP mittlerer bis niedriger Dichten

InP-basierende QPkte mit Dichten von < 10⁹ cm⁻² wurden realisiert und an die AG Michler (Uni Stuttgart) übergeben. Dies erfüllt den Übergabepunkt UKAS-QP_ÜP2 dieses Arbeitspunktes und zum wesentlichen Teil auch Meilenstein UKAS-QP_M2. Die Arbeiten lagen innerhalb des Zeitplans. Es wurden aber auch nach erreichen des Meilensteins zusätzliche Wachstumsoptimierungen durchgeführt, um die QP-Strukturen besser zu kontrollieren und um auszuloten welche minimale Linienbreite mit dieser Wachstumstechnologie erzielbar ist.

Zu QP_AP2: Untersuchung der optischen Eigenschaften von 1,55 µm InAs/InP Qpkten

Die QP-Strukturen, die in QP_AP1 entwickelt wurden, wurden mit dem im Hause verfügbaren Einzelpunktspektralmessplatz charakterisiert. Begrenzt durch die Auflösungsgrenze des verwendeten Mikro-PL-Spektroskopiemessplatzes wurden 39 µeV ermittelt. Mit diesen Werten wurde der Meilenstein UKAS_QP_M1 erreicht (< 50 µeV). Wie nahe dieses Ergebnis dem Meilenstein UKAS_QP_M2 kommt, kann wegen der Auflösungbegrenzung der vorhandenen Messeinrichtungen nicht abschließend geklärt werden. Mit diesen Strukturen war aber erstmals möglich in Zusammenarbeit mit der AG Michler (Universität Stuttgart) auf InP-basierten einzelnen Quantenpunkten durch Autokorrelationsmessungen Einzelphotonenemission nachzuweisen.

Zu QP_AP3: Einbindung von QPkten in pin-Diodenstrukturen.

Mit der Realisierung von InAs QP pin-Diodenstrukturen wurde im vorgegebenen Zeitplan Proben angefertigt und an die AG Zrenner weitergegeben für Photostrom-Messungen. Der Übergapepunkt UKAS-QP_ÜP3 konnte damit Anfang des Jahres innerhalb des Zeitplans erfüllt werden. Damit wurde gleichzeitig auch der Meilenstein UKAS-QP_M3 erfüllt. Solche InAs Quantenpunkte wurden durch hochauflösende Niedertemperatur-Photospektroskopie in der AG Zrenner untersucht. Dabei konnte eine eindeutige Absorptionslinie des Grundzustandsübergangs von einzelnen Quantenpunkten nachgewiesen werden. Aufgrund von Verzögerungen bei der Charakterisierung wurde in Absprache mit dem Kooperationspartner eine QP-Diodenstruktur zweiter Generation mit reduzierter QP-Dichte nicht mehr innerhalb der Projektlaufzeit weitergeleitet (UKAS-QP_Ü4). Dies erfolgte aber mittlerweile Anfang des Jahres.

Zu QP_AP4: Herstellung von QP-Membranstrukturen für Bragg-Resonatoren

Wir starteten die Arbeit an InAs QP-Membranen zur Integration in dielektrische Kavitäten. Diese Proben wurden zum IFW Dresden geschickt, um weitere Charakterisierungen durchzuführen (UKAS-QD_ÜP5). Um Unterschied zum bisher verwendeten GaAs-basierten Materialsystem ergaben sich allerdings erhebliche Schwierigkeiten in der Prozessierung aufgrund von Ätz- und Haftproblemen. Da die Arbeiten sich, wie geplant, auf das dritte Projektjahr fokussierten, wurde in Absprache mit IFW Dresden eine zweiter Prozessdurchlauf mit optimierten Schichtaufbau und niedrigeren QP-Dichten auf das Folgeprojekt verschoben. Obwohl bereits erfolgreich QP-Schichten hoher Qualität auf Bragg-Spiegel aufgewachsen werden konnten, die im Arbeitspunkt QP_AP2 eingesetzt wurden, konnte der Meilenstein UKAS-QD_M4 bisher nur bedingt erfüllt werden, da noch Strukturierungs-und Charakterisierungsarbeiten am IFW Dresden durchgeführt werden müssen.





Teilaufgabenbezeichnung	1. J	ahr		2.Ja	ahr		3.Ja	ahr	
AP1: Wachstum von QP mit									
Feststoffquellen-MBE									
AP2: Optische Charakterisierung									
AP3: Einbindung von QPkten in pin-									
Diodenstrukturen									
AP4: Integration von InAs/InP									
QP-Membranstrukturen in									
Resonatoren mit dielektrischen									
Spiegeln									

Zu Teilprojekt (b), UKAS-NCD:

Zu NCD_AP1: Herstellung und Untersuchung von NV-Zentren in NCD-Schichten und Nanostrukturen

Wie geplant wurden NV-Zentren zuerst unstrukturierten nanokristallinen Diamantschichten (NCD) hergestellt, wobei es insbesondere mit einer geeigneten Oberflächenpassivierung gelang auch den richtigen Ladungszustand (NV⁻ Zentrum) zu erreichen. Durch die Herstellung von Nanosäulen konnte die Lichtausbeute erheblich gesteigert werden. Proben von beiden Technologiegenerationen wurden im Rahmen der Übergabepunkten NCD_ÜP1 und NCD_ÜP2 an die AG Wrachtrup (Universität Stuttgart, Verbund QuO-Rep) weitergegeben bzw. mit deren Hilfe optisch charakterisiert. Der Meilenstein NCD_M1 konnte mit dem Nachweis von NV⁻Zentren bei beiden Technologiegenerationen erzielt werden.

Zu NCD_AP2: Entwicklung von PC-Resonatoren mit NCD Membranstrukturen

Im Rahmen des Projektes konnten mit Elektronenstrahllithographie und Trockenätzverfahren erste photonische Kristallmembranstrukturen erfolgreich aus NCD-Material hergestellt werden. Die Arbeiten zur weiteren Optimierung der Strukturen für den Einsatz in Quanteninformationssystemen gestaltete sich aber schwieriger als ursprünglich geplant, so dass die Arbeiten noch nicht abgeschlossen werden konnten. Der Übergabepunkt UKAS-NCD_ÜP3 an die AG Wrachtrup konnte eingehalten werden, aber die Charakterisierung beschränkte sich auf Fluoreszenzmessungen. Neben den PC-Resonatorstrukturen sind jedoch die bisher erzielten Ergebnisse mit Nanosäulen aber bereits sehr vielversprechend in Hinblick auf die Lichtausbeute. Die Anzahl der NV-Zentren konnte aber noch nicht auf 1 reduziert werden, wie es für den Einsatz als Quantenspeicher idealerweise benötigt werden würde. Meilenstein NCD_M2 konnte damit nur bedingt erfüllt werden. Die Arbeiten werden aber in dem Folgeprojekt weitergeführt.

Zu NCD_AP3: Integration von NCD-Schichten in Halbleiterheterostrukturen

Das Wachstum von geschlossenen NCD-Schichten auf GaAs-Wafern und QP-Heterostrukturen konnten erfolgreich durchgeführt werden. Sowohl der Übergabepunkt NCD_ÜP3 als auch der Meilenstein NCD_M3 konnten damit wie geplant erreicht werden.

Zu NCD_AP4: Positionskontrollierte Abscheidung von Diamant-Nanokristallen auf Halbleiter-Nanoresonatoren

Ein positionskontrolliertes Wachstum von Diamant-Nanokristalliten konnte erfolgreich aufvorstrukturierten GaAs-Substraten realisiert werden. Die Herstellung von III-V PC-Strukturen und die Optimierung der Abscheidung von NCD-Kristalliten für die Integration in Mikrokavitäten konnte noch nicht abgeschlossen werden, da insbesondere die Kombination von Hochtemperaturabscheidung von NCD-Material, wie sie für die Erzeugung von NV-Zentren benötigt wird, nur bedingt kompatibel ist mit der Temperaturstabilität von III-V-Verbindungshalbleiter. Der Übergabepunkt NCD_ÜP5 und der Meilenstein NCD_M4 konnten bisher noch nicht erreicht werden. Dafür sind weitere Verbesserungen der Strukturierungstechnologie notwendig, die im Rahmen des Projektes nicht mehr durchgeführt werden konnten. Diese Arbeit werden deshalb im Schwerpunkt eines Nachfolgeprojektes liegen.

Zu NCD AP5: Optische Charakterisierung von NCD-Strukturen

Die NCD-Strukturen wurden im Wesentlichen in Kooperation mit der AG Wrachtrup in Stuttgart durchgeführt, da deren Charakterisierungseinrichtungen optimiert sind für den relevanten Spektralbereich. Die optischen Charakterisierungseinrichtungen in Kassel sind nur bedingt für die kurzwellige Spektroskopie ausgelegt und hätte erhebliche zusätzliche Investitionen benötigt, die so nicht im Projekt vorgesehen waren.

Teilaufgabenbezeichnung	1. J	lahr		2.J	ahr		3.Ja	ahr	
AP1: Herstellung und Untersuchung									
von NV-Zentren in NCD-									
Schichten und Nanostrukturen									
AP2: Entwicklung von PC-									
Resonatoren mit NCD-									
Membranstrukturen									
AP3: Integration von NCD-Schichten									
in Halbleiter-Heterostrukturen									
AP4: Positionskontrollierte									
Abscheidung von Diamant-									
Nanokristallen auf Halbleiter-									
Nanoresonatoren									
AP5: Optische Charakterisierung von									
NCD-Strukturen									

4. Wissenschaftlicher und technischer Stand, an den angeknüpft wurde, insbesondere.... (z.B. wie ist der heutige Projektstand nach Abschluss der 3 Jahre, auf welchen technischen Stand kann Ihr Teilprojekt nach 3 Jahren blicken etc.)

Zu Teilprojekt (a), UKAS-QP

Viele Anwendungen der Quanteninformationstechnologie beruhen auf der Übertragung von Informationen mittels einzelner Photonen. Der Transport dieser Photonen über weite Entfernungen in Glasfasernetzwerken erfordert Einzelphotonenquellen sowie verschränkte Photonenpaare mit Wellenlängen, die mit der Glasfaserkabelübertragung kompatibel sind, insbesondere mit dem Telecom C-Band bei 1,55 µm, bei dem die Dämpfung von Glasfasern minimal ist.

Ein Großteil der Forschung im Bereich von Quantenpunkten hat sich auf GaAs-basierende QPkte konzentriert, die bei Wellenlängen unterhalb von 1,3 µm emittieren, wobei die besten Ergebnisse bei etwa 920 nm erzielt wurden. Quantenpunkte auf der Basis von InP sind ein möglicher Kandidat, das angestrebte Telecom-Fenster bei 1,55 µm zu erreichen. Allerdings weisen aufgrund der Gitterfehlanpassung (3.2 %) zwischen InAs und InP selbstorganisierte InAs-Nanostrukturen je nach Wachstumstechnik und -parametern verschiedene Formen auf. Daher ist eine sorgfältige Kontrolle der Wachstumsparameter erforderlich¹. In den vergangenen Jahren gab es nur einige wenige Untersuchungen zu einzelnen Quantenpunkten, die im Bereich des C-Bands emittieren. Dazu wurden zumeist Verfahren wie die flächenkontrollierte Chemical Beam Epitaxy² and die metallorganische Gasphasenepitaxie³ eingesetzt. Mittels Mikro-Photolumineszenz (μ -PL) wurde die Emission von einzelnen InP/InGaAsP/InP-Punkten im Bereich von 1,55 μ m beobachtet⁴, ebenso wie die Emission von Einzelphotonen durch optische Anregung⁵ und die Injektion elektrischer Pulse⁶ bei Quantenpunkten in Mesastrukturen.

Unsere Arbeitsgruppe stellte kürzlich InAs/AlGaInAs/InP-Quantenpunkte mit geringer Dichte (~ 5x10⁸ cm⁻²) und einer exzitonischen Linienbreite einzelner Punkte unterhalb von 50 µeV vor (im

¹ C. Paranthoen et al., Appl. Phys. Lett. 78, 1751 (2001).

² D. Chithrani et al., Appl. Phys. Lett. 84, 978 (2004).

³ K. Takemoto *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys., Part 2 43, L349 (2004). ⁴ P. J. van Veldhoven *et al.*, Appl. Phys. Lett. **95**, 113110 (2009).

⁵ K. Takemoto *et al.*, Appl. Phys. Express **3**, 092802 (2010).





Wesentlichen begrenzt durch die Auflösung der verwendeten Messeinrichtung), wobei eine spezielle Verkapselungstechnik nach der Formung der Punkte verwendet wurde⁷. Nach unserem Kenntnisstand wurde damit ein neuer Stand der Technik erreicht. Durch die Integration von Bragg-Reflektoren konnte zusätzlich die Photolumineszenzausbeute um mehr als eine Größenordnung erhöht werden. Damit war es erstmals möglich in Zusammenarbeit mit der AG Michler (Universität Stuttgart) eine ausgeprägte Einzelphotonenemission von einzelnen InAs-Quantenpunkten bei Wellenlängen oberhalb von 1.5 μ m zu demonstrieren,⁸ die mit der Übertragung über weite Entfernungen mittles Standardfasern kompatibel sind. Derartig geringe QP-Dichten besitzen den Vorteil, dass man einzelne Punkte ohne weitere Prozessschritte, die zu Oberflächeneffekten in der Nähe der Emitter führen können, untersuchen kann.

Zu Teilprojekt (b), UKAS-NCD

Stickstoff-Fehlstellen-Komplexe (Nitrogen-Vacancy (NV) Centers) haben sich in der letzten Zeit als vielversprechende Kandidaten für Anwendungen in der Quanteninformationswissenschaft und technologie (QIST) erwiesen, da sie atomartige Eigenschaften besitzen, unter anderem langlebige Quanten-Spinzustände sowie genau definierte optische Übergänge in einem Festkörperbauelement. NV-Zentren sind Defektkomplexe, die aus einem substitutionellen Stickstoffatom und einer benachbarten Fehlstelle im Diamantgitter bestehen. Dieses atomare System weist alle Elemente auf, die für die QIST erforderlich sind, d.h. Speicherung, logische Operationen sowie Austausch von Quanteninformationen. Die Quanteninformation kann im Elektronenspin des NV-Zentrums oder im Kernspin benachbarten Atome erfolgen, wobei selbst bei Raumtemperatur große Lebensdauern beobachtet werden⁹. So wurde beispielsweise beobachtet, dass die Kohärenzzeit des Elektronenspins T₂ im Millisekundenbereich liegen kann. Dies kann erreicht werden, indem man alle Kern- und Elektronenspins vermeidet, die zu einer Dekohärenz führen; dazu ist defektarmer, isotopisch angereicherter ¹²C Diamant erforderlich. Große Werte für T₂, die für Kernspins leicht erreicht werden können, wurden bislang für Elektronenspin-Systeme nicht erzielt, da Elektronenspins etwa 1000fach sensitiver gegenüber magnetischen Störungen sind als Kernspins. Eine Quantenlogik lässt sich durch das Anlegen von Mikrowellen und RF-Feldern erzielen, die Übergänge zwischen den Elektronen und den Unterniveaus des Kernspins^{10,11,12}. Wenn man die Köharenz-Lebensdauer im Millisekundenbereich mit den mit Mikrowellensystemen erreichten Spinanregungsraten (etwa 1 GHz) kombiniert, sind bis zu einer Millionen Qubit-Operationen pro Kohärenzzeit erreichbar¹³. Dies übertrifft andere Quantencomputer-Systeme wie etwa Ionenfallen, insbesondere wenn man die sehr viel größeren Lebensdauern von NV Elektronenspins bei geringen Temperaturen berücksichtigt¹⁴. Aber selbst bei Raumtemperatur kann man außerordentlich große Spin-Kohärenzzeiten (> 1 s) erreichen, indem man die NV-Informationen in benachbarten Kernspins speichert, wie kürzlich gezeigt wurde¹⁴. Zudem kann die Spin-Quanteninformation mittels der spinabhängigen Fluoreszenzintensität transportieren und so verschränkte Spin-Photonen-Paare erzeugen^{1t}

Obwohl mittlerweile große Fortschritte in der Untersuchung von NV-Zentren für Anwendungen in der QIST erzielt wurden, verbleibt noch eine Reihe von Aufgaben zu lösen. Dazu gehört die Entwicklungen von Verfahren, die es erlauben, einzelne NV-Zentren oder Paare von NV-Zentren mit Nanometergenauigkeit innerhalb des Diamants zu erzeugen. Darüber hinaus muss eine Degradation der optischen Eigenschaften der Farbzentren vermieden werden, wenn sie in nanophotonische Diamantbauelemente eingebettet werden; zudem werden eine Plattform für integrierte photonische Bauelemente zur optimalen Kopplung der emittierten Photonen sowie Techniken für eine kontrollierte Verschränkung individueller Spins der NV-Zentren benötigt.

⁷ M. Yacob, J. P. Reithmaier, and M. Benyoucef, under review.

⁸ M. Benyoucef, M. Yacob, J.P. Reithmaier, J. Kettler, P. Michler, Appl. Phys. Lett. 103, 162101 (2013).

⁹ P.C. Maurer, G. Kucsko, C. Latta, L. Jiang, N.Y. Yao, S.D. Bennett, F. Pastawski, D. Hunger, N. Chisholm, M. Markham, D.J. Twitchen, J.I. Cirac, M.D. Lukin, Science 336, 1283 (2012).

¹⁰ M.V.G. Dutt, L. Childress, L. Jiang, E. Togan, J. Maze, F. Jelezko, A.S. Zibrov, P.R. Hemmer, M.D. Lukin, Science **316**, 1312 (2007). ¹¹ L. Jiang, J.S. Hodges, J.R. Maze, P. Maurer, J.M. Taylor, D.G. Cory, P.R. Hemmer, R.L. Walsworth, A. Yacoby, A.S. Zibrov,

M.D. Lukin, *Science* **326**, 267 (2009). ¹² T. van der Sar, Z.H. Wang, M.S. Blok, H. Bernien, T.H. Taminiau, D.M. Toyli, D.A. Lidar, D. Awschalom, R. Hanson, V.V.

Dobrovitski, Nature 484, 82 (2012).

G.D. Fuchs, V.V. Dobrovitski, D.M. Toyli, F.J. Heremans, D.D. Awschalom, Science 326, 1520 (2009).

¹⁴ A. Jarmola, V.M. Acosta, K. Jensen, S. Chemerisov, D. Budker, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 197601 (2012).

¹⁵ E. Togan , Y. Chu, A.S. Trifonov, L. Jiang, J. Maze, L. Childress, M.V.G. Dutt, A.S. Sørensen, P.R. Hemmer, A.S. Zibrov, M.D. Lukin, Nature 466, 730 (2010).

5. Angabe bekannter Konstruktionen, Verfahren und Schutzrechte, die für die Durchführung des Vorhabens benutzt wurde (wurden Schutzrechte angemeldet, sind andere bzw. ähnliche Verfahren bekannt die bei der Durchführung des Projektes hilfreich oder sogar Grundlage bildeten und nichts mit dem eigenen Vorhaben zu tun haben etc.)

Keine

6. Angabe der verwendeten Fachliteratur sowie der benutzten Informations- und Dokumentationsdienste (z.B. Bücher, Internetinformationen etc.)

Für beide Teilprojekte, die Hauptquelle der wissenschaftlichen und technischen Informationen wurden aus aufstrebenden internationalen Fachzeitschriften erhalten wie z.B. Nature, Nature Nanotechnology, Nature Materials, Nature Photonics, Science, Phyics Review Letters, Applied Physics Letters, Physica Status Solidi, usw.

7. Zusammenarbeit mit anderen Stellen (*z.B.* Teilprojekte aus dem Verbund, andere Universitäten, Institutionen, Firmen etc.)

Im Rahmen des Projekts gab es intensive Zusammenarbeit mit Partners aus QuaHL-Rep und QuORep Verbunden:

Teilprojekt UKAS-QP: (i) Messungen der Photonenstatistik und zeitaufgelöste PL-Messungen mit der AG Michler an der Universität Stuttgart. (ii) InP-Membranstruktur mit eingebetteten 1,55 µm QPkten auf ein Piezo-aktives Schichtsystem in Kooperation AG Schmidt am IFW Dresden. Photostrom messungen Zusammenarbeit mit der AG Zrenner an der Universität Paderborn.

Teilprojekt UKAS-NCD: Mit der Gruppe von Prof. J. Wrachtrup (Universität Stuttgart, QuORep) im Bereich der optischen Charakterizierung der NV-Zentren (Photolumineszenz- und Fluoreszenz-Messungen)

- 8. Gesamtliste der Veröffentlichungen (z.B. zur Vereinfachung eine gesamtheitliche Auflistung, detailliertere Informtaionen entnehmen Sie bitte den beigefügten aussagekräftigen Berichtsblättern)
- M. Yacob, J. P Reithmaier and M. Benyoucef, Low-density InP-based quantum dots emitting around the 1.5µm telecom wavelength range, *Appl. Phys. Lett.*104, 022113 (2014).
- M. Benyoucef, M. Yacob, J.P. Reithmaier, J. Kettler and P. Michler, Telecom-wavelength (1.5 μm) single-photon emission from InP-based quantum dots, *Appl. Phys. Lett.*103, 162101 (2013).
- M. Benyoucef, V. Zürbig, J. P Reithmaier, T. Kroh, A. W. Schell, T. Aichele and O. Benson, Single-photon emission from single InGaAs/GaAs quantum dots grown by droplet epitaxy at high substrate temperature, *Nanoscale Research Letters* 7, 493 (2012).
- J. Evtimova, W. Kulisch, C. Petkov, E. Petkov, F. Schnabel, J.P. Reithmaier, C. Popov, *Diamond Relat. Mater.* 36, **58** (2013).
- E. Petkov, C. Popov, T. Rendler, C. Petkov, F. Schnabel, H. Fedder, S.-Y. Lee, W. Kulisch, J.P. Reithmaier, J. Wrachtrup, *Phys. Stat. Sol. (B)* **250**, 48 (2013).
- E.Petkov, T. Rendler, C. Petkov, F. Schnabel, J.P. Reithmaier, J. Wrachtrup, C. Popov, W. Kulisch, *Phys. Stat. Sol. (A)* **210**, 2066 (2013).
- W. Kulisch, C. Petkov, E. Petkov, C. Popov, P. N. Gibson, M. Veres, R. Merz, B. Merz, J. P. Reithmaier, *Phys. Stat. Sol. (A)* **209**, 1664 (2012).

Datum: 08.04.2014

TP-Leiter: Prof. J. P. Reithmaier





Ausführliche Erläuterungen zum Abschlussbericht QK_QuaHL-Rep

Zuwendungsempfänger:	Förderkennzeichen:			
Universität Kassel, Prof. Dr. Johann Peter Reithmaier	16BQ1038			
Vorhabensbezeichnung: "Quanten-Repeater Plattformen auf der Basis von Halbleitern" Teilprojekt: (1) "1,55 µm Quantenpunkten im InP-Materialsystem" Teilprojekt: (2) "NV-Zentren in nanokristallinen Diamantstrukturen"				
Laufzeit des Vorhabens:				
01.11.2010 - 31.10.2013				
Berichtszeitraum:				
01.11.2010 - 31.10.2013				

Eingehende Darstellung

1. des erzielten Ergebnisses

Auf die Ergebnisse der beiden Teilprojekte 1 und 2 wird im folgendem separat eingegangen.

Teilprojekt 1 (QP): 1,55 µm Quantenpunkte im InP-Materialsystem

Unsere Arbeiten konzentrierten sich auf das Wachstum sowie die strukturelle und optische Charakterisierung von InAs-QPkten in einer AlGalnAs-Matrix mit niedrigen Dichten unterhalb von 10⁹ cm⁻². Die dabei erzielten Ergebnisse können vier Bereichen zugeordnet werden:

- (1) QP_AP1: Herstellung von Proben und deren strukturelle Charakterisierung;
- (2) QP_AP2: Optische Charakterisierung und Photonenstatistik (in Zusammenarbeit mit der AG Michler an der Universität Stuttgart);
- (3) QP_AP3: Integration von InAs QPkten in elektrisch betreibbare pin-Diodenstrukturen. Die Probe wird in der AG Zrenner (Universität Paderborn) eingesetzt zu Experimenten zur Spinkontrolle in selektiv geladenen Einzelquantenpunkten.

QP_AP1: Wachstum und strukturelle Charakterisierung: Selbstorganisierte, auf InPbasierte QPkte

Das Wachstum selbstorganisierter InAs-Quantenpunkte erfolgte auf (100) InP-Substraten mittels Feststoffquellen-Molekularstrahl-Epitaxie (MBE). Die benutzte Anlage verfügt über zwei Feststoff-Crackerzellen, die die Gruppe V-Materialien Arsen und Phosphor zur Verfügung stellen. Dies ermöglicht eine genaue Kontrolle, aber auch einen raschen Wechsel der Flüsse.

InAs-QPkte mit hohen bzw. mittleren Dichten

Zunächst wurde der Einfluss der Wachstumsparameter aud die Dichte und die Form von InAs-QPkten untersucht, die auf gitterangepasstem AlGaInAs/InP-Substraten aufgewachsen wurden. Dazu wurden Parameter, wie die InAs-Bedeckung, die Wachstumsrate und die Wachstumstemperatur, variiert. Dabei zeigte sich, dass mit zunehmender nomineller Dicke der InAs-Schicht die Emissionswellenlänge der Quantenpunkte rotverschoben werden, ihre

Größe nimmt zu. Bei einer InAs-Bedeckung von 5.0 Monolagen beträgt die Emissionswellenlänge etwa 1.55 µm (Abb. 1(b)). Allerdings ist die Dichte der Punkte mit of 3×10^{10} cm⁻² hoch (Abb. 1(b)). Morphologische Untersuchungen ergaben zwei verschiedene Routen der Quantenpunktbildung, zum einen ein plötzliches Auftreten dreidimensionaler Strukturen bei einem normalen Stranski-Krastanov-Wachstum, zum anderen eine kontinuierliche Entwicklung kleiner Oberflächenstrukturen hin zu gut ausgebildeten Quantenpunkten. AFM-Aufnahmen zeigen deutlich eine bimodale Verteilung der Quantenpunkte bei eine Bedeckung von 2 ML, aber eine monomodale Verteilung bei Bedeckungen zwischen 3 und 5 ML. Diese Quantenpunkte emittieren im Telekom-Band. Ihre optische Qualität ist besser als die von Punkten, die bei höheren Beckungen entstanden (Abb. 1(c)).



Abb. 1: (a) Peak-Wellenlänge, (b) Quantenpunktdichte und (c) Peak PL-Intensität als Funktion der InAs-Bedeckung.

Um die Quantenpunktdichte zu verringern, wurde der Einfluss der effektiven Wachstumsrate bei einer Bedeckung von 3 ML untersucht. Verringert man die Aufwachsrate zu 0.02 ML/s, erhält man größere QPIte mit einer mittleren Dichte von 2×10^9 cm⁻². Zugleich verschiebt sich die Emissionswellenlänge um ca. 0.5 µm. Durch die reduzierte Rate erhöht sich die Diffusionslänge der Indium Ad-Atome, die sich daher auf der Oberfläche bewegen und dann sich an die größeren QPkte anlagern können.

Entwicklung von InAs-Quantenpunkten mit geringen Dichten

Um die Dichte der Quantenpunkte unter 10^9 cm^{-2} zu drücken, wurden weitere Maßnahmen durchgeführt. Ein wichtiger Parameter ist die Abkühlrate nach dem Wachstum der Punkte. Um ihren Einfluss auf Größe und Form der Quantenpunkte zu untersuchen, wurden Probenreihen mit bzw. ohne Verkapselungsschicht aufgewachsen, mit denen morphologische und optische Untersuchungen mittels AFM und PL durchgeführt wurden. Die Proben für die AFM-Messungen wurden bei 465 °C auf einer 100 nm dicken InP-Pufferschicht auf einem (100) InP-Substrat aufgewachsen, gefolgt von einer 228 nm dicken AlGalnAs-Schicht. Darauf wurde eine InAs-Schicht mit einer nominellen Dick von 2 ML bei 514 °C abgeschieden. Nach dem Wachstum der Quantenpunkte wurden sie bei einem Überdruck an As₂ auf T_{cool} = 480 °C, 455 °C, 413 °C bzw. 370 °C abgekühlt. Mit diesem Vorgehen war es in der Tat möglich, die InAs-Quantenpunkte einzufrieren. Die Proben für die Photolumineszenz-Messungen wurde nach dem Abkühlen mit einer 228 nm dicken AlGalnAs-Schicht versehen, wie unten näher dargestellt wird.



Abb. 2. 2x2 µm² 2D (Links) und 3D (Rechts) AFM-Bild einer QP-Probe niedriger Dichte (helle separate Peaks). Der Hintergrund sind sehr flache Wachstumsinseln, die spektral klar von den großen Quantenpunkten unterscheidbar sind.

Die Größe der Quantenpunkte nimmt mit abnehmender Substrattemperatur ab. Bei langsamen Abkühlen auf mittlere T_{cool} -Werte bilden sich Punkte; es beginnt ein Reifungsprozess, der zur Bildung größerer Quantenpunkte mit geringer Dichte führt. Die Dichte dieser Punkte betrug 5×10^8 cm⁻² (Abb. 2), wenn die Temperatur auf 413 °C reduziert wurde. Die Bildung dieser größeren Quantenpunkte wurde auch mithilfe von Makro-Photolumineszenz-Messungen bei niedrigen Temperaturen nachgewiesen, die eine Rotverschiebung der Emission zu 1.5 µm ergab. Die integrale PL-Intensität nimmt aufgrund der Verringerung der Dichte mit der Abkühltemperatur ab.

InAs QPkte auf Verteilten Rückkopplungsspiegeln (DBR)

Zur Erhöhung der Photolumineszenz-Ausbeute wurde ein Bragg-Spiegel (DBR) unter der Quantenpunktschicht eingefügt, der aus 20 Paaren von $\lambda/4$ - AlGalnAs/InP-Schichten mit einem Brechungsindex-Unterschied von 0.35 besteht und der spektral an die Emission der Quantenpunkte angepasst wurde, wobei die QPkte im Bereich zwischen ~1450 nm und > 1500 nm emittieren. Jedes dieser $\lambda/4$ -DBR-Paare besteht aus einer 123 nm dicken InP-Schicht und einer 110 nm dicken AlGalnAs-Schicht, wie in Abb. 3(a) dargestellt ist. Die Reflektivität wurde zu etwa 95 % bei 1550 nm bestimmt (Abb. 3(b)), die auf eine hohe Grenzflächenqualität zwischen den einzelnen DBR-Schichten hinweist. Im Vergleich zu QP-Proben ohne DBR wurde die Photolumineszenz-Intensität dadurch um mehr als einen Faktor 10 erhöht.





QP_AP2: µ-Photolumineszenz und Korrelationsmessungen

InAs-QPkte, die auf DBR-Strukturen aufgewachsen wurden, wurden mithilfe von µ-Photolumineszenz charakterisiert. Unsere Arbeitsgruppe stellte kürzlich InAs/AlGaInAs/InP-

Quantenpunkte mit geringer Dichte (~ 5x10⁸ cm⁻²) und einer exzitonischen Linienbreite einzelner Punkte unterhalb von 50 µeV (zum Großteil durch die Auflösung bedingt) vor, wobei eine spezielle Verkapselungstechnik nach der Formung der Punkte verwendet wurde¹. Aufgrund der geringen Punktdichte konnte für Korrelationsmessungen Mesa-Strukturen verzichten werden. Diese Messungen wurden in Zusammenarbeit mit der Arbeitsgruppe Michler (Universität Stuttgart) durchgeführt².

Emission einzelner Quantenpunkte und Feinstrukturaufspaltung

Die geringere Dichte und größeren Abmessungen der optisch aktiven Quantenpunkte spiegelt sich in µ-PL-Messungen wider. Abbildung 4(a) zeigt beispielhaft µ-PL-Spektren unprozessierter Proben bei nicht-resonanter Dauerstrich-Anregung für drei verschiedene Anregungsleistungen. Bei geringer Leistung wird eine einzelne scharfe Emissionslinie bei 1453.5 nm beobachtet, die auf einer neutralen exzitonischen Emission (X) beruht. Bei zunehmender Leistung treten mehrer Linien bei geringerer Energie auf, die einem neutralen Doppelexziton zugeordnet werden können, wie eine genaue Auswertung der Abhängigkeit von der Anregungsleistung ergab. Abbildung 4(b) zeigt die integrierten PL-Intensitäten der X-und XX-Übergänge in Abhängigkeit von der Laser-Anregungsleistung. Die durchgezogenen Linien stellen lineare Anpassungen an die Daten in einer doppeltlogarithmischen Auftragung dar. Sie zeigen ein beinahe ideales lineares bzw. quadratisches Verhalten für die X- bzw. XX-Linien.





Die Zuordnung der X- und XX-Übergänge wurde durch eine Analyse der Polarisation des emittierten Lichts bestätigt. Abbildung 4(c) zeigt die X- und XX-Energien als Funktion des Polarisationswinkels. Das oszillierende Verhalten beider Linien beruht auf zwei zueinander senkrecht stehenden, linear polarisierten Feinstrukturkomponenten. Wie erwartet zeigen die beiden Übergänge der X-XX-Kaskade bei Änderung des Polarisationswinkel gegenläufige Verschiebungen, wodurch die obige Zuordnung bestätigt wird. Die Feinstrukturaufspaltung für diesen Quantenpunkt beträgt 20 µeV. Dieser Wert ist größer als für derartige Quantenpunktsysteme theoretisch erwartet³. Wir sind davon überzeugt, dass die Linienbreite der Quantenpunkte und somit auch die Feinstrukturaufspaltung durch weitere Optimierung der Wachstumsparameter noch weiter reduziert werden kann, zum Beispiel durch Verringerung der Hintergrunddotierung Verbesserung der unterliegenden Pufferschicht.

¹ M. Yacob, J. P. Reithmaier, and M. Benyoucef, Appl. Phys. Lett.104, 022113 (2014)

² M. Benyoucef, M. Yacob, J.P. Reithmaier, J. Kettler, P. Michler, Appl. Phys. Lett.103, 162101 (2013)

³ L. He, M. Gong, C.-F. Li, G.-C. Guo, and A. Zunger, Phys. Rev. Lett. **101**, 157405 (2008)





Einzelphotonenemission

Durch Messung der Korrelationsfunktion zweiter Ordnung $g^{(2)}(\tau)$ unter Dauerstrichanregung konnte eine ausgeprägte Einzelphotonenemission knapp oberhalb von 1.5 µm von InAs/AlGaInAs/InP-Quantenpunkten nachgewiesen werden. Abbildung 5 zeigt die gemessene $g^{(2)}(\tau)$ -Kurve eines bei 1502 nm emittierten Quantenpunkt (siehe das Inset in der Abbildung). Das Diagramm zeigt deutliches "Antibunching" in der Korrelationszählrate für eine Verzögerungszeit $\tau = 0$ ns. Der gemessene Wert $g^{(2)}(0)$ beträgt 0.13, ein zweifelsfreier Beleg für Einzelphotonenemission. $g^{(2)}(0)$ erreicht allerdings nicht den Idealwert null, zurückzuführen auf die endliche Zeit (200 ps) in dem Diagramm. Die Daten wurden mit einer Korrelationsfunktion zweiter Ordnung angepasst. Wie aus Abb. 5 hervorgeht, ist die Anpassung in guter Übereinstimmung mit der Theorie; sie liefert einen Wert für $g^{(2)}(0)$ von null (±0.09); dies deutet auf eine nahezu perfekte Einzelphotonenemission hin.



Abb. 5. Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung g⁽²⁾(τ) bei nicht-resonanter Dauerstrich-Anregung bei etwa 600 nm. Das Inset zeigt das Mikro-Photolumineszenz-Spektrum des entsprechenden Quantenpunkts mit einer Emission bei 1502 nm.

QP_AP3: Integration von pin-Diodenstrukturen für Photostrommessungen

Durch Licht erzeugte Ladungsträger können aus den Quantenpunkten tunneln, wenn eine ausreichend hohe Vorspannung an die Probe angelegt wird. Durch Variation der Anregungswellenlänge kann die spektrale Absorption eines Quantenpunkts über den Photostrom gemessen werden. Zu diesem Zweck wurde eine Schicht mit Quantenpunkten in eine pin-Diodenstruktur eingebettet mit einer mittleren Punktdichte, die bei etwa 1500 nm emittiert. Die pin-Diodenstrukturen wurden an die AG Zrenner (Uni Paderborn) gesandt, die sie mithilfe von hochauflösender Photostromspektroskopie charakterisierte. Abb. 5(b) zeigt Photostrom-Spektren bei verschiedenen Laserwellenlängen. Die Übergangsenergie variiert aufgrund des Quantum-Confined-Stark-Effekts kontinuierlich mit der Probenspannung. In Richtung positiver Spannung wird der Photostrom aufgrund einsetzender Photolumineszenz geringer. In Richtung negativer Spannung verkürzt sich die Tunnelzeit, dies führt zur einer Linienverbreiterung.



Abb. 6: (a) Photostrom-Spektren eines Quantenpunkts bei verschiedenen Laserwellenlängen.





Teilprojekt 2 (NCD): NV-Zentren in nanokristallinen Diamantstrukturen

Übereinstimmend mit dem Arbeitsprogramm wurden folgende Arbeitspakete (AP) bearbeitet:

NCD_AP1: Herstellung und Untersuchung von NV-Zentren in NCD-Schichten und Nanostrukturen

Die vereinzelten Diamantnanokristallite (NC) und nanokristallinen Diamantschichten (NCD), welche in allen AP verwendet werden, werden mittels "Hot-Filament Chemical Vapor Deposition" (HFCVD) mit optimierten Prozessparametern hergestellt: Substrattemperatur von ca. 850 – 900 °C, Arbeitsdruck von 25 mbar und Filamenttemperatur von ca. 2000 °C (gemessen mit einem optischen Pyrometer). Kohlenstoffquelle ist 1% Methan in Wasserstoff. Für die Bildung von NV-Zentren wird kein zusätzlicher Stickstoff hinzugegeben sondern der Restdruck in der CVD-Kammer genutzt. Die Stickstoffeinlagerung innerhalb der Diamantschichten wurde durch Time-of-Flight-Sekundärionen-Massenspektrometrie (ToF-SIMS) untersucht, wobei sich eine gleichmäßige Verteilung über die gesamte Tiefe gezeigt werden konnte (Abb. 1). Um einzelne Nanokristallite bzw. nanokristalline Schichten zu erhalten wurde die Abscheidungsdauer zwischen 25 und 180 Minuten variiert.

Als Substrat wurden Siliziumwafer verwendet, die zuvor in einem Ultraschallbad mit einer Suspension verschiedener Diamantpulver (ultradisperses Diamantpulver mit Korngrößen von 3 - 5 nm und Nanodiamantpulver mit einer mittleren Korngröße von 250 nm) behandelt Dieses Verfahren dient der Kontrolle der Nukleationsdichte: wurden. Hohe Nukleationsdichten (> 10¹⁰ cm⁻²) für das Wachstum von Schichten (Abb. 2, oben) bei einer Mischung beider Diamantpulverfraktionen und niedrigere (ca. 10⁸ cm⁻²) für Einzelkristallite (Abb. 2, unten) wenn nur Nanodiamantpulver zur Anwendung kam. Die Vorbehandlung dauerte üblicherweise eine Stunde und die Substrate wurden daraufhin ebenfalls im Ultraschallbad mit Acetone und Isopropanol gereinigt.



Abb. 1. ToF-SIMS Tiefenprofil der in NCD gemessenen Spezies



Abb. 2. SEM-Bilder einer geschlossenen NCD-Schicht (oben) und statistisch verteilter Diamantnanokristallite (unten)

Nach Optimierung von Lithographie und Ätzparametern wurden über einen Top-Down-Ansatz Diamantnanosäulen aus geschlossenen NCD-Schichten hergestellt. Der Prozess enthält folgende Schritte: (i) Aufbringen eines Lackes; (ii) Definierung der Nanosäulen mit Elektronenstrahllithographie (EBL) und Lackentwicklung; (iii) Aufdampfen von 5 nm Titan (Haftschicht) und 200 nm Gold; (iv) Lift-off-Prozess der Lack-Opferschicht; (v) Ätzen der Diamantschicht durch induktiv gekoppeltes Plasma-Reaktivionenätzen (ICP-RIE) mit einem Sauerstoffplasma; (vi) Entfernung der Goldschicht mit Königswasser. Das ICP-RIE-Rezept wurde hinsichtlich Ätzrate und Qualität der Nanosäulen auf folgende Parameter optimiert: RF-Leistung = 200 W, ICP-Leistung = 1000 W, O₂-Fluss = 10 sccm, Arbeitsdruck = 5 mTorr und Substrattemperatur = 30° C; die dabei gemessene Ätzrate betrug etwa 100 nm/min. Felder von Diamantsäulen mit Durchmesser zwischen 1 µm bis hinunter zu 50 nm und einem Abstand von 5 µm zwischen den Säulenzentren konnten hergestellt werden. Die größeren Säulen zeigen gute Qualität mit glatten und vertikalen Wänden. Mit kleiner werdendem Durchmesser wurden die Säulen jedoch konischer (Abb. 3).



Abb. 3. Feld von Diamantnanosäulen und einzelnen Nanosäulen mit Durchmessern von 500, 200, 100 und 50 nm

Proben mit Diamantnanokristalliten und Nanosäulen wurden mit einem konfokalen Mikroskop (50x Luftobjektiv, 0,95 NA) in Kooperation mit der Gruppe von Prof. J. Wrachtrup, Universität Stuttgart (QuO-Rep) untersucht. Die Anregung von NV-Zentren erfolgte mit einem 532 nm CW diodengepumpten Festkörperlaser (Coherent, Compass). Das Fluoreszenzlicht wurde durch das gleiche Objektiv gesammelt und das Anregungslicht mittels eines Langpass-Interferenzfilters herausgefiltert. Die Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung g⁽²⁾(τ) wurde über von zwei Avalanche Photodioden in einer Hanbury-Brown-Twiss-Konfiguration gemessen.

Die konfokalen Bilder der Diamant-NCs zeigen helle Punkte korrespondierend mit der Kristallposition (Abb. 4, links). Nachdem für jede Serie mindestens 5 Punkte anhand ihrer Helligkeit ausgewählt wurden, konnte deren Photolumineszenzspektren aufgenommen werden. Die Spektren zeigen die Anwesenheit von NV⁻-Zentren, zusammen mit NV⁰- und SiV-Zentren. Letztere enthalten wahrscheinlich Si-Atome aus dem Substrat (Abb. 4, rechts)





Abb. 4. Konfokales Floureszenzbild von einzelnen Diamant-NCs (links) und PL-Spektrum eines der hellsten Punkte (recht)

Floureszensabbildungen der NCD-Säulen zeigen hohe Intensität an der Position der Säulen (Abb. 5, oben). Die Photointensität des hellsten Punktes (1 x 10⁶ counts per second bei einer Pumpleistung von 38 μ W) war etwa eine Größenordnung höher als jene von unstrukturiertem NCD-Schichten; bei Nanosäulen mit 200 nm Durchmesser war sie noch einmal höher. Die PL-Spektren der Säulen bei Raumtemperatur zeigten Maxima, welche von NV⁰- und NV⁻-Farbzentren herrühren (Abb. 5, unten links). Korrelationshistogramme zweiter Ordnung ergaben g⁽²⁾(0) = 0,89, was darauf hinweist, dass sich mehr als ein Emitter in jeder Säule befindet (Abb. 5, unten rechts).



 Abb. 5. SEM-Bild eines Feldes von Diamantnanosäulen (oben links) und das korrespondierende konfokale Floureszenzbild (oben rechts); typisches
 Photolumineszenzspektrum aufgenommen von einer Säule (unten links); Antibunching von einer Diamantnanosäule, welches die Emission von mehreren NV-Zentren zeigt (unten rechts).

Folglich zeigen die Messungen von Diamantnanokristalliten und Nanosäulen Signale von NV⁰ und NV⁻, was auf das Vorhandensein von Ensembles von NV-Zentren hinweist. Diese entstehen während des Abscheidungsprozesses statistisch verteilt auf Tiefe und Fläche.

NCD_AP2: Entwicklung von PC-Resonatoren mit NCD Membranstrukturen

Die Integration von NV-Zentren in optische Kavitäten, wie zum Beispiel photonische Kristalle (PC), dient der Erhöhung sowohl der Photoemissionsausbeute als auch der Sammeleffizienz der emittierten Photonen. Zu diesem Zweck wurde der optimierte Ätzprozess auf die Fertigung photonischer Kristalle in NCD angewendet (Abb. 6, links). Der Prozess beinhaltet die Abscheidung von SiO₂ als Hartmaske da die Verwendung von Gold als Hartmaske kombiniert mit einem Lift-off-Schritt keine befriedigenden Ergebnisse erbrachte. Die PC-Struktur wurde mit EBL definiert, gefolgt von reaktivem Ionenätzen zur Maskenstrukturierung aus einer Mischung von CHF₃ und Ar, sowie einem ICP-RIE-Prozess mit Sauerstoff für die darunterliegende NCD-Schicht. Um freistehende Membranen (Abb. 6, Mitte) herzustellen, wurden NCD-Schichten auf einer SiO₂-Opferschicht von 150 bis 1000 nm Dicke aufgewachsen. Nach Öffnen der Löcher in der NCD-Schicht durch Lithographie und Ätzen wurde die Opferschicht mit nasschemischen Ätzen in NH₄F:HF-Lösung entfernt. Die SEM-Bilder des Querschnitts zeigen Löcher im NCD mit glatten Seitenwänden mit einem Neigungswinkel von 2,8° (Abb. 6, rechts). Die so hergestellten PC-Resonatoren wurden in Zusammenarbeit mit der Gruppe von Prof. J. Wrachtrup in Stuttgart auf die Anwesenheit von NV-Zentren untersucht (Abb. 7).



Abb. 6. SEM-Bild eines PC in NCD (links), Querschnitt durch eine Diamantmembran hergestellt aus NCD (Mitte) und Löcher nach einem FIB-Schnitt (rechts).



Abb. 7. Fluoreszenzsignal einer PC-Diamantmembran mit einer Dicke von 750 nm.

NCD_AP3: Integration von NCD-Schichten in Halbleiterheterostrukturen

Die recht hohen Substrattemperaturen von 800 – 900°C, welche für qualitativ hochwertige Diamantschichten benötigt werden, stellen ein Hindernis für die Anwendung von Diamant auf temperaturempfindlichen Substraten, wie III-V-Halbleitern, dar. Deshalb wurde eine Reihe von Abscheidungen mit geringerer Substrattemperatur durchgeführt und die Qualität dieser Diamantschichten untersucht. NCD-Schichten abgeschieden zwischen 930 und 500 °C wurden sorgfältig charakterisiert hinsichtlich ihrer Morphologie und Struktur (SEM), ihrer Kristallinität (XRD), der Zusammensetzung (XPS) und der Bindungsverhältnisse (XPS und Ramanspektroskopie). Es wurden drastische Veränderungen der NCD-Schichten beobachtet, sobald die Temperatur 700 °C unterschritt. Diese Änderungen betraf jedoch nicht das sp³/sp²-Verhältnis. Dieses blieb im gesamten untersuchten Temperaturbereich weitestgehend konstant hoch. Die Änderungen betrafen jedoch die Art und den Anteil des Korngrenzenmaterials, welches sich zwischen den Diamantnanokristalliten befindet, sowie die Homogenität der Schichten.

Zur Abscheidung von Diamantschichten auf GaAs-Substraten wurden leicht verringerte Substrattemperaturen von 830°C verwendet sowie eine dünne Siliziumdioxidschicht um die thermische Zersetzung des GaAs zu verhindern. Die Ergebnisse zeigen geschlossene NCD-Schichten mit einer Dicke von 180 nm (Abb. 8)





Abb. 8. SEM-Bilder der Aufsicht und des Querschnittes einer NCD-Schicht nach 60 min Abscheidung auf GaAs.

Weitere Experimente zur Integration von III-V-Heterostrukturen mit NCD wurden durchgeführt. Ensembles von In_{0.6}Ga_{0.4}As-Quantenpunkten, die mit unterschiedlichen Dichten mit Molekularstrahlepitaxie (MBE) gewachsen wurden, wurden mit NCD überwachsen, wie schematisch in Abb. 9 gezeigt. PL-Untersuchungen zeigten, dass die QP-





Ensembles nicht zerstört wurden und optisch intakt geblieben sind. Aufgrund eines Ausheileffektes zeigte sich allerdings eine Blauverschiebung nach der NCD-Abscheidung. Diese Ergebnisse zeigen die Möglichkeit der Bereitstellung von optisch aktiven NCD/QP-Heterostrukturen.



Abb. 9. Schema der integrierten NCD/QP-Heterostrukturen und das PL-Spektrum einer Probe mit hoher QP-Dichte.

NCD_AP4: Positionskontrollierte Abscheidung von Diamantnanokristallen auf Halbleiter Nanoresonatoren

Das positionskontrollierte Wachstum von Diamantnanokristalliten auf vorstrukturierten Siliziumsubstraten konnte während des Projektes erfolgreich demonstriert werden. Die optimierten Parameter für Diamantnukleation und -wachstum wurde auf GaAs angewendet. Als ein erster Schritt wurden GaAs-Substrate strukturiert, um Keime für das Diamantwachstum zu formen. Die Strukturierung umfasst zwei Prozesse: (i) Photolithographie zur Herstellung von Orientierungsmarkern mit H₃PO₄-Naßätzverfahren und (ii) EBL für die Strukturierung der Nanolöcher durch Nassätzen mit Jod. Die resultierenden Nanolöcher sind reproduzierbar im Durchmesser (im Bereich 50 – 60 nm), Tiefe (ca. 25 nm) und Form (Abb. 10). Diese vorstrukturierten GaAs-Substrate wurden unter Anwendung der Prozessparameter aus AP3 für das positionskontrollierte Wachstum einzelner Diamantnanokristallite mit integrierten NV-Zentren genutzt. In einem weiteren Schritt soll diese Abscheidung auf abgegrenzte Bereiche von Halbleiterresonatoren angewendet werden, zum Beispiel in der Kavität photonischer Kristalle aus III-V-Halbleitern.



Abb. 10. SEM und AFM-Bilder von vorstrukturierten GaAs-Substraten und die entsprechenden Höhenprofile der Löcher.

2. des voraussichtlichen Nutzens, insbesondere der Verwertbarkeit des Ergebnisses und der Erfahrungen

Da sich die Arbeiten vorrangig auf dem Gebiet der Grundlagenforchschung und Machbarkeitsstudien erstreckten, konnten noch keine direkten wirtschaftlichen Anwendungen realisiert werden. Aber die Ergebnisse zeigen die Möglichkeiten der Nutzung der InP-basierten Quantenpunkte und der NV-Zentren in Diamant als Plattform für Quanten-Repeater.

3. des während der Durchführung des Vorhabens dem Zuwendungsempfänger bekannt gewordenen Fortschritts auf diesem Gebiet bei anderen Stellen

Zu Teilprojekt 1 (Entwicklung von InAs-Quantenpunkten mit geringen Dichten): Während der Projektlaufzeit sind nach unserem Wissen keine wessentlichen neuen Erkenntnisse bei anderen Stellen bekannt geworben.

Zu Teilprojekt 2 (Photonische Kristalle in Diamant): In der noch vor Projektende erschienenen Publikation "One- and two-dimensional photonic crystal microcavities in single crystal diamond" (J. Riedrich-Möller, L. Kipfstuhl, C. Hepp, E. Neu, C. Pauly, F. Mücklich, A. Baur, M. Wandt, S. Wolff, M. Fischer, S. Gsell, M. Schreck, and C. Becher, Nature Nanotechnology 7, 69 (2012)), wurde die Herstellung von photonischen Kristallen (PC) in Diamant mit Hilfe eines alternativen Ansatzes demonstriert. Beispielsweise wurden die Löcher mit fokussierten Gallium-Ionenstrahlen (FIB) strukturiert. Durch einen darauf folgenden Ätzschritt wurden die Kavitätsmoden an die Zero-Phonon-Linie einer Gruppe von SiV-Zentren angepasst, was zu einer Intensitätserhöhung führte. Diese Ergebnisse zeigen, dass die Fertigung eines vollständig aus Diamant bestehenden photonischen Netzwerkes mit integrierten Farbzentren möglich ist. Zusätzlich zeigt die Publikation dass die Verwendung von EBL und RIE (i.e. den Techniken, die in TP 2 verwendet werden) von Vorteil für die PC-Herstellung ist.

4. der erfolgten oder geplanten Veröffentlichung des Ergebnisses

- M. Yacob, J. P Reithmaier and M. Benyoucef, Low-density InP-based quantum dots emitting around the 1.5µm telecom wavelength range, *Appl. Phys. Lett.*104, 022113 (2014).
- M. Benyoucef, M. Yacob, J.P. Reithmaier, J. Kettler, and P. Michler, Telecomwavelength (1.5 μm) single-photon emission from InP-based quantum dots, *Appl. Phys. Lett.*103, 162101 (2013).
- M. Benyoucef, V. Zürbig, J. P Reithmaier, T. Kroh, A. W. Schell, T. Aichele and O. Benson, Single-photon emission from single InGaAs/GaAs quantum dots grown by droplet epitaxy at high substrate temperature, *Nanoscale Research Letters* 7, 493 (2012).
- J. Evtimova, W. Kulisch, C. Petkov, E. Petkov, F. Schnabel, J.P. Reithmaier, C. Popov, *Diamond Relat. Mater.* 36, **58** (2013).
- E. Petkov, C. Popov, T. Rendler, C. Petkov, F. Schnabel, H. Fedder, S.-Y. Lee, W. Kulisch, J.P. Reithmaier, J. Wrachtrup, *Phys. Stat. Sol. (B)* **250**, 48 (2013).





- E.Petkov, T. Rendler, C. Petkov, F. Schnabel, J.P. Reithmaier, J. Wrachtrup, C. Popov, W. Kulisch, *Phys. Stat. Sol. (A)* **210**, 2066 (2013).
- W. Kulisch, C. Petkov, E. Petkov, C. Popov, P. N. Gibson, M. Veres, R. Merz, B. Merz, J. P. Reithmaier, *Phys. Stat. Sol. (A)* **209**, 1664 (2012).

Datum: 08.04.2014

TP-Leiter: Prof. Dr. J.P. Reithmaier

Berichtsblatt

1. ISBN oder ISSN ISSN: 1862-6319	2. Berichtsart (Schlussbericht oder Veröffentlichung) Schlussbericht					
3. Titel						
"Quanten-Repeater Plattformen auf der Basis von Halbleitern" Teilprojekt: (b) "NV-Zentren in nanokristallinen Diamantstrukturen"						
4. Autor(en) [Name(n), Vorname(n)] 5. Abschlussdatum des Vorhabens 31 10 2013						
Popov, Cyril Petkov, Emil Potkov, Christo	6. Veröffentlichungsdatum					
Reithmaier, Johann Peter	7. Form der Publikation					
8. Durchführende Institution(en) (Name, Ad	8. Durchführende Institution(en) (Name, Adresse)					
Institut für Nanostrukturtechnologi Heinrich-Plett-Str. 40	e und Analytik (INA)	10. Förderkennzeichen 16BQ1038				
54132 Kassel		11. Seitenzahl 1				
12. Fördernde Institution (Name, Adresse)		13. Literaturangaben -				
Bundesministerium für Bildung und Forschung (BMBF) 53170 Bonn		14. Tabellen -				
		15. Abbildungen -				
16. Zusätzliche Angaben						
17. Vorgelegt bei (Titel, Ort, Datum)						
18. Kurzfassung Die überaus erfolgreichen und erfolgversprechenden Ergebnisse unserer Arbeiten im Förderzeitraum können wie folgt zusammengefasst werden:						
 Kontrolle der Nukleationsdichte von Nar Größe (zufälliges oder orts-kontrolliertes 	 Kontrolle der Nukleationsdichte von Nanodiamant auf Silizium. Herstellung einzelner Diamant-Nanokristallite gewünschter Größe (zufälliges oder orts-kontrolliertes Wachstum) sowie geschlossener nanokristalliner Diamantschichten (NCD). 					
 Herstellung wohldefinierter Diamant-Nanosäulen auf der Basis von NCD-Schichten mittels Elektronenstrahl-Lithographie und reaktivem Ionenätzen, wobei Säulen mit Durchmessern von 1 μm bis hinab zu 50 nm realisiert wurden; Optimierung der Prozessparameter des reaktiven Ionenätzens (RIE) von NCD im Bezug auf Ätzrate und Qualität der Nanostrukturen (Daten wurden in <i>Phys. Status Solidi A 210, 2066 (2013)</i> veröffentlicht). 						
 Positiver Nachweis von NV-Zentren sowohl in einzelnen Diamant-Nanokristalliten als auch in NCD-Säulen. Dieser Nachweis erfolgte mittels Photolumineszenz-Messungen und Fluoreszenz-Kartierung in Zusammenarbeit mit der AG von Prof. J. Wrachtrup (Universität Stuttgart) vom Verbund QuOReP. Die Nanosäulen fungieren als photonische Kavität mit erhöhter Ein- und Auskoppeleffizienz über die Seitenflächen. Dadurch konnte die Photonemissionsausbeute um mehr als eine Größenordnung erhöht werden im Vergleich zu unstrukturierten NCD-Schichten (Daten wurden in <i>Phys. Status Solidi A 250, 48</i> (2013) veröffentlicht). 						
 Herstellung von NCD-Membranen aus NCD-Schichten durch selektives Ätzen des Substrats. Durch Optimierung der Litho- graphie und des Ätzprozesses konnten photonische Kristallresonatoren mit glatten, vertikalen Wänden realisiert werden. 						
 Entwicklung von Niedertemperatur-Abscheideprozessen f ür die Integration von Nanodiamant auf III-V-Heterostrukturen; Abscheidung von geschlossenen Diamantschichten auf GaAs-Substraten und QD-Heterostrukturen; Herstellung von vorstrukturierten GaAs-Substraten durch das Ätzen von Nanolöchern mit reproduzierbarer Form, Tiefe und Durchmesser f ür zuk ünftige positionskontrollierte Diamantabscheidung. 						
19. Schlagwörter NV-Zentren, Diamant-Nanokristallite, nanokristalliner Diamantschichten, Nanostrukturierung, photonische Strukturen						
20. Verlag		21. Preis				

Berichtsblatt

1. ISBN oder ISSN ISSN: 0003-6951	2. Berichtsart (Schlussbericht oder Veröffer Schlussbericht	tlichung)				
3. Titel						
"Quanten-Repeater Plattformen au Teilprojekt: (a) "1,55 µm Quantenp	uf der Basis von Halbleitern" ounkte im InP-Materialsystem"					
4. Autor(en) [Name(n), Vorname(n)]	5. Abschlussdatum des Vorhabens 31.10.2013					
Benyoucef, Mohamed; Yacob, Matusala;	6. Veröffentlichungsdatum					
Reithmaier, Johann Peter		7. Form der Publikation				
8. Durchführende Institution(en) (Name, Ad	dresse)	9. Ber. Nr. Durchführende Institution 1/4				
Kassel, Heinrich-Plett-Str. 40, D-34132 Kassel, Germany	e und Analytik, CinSar, Universitat	10. Förderkennzeichen 16BQ1038				
	11. Seitenzahl 1					
12. Fördernde Institution (Name, Adresse) Bundesministerium für	13. Literaturangaben 2					
Bildung und Forschung (BMBF) 53170 Bonn	14. Tabellen -					
	15. Abbildungen -					
16. Zusätzliche Angaben -						
17. Vorgelegt bei (Titel, Ort, Datum) -	17. Vorgelegt bei (Titel, Ort, Datum)					
1						
18. Kurzfassung Im Rahmen des Projektes konnten du	18. Kurzfassung Im Rahmen des Projektes konnten durch umfangreiche Optimierung der Wachstumsparameter alle wesentlichen					
Liele erreicht werden. Diese waren unter anderem: (I) Realisierung von InAs-QPkten mit niedriger Dichte von etwa 5x10 ⁸ cm ⁻² durch "post-growth annealing", welche im Bereich des Telekom C-Bandes emittieren. (ii) Realisierung schmaler exzitonischer Linienbreiten unter 50 μeV von einzelnen QPkten bei niedrigen Temperaturen, welche nahezu die Auflösungsgrenze des hochauflösenden Photolumineszenzmessplatzes erreichten (Daten wurden in <i>Appl. Phys. Lett.</i> 104, 022113 (2014) veröffentlicht). Die optische Qualität ist damit mittlerweile vergleichbar mit GaAs-basierten QPkten, die bei < 1 μm emittieren. Nach unserem Kenntnisstand wurde damit ein neuer Stand der Technik erreicht. Mit weiteren Optimierungen von Wachstumsparametern sind aber noch erhebliche Verbesserungen in der Linienbreite zu erwarten, z.B. durch Herabsenkung der Hintergrunddotierung bzw. optimierten Pufferschichten. (iii) Integration von Bragg-Reflektoren. Damit konnte die Photolumineszenzausbeute um mehr als eine Größenordnung erhöht werden. Damit war es erstmals möglich in Zusammenarheit mit der AG						
Michler (Universität Stuttgart) auf InP-basierten einzelnen Quantenpunkten durch Autokorrelationsmessungen Einzelphotonenemission nachzuweisen (Daten wurden in <i>Appl. Phys. Lett.103, 162101 (2013)</i> veröffentlicht). (iv) Integration von InAs QPkten in elektrisch betreibbare pin-Diodenstrukturen. Die Probe wird in der AG Zrenner (Universität Paderborn) eingesetzt zu Experimenten zur Spinkontrolle in selektiv geladenen Einzelquantenpunkten. Die Daten wurden von S. Gordon et al., in Dresden DPG-Tagung 2014 vorgestellt.						
19. Schlagwörter Einzel-Photonen-, InAs-Quantenpunkte, Telekom Wellenlänge, Molekularstrahl-Epitaxie, Quantenoptik						
20. Verlag		21. Preis				

Document Control Sheet

1. ISBN or ISSN ISSN: 1862-6319	2. type of document (e.g. report, publication Final Report	1)				
3. title						
"Quantum Repeater Platforms Based on Semiconductors" Sub-Project: (b) "NV Centers in Nanocrystalline Diamond Structures"						
4. author(s) (family name, first name(s))		5. end of project				
Popov, Cyril Petkov, Emil Petkov, Christo	31.10.2013 6. publication date					
Reithmaier, Johann Peter		7. form of publication				
8. performing organization(s) (name, addre	ss)	9. originator's report no. 4/4				
Institut für Nanostrukturtechnologie Heinrich-Plett-Str. 40	e und Analytik (INA)	10. reference no. 16BQ1038				
34132 Kassel		11. no. of pages				
12. sponsoring agency (name, address)		13. no. of references				
Bundesministerium für Bildung und Forschung (BMBF) 53170 Bonn	14. no. of tables					
		15. no. of figures				
16. supplementary notes						
17. presented at (title, place, date)	17. presented at (title, place, date)					
18. abstract						
 Control of nucleation density of nanodiamond on silicon. Deposition of diamond nanocrystallites with desired size (random or site-controlled grown) as well as closed nanocrystalline diamond (NCD) films. 						
• Fabrication of diamond nanopillars (with diameters from 1 µm down to 50 nm) from NCD films by electron beam lithography and reactive ion etching (RIE); Optimization of the process parameters of RIE with respect to the etch rate and quality of the nanostructures (the data were published in <i>Phys. Status Solidi A 210, 2066 (2013)</i>).						
• Evidence of NV centers in singles diamond nanocrystallites as well as in NCD pillars. The investigations by photoluminescence spectroscopy and fluorescence mapping were performed in cooperation with the group of Prof. J. Wrachtrup (Uni. Stuttgart, consortium QuOReP). The nanopillars play the role of photonic cavities with enhanced coupling efficiency. As a result the photon collection efficiency is increased by a order of magnitude in comparison the unstructured NCD films (the data were published in in <i>Phys. Status Solidi B 250, 48 (2013)</i>).						
• Fabrication of NCD membranes from NCD films by selective etching of the substrate. Realization of photonic crystal resonators with smooth and vertical walls by optimization of lithography and etching process.						
• Development of low-temperature deposition process for integration of nanodiamond with III-V heterostructures; Deposition of closed diamond films on GaAs substrates and QD heterostructures; Fabrication of prepatterned GaAs substrates by etching of nanoholes with reproducible shape, depth and diameter for site-controlled growth of diamond.						
19. keywords NV centers, diamond nanocrystals, na	19. keywords NV centers, diamond nanocrystals, nanocrystalline diamond films, nanostructuring, photonic structures					
20. publisher		21. price				

Document Control Sheet

1. ISBN or ISSN ISSN: 0003-6951	2. type of document (e.g. report, publication) Final report					
3. title	•					
"Quantum Repeater Platforms Based on Semiconductors" Sub-Project: (a) "1.55 μm quantum dots in the InP material system"						
4. author(s) (family name, first name(s)) 5. end of project						
Benyoucef, Mohamed; Yacob, Matusala;	6. publication date					
Reithmaier, Johann Peter		7. form of publication				
8. performing organization(s) (name, addre		9. originator's report no. 3/4				
University of Kassel, Heinrich-Plet D-34132 Kassel, Gewrmany	t-Str. 40,	10. reference no. 16BQ1038				
	11. no. of pages 1					
12. sponsoring agency (name, address) Bundesministerium für		13. no. of references -				
Bildung und Forschung (BMBF) 53170 Bonn	14. no. of tables -					
	15. no. of figures -					
16. supplementary notes						
17. presented at (title, place, date) -						
18. abstract						
In the frame of this project, we have successfully grown almost round shaped and low densities of InP-based QDs with and without distributed Bragg reflectors, using III-V solid-source molecular beam epitaxy. As well as we have successfully embedded middle QD density in pin-diode structures. Their structural and optical characterizations were investigated using atomic force microscopy and micro-photoluminescence, respectively. Based on extensive optimization of the growth parameters, the essential objectives are achieved which are summarized as follow: (i) realization of low density InAs QDs about 5x 10 ⁸ cm ⁻² emitting at telecom wavelengths using post growth annealing. (ii) Realization of narrow excitonic linewidths below 50 µeV from single QDs at low temperature, which is close to the spectral resolution of our setup (the data were published in in <i>Appl. Phys. Lett.</i> 104, 022113 (2014)). The optical quality is therefore, comparable with GaAs-based QDs that emit at <1 µm. To our knowledge, this is the best reported value so far. (iii) Light emission from QDs could be increased by more than an order of magnitude by integrating the QDs on Bragg reflectors. In cooperation with the group of Michler (University of Stuttgart), we demonstrate pronounced single-photon emission from InAs/AlGaInAs/InP QDs at wavelengths above 1.5 µm for the first time without the necessity of further processing steps (the data were published in in <i>Appl. Phys. Lett.</i> 104, 022113 (2014)). (iv) Integration of InAs QDs in pin-diode structures, the optimized structure was then sent to AG Zrenner, University of Paderborn. Such InAs QDs are investigated by low-temperature high-resolution photocurrent spectroscopy. They observe clear ground state absorption of single QDs in the photocurrent response. The data were presented by S. Gordon et al., in DPG meeting Dresden 2014.						
20. publisher -		21. price -				