

Abschlussbericht

zum Forschungsprojekt

Photonenanzahl-auflösende und Totzeit-freie
RTD-Einzelphotonendetektion, Photon-N,
Förderkennzeichen: 13N15125

Zuwendungsempfänger:
Julius-Maximilians-Universität
Würzburg

Förderkennzeichen:
13N15125

Laufzeit des Vorhabens:
01.04.2019 – 31.12.2021

Berichtszeitraum
01.04.2019 – 31.12.2021

Inhalt

1. Aufzählung der wichtigsten wissenschaftlich-technischen Ergebnisse und anderer wesentlicher Ereignisse.....	3
2. Vergleich des Stands des Vorhabens mit der ursprünglichen Arbeits-, Zeit- und Ausgabenplanung....	16
3. Änderungen zu den Aussichten für die Erreichung der Ziele.....	16
4. Ergebnisse von dritter Seite Ergebnisse	17
5. Änderungen der Zielsetzung	17
6. Fortschreibung des Verwertungsplans.....	17
6.1 Erfindungen, Schutzrechtsanmeldungen und erteilte Schutzrechte	17
6.2 Wirtschaftliche Erfolgsaussichten nach Projektende.....	18
6.3 Wissenschaftliche und/oder technische Erfolgsaussichten nach Projektende.....	18
6.4 Wissenschaftliche und wirtschaftliche Anschlussfähigkeit	19

1. Aufzählung der wichtigsten wissenschaftlich-technischen Ergebnisse und anderer wesentlicher Ereignisse

Ziel dieses Projektes war die Weiterentwicklung von Einzelphotonendetektoren basierend auf Resonanztunneldioden, indem die zwei größten Nachteile, deren Effizienz und der Betrieb bei tiefen Temperaturen, überwunden werden. Durch ihren totzeitfreien Betrieb und der Bauteilgeschwindigkeit sind diese ein vielversprechender Kandidat kommerzielle Einzelphotonendetektoren zu ersetzen. Zum Beispiel haben Avalanche-Photodioden zwar geringe Totzeiten von wenigen Nanosekunden[1] jedoch nur moderate Effizienzen[2]. Supraleitende Drähte können zwar Effizienzen von über 90% erzielen, haben jedoch Totzeiten von mehreren 10 ns[3]. Eine Reduzierung der Totzeit kann zwar durch Reduktion der Schichtdicken erzielt werden, jedoch auf Kosten der Effizienz[4]. Nanodrähte haben des Weiteren den entscheidenden Nachteil, dass für den Betrieb zwingend Temperaturen von wenigen K notwendig sind. Dies schränkt ihren praktischen Einsatz auf Forschungseinrichtungen ein. Resonante Tunneldioden haben das Potential diese Technologien zu übertreffen.

Im Projekt wurden zwei Methoden zur Steigerung der Effizienz erarbeitet, zum einen die Verwendung einer Wellenleitergeometrie und zum anderen durch die Integration in einen optischen Resonator bestehend auf alternierenden Schichten mit unterschiedlichen Brechungsindizes. Bei einem Wellenleiter werden die Photonen senkrecht zur Heterostruktur und dem Stromfluss eingekoppelt. Somit können lange Absorptionsschichten bei der Verwendung von dünnen Absorberschichten realisiert werden. Dies erlaubt einen sehr schnellen Betrieb des Bauteils. Der optische Resonator hingegen erhöht die Licht-Materie-Wechselwirkung durch den Einschluss der optischen Mode.

Bisher konnten in RTD-Einzelphotonendetektoren mit InAs-Quantenpunkten einzelne Photonen bis zu einer Betriebstemperatur von $T=77$ K demonstriert werden[5]. Das geringe Einschlusspotential im Valenzband limitiert hierbei die Betriebstemperaturen. Im Rahmen dieses Projektes konnten erstmalig einzelne Photonen mit einem ternären GaAsSb-Quantenfilm – anstelle der Quantenpunkte - nach der Doppelbarrierenstruktur detektiert werden. Das erhöhte Einschlusspotential der Ladungsträger im Valenzband erlaubt eine Steigerung der Betriebstemperaturen weit über 77 K.

Die im Projekt durchgeführten Arbeiten sind im Folgenden anhand der Arbeitspakete aufgeschlüsselt und beschrieben.

AP 1: Bauelement-Design, Entwurf und Simulation

AP 1.1: Elektrisches Rauschen & Maximale Detektordimensionen:

Ein kritischer Bauteilparameter ist die Detektorfläche A_{RTD} , da mit zunehmender Fläche der Strom durch die Diode steigt und damit das Stromrauschen. Die Detektion von einzelnen Photonen kann nur erfolgen, wenn der generierte Photostrom ΔI_{1h} eines einzelnen Photons größer als das Stromrauschen i_{noise} ist. Damit folgt für die maximale Diodenfläche[6]:

$$A_{RTD} < \frac{\gamma_{RTD}^2}{2q_0 \cdot j_{RTD} \cdot \Delta f} \cdot \left(\frac{\partial j_{RTD}}{\partial V} \right)^2.$$

γ_{RTD} ist ein Parameter der Doppelbarrierenstruktur, j_{RTD} die Stromdichte der RTD und Δf die Bandbreite. Abbildung 1 zeigt die simulierte Stromdichte-Spannungs-Kennlinie ($j(V)$ -Kennlinie) einer RTD[7], dargestellt als schwarze Kugeln und die korrespondierende Diodenfläche (rote Kreuze), bei der gerade keine Einzelphotonenereignisse mehr detektiert werden können. Dabei wurde eine typische Bandbreite von $\Delta f = 100$ MHz und eine experimentell ermittelte Resonanzstromdichte aus Arbeitspakete 5 - von $j_{res} = 38$ kA cm⁻² gewählt. Die maximale Diodenfläche wird kurz vor der Resonanz bei einer

Spannung von ca. $V \approx 1.0 \text{ V}$ erreicht und gibt den idealen Arbeitspunkt zum Detektieren von einzelnen Photonen an, da hier das Einzelphotonensignal-Stromrausch-Verhältnis maximal wird. Bei den gewählten Parametern muss die Diodenfläche A_{RTD} kleiner als $5 \mu\text{m}^2$ sein. Im Bereich negativ differentiellen Widerstands (NDC) wäre eine deutlich erhöhte Diodenfläche von bis zu $54 \mu\text{m}^2$ möglich. Allerdings werden hierbei Stromkorrelationseffekte nicht berücksichtigt. Die Ergebnisse wurden in [6] veröffentlicht.

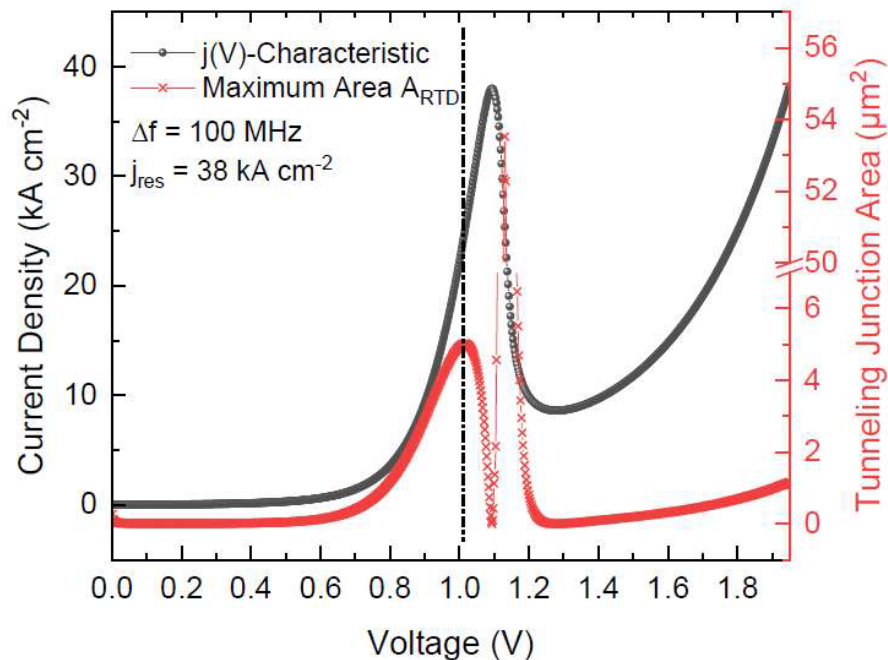


Abbildung 1: Simulierte $j(V)$ -Kennlinie einer RTD (schwarze Kugeln) und die korrespondierende maximale Diodenfläche, bei der Einzelphotonen-Ereignisse detektiert werden können (rote Kreuze). Für die Berechnung wurden eine Bandbreite von $\Delta f = 100 \text{ MHz}$, sowie eine Resonanzstromdichte von $j_{\text{RTD}} = 38 \text{ kA cm}^{-2}$ angenommen. Die schwarz-gestrichelte Linie markiert den optimalen Arbeitspunkt. Um Einzelphotonen-Ereignisse auflösen zu können, darf die Diodenfläche nicht mehr als $A_{\text{RTD}} < 5 \mu\text{m}^2$ betragen.

AP 1.2: Verbesserte Detektionseffizienzen:

Die geringe Quanteneffizienz ist eine der stärksten Limitierungen von RTD-Einzelphotonendetektoren. Eine Ursache ist der stark abnehmende Absorptionskoeffizient von GaAs für Wellenlängen unterhalb der Bandlückenenergie. Abbildung 2 zeigt die maximale Absorption in Volumenmaterial als Funktion der Absorberlänge für verschiedene Absorptionskoeffizienten. Damit eine Absorption von 20% in GaAs für eine Wellenlänge von $\lambda = 920 \text{ nm}$ erzielt wird, muss die Schichtdicke mehr als $100 \mu\text{m}$ betragen (schwarze Linie). Durch Inkorporation von Indium oder Antimon kann eine Reduktion der Bandlückenenergie erzielt und damit der Absorptionskoeffizient gesteigert werden. Die ternären Materialien $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ bzw. $\text{GaAs}_{1-x}\text{Sb}_x$ besitzen eine größere Gitterkonstante als GaAs. Daher können nur relative dünne Schichten gewachsen werden. Dies limitiert die Absorption auf den grau schattierten Bereich in Abbildung 2 von maximal 10%.

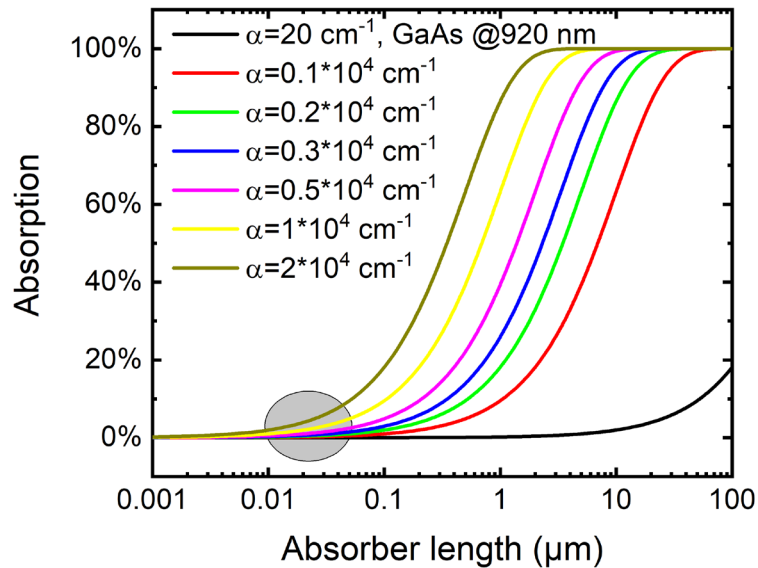


Abbildung 2: Absorption im Volumenhalbleiter als Funktion der Absorberlänge für steigende Absorptionskoeffizienten von $\alpha = 0.1 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-1}$ bis $\alpha = 2 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-1}$. Zusätzlich ist die Absorption in GaAs für Licht der Wellenlänge $\lambda = 920 \text{ nm}$ eingezeichnet. Der grau schattierte Bereich markiert typische Absorberlänge für verspannte Halbleiter.

Um höhere Detektionseffizienzen zu erzielen, muss entweder die Absorberlänge oder die Interaktion der Photonen mit dem aktiven Halbleitermaterial erhöht werden. Im Projekt haben wir hierzu beide Ansätze konzipiert.

Der erste Ansatz zielt darauf ab, mittels Integration in Wellenleiterstruktur die Wegstrecke der injizierten Photonen in der Absorptionsschicht zu erhöhen. Propagationsrichtung der Photonen und elektrischer Stromfluss sind dabei orthogonal zueinander. Somit können die geringen Querschnittsflächen von wenigen μm^2 zur Einzelphotonendetektion beibehalten werden, während die Photonen mehrere μm in der Absorptionsschicht des Wellenleiters zurücklegen. Dadurch ist das Signal-Rausch-Verhältnis erhöht.

In Abbildung 3(a) ist die Wellenleitergeometrie dargestellt. Die Propagation des einfallenden Lichtes ist senkrecht zum Stromfluss und wurde mittels Finiter-Differenzen-Methode (FDTD) simuliert Abbildung 3 (b). Die Absorption als Funktion der im Detektor zurückgelegten Strecke ist in Abbildung 3(c) dargestellt. Die Simulation wurde für einen 300 nm breiten Wellenleiter mit einer 25 nm Absorptionsschicht durchgeführt. Die 90%-Schwelle wird bereits mit einer Steglänge von 6 μm erreicht. Dies entspricht einer Detektorfläche von $A = 1.8 \mu\text{m}^2$ und ist damit deutlich kleiner als die kritische Querschnittsfläche für Einzelphotonendetektion. Die Ergebnisse wurden in Referenz [6] veröffentlicht.

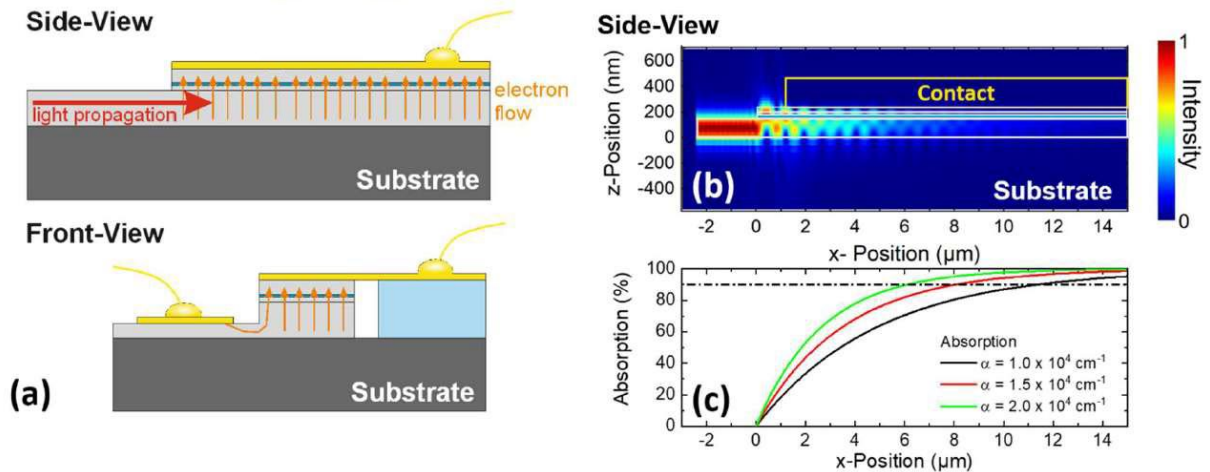


Abbildung 3: RTD-Photodetektor in Wellenleiter-Struktur. (a) Seiten- und Vorderansicht des Bauteils. Die Propagation der Photonen ist schematisch angedeutet und ist senkrecht zum elektrischen Stromfluss. Die Länge der Absorptionsschicht kann somit auf mehrere μm erhöht werden, während der Querschnitt die maximale Bauteilgeometrie nicht überschreitet. Die Verwendung von Wellenleitern kann das Signal-Rausch-Verhältnis verbessern. (b) FDTD-Simulation der Lichtfeld-Intensitätsverteilung für einfallendes Licht der Wellenlänge 940 nm. Der Wellenleiter startet ab $x=0 \mu\text{m}$. Die verwendete Absorptionsschicht beträgt 25 nm. (c) Absorptionsprofil entlang des Wellenleiters für drei unterschiedliche Absorptionskoeffizienten. Die gestrichelte Linie markiert die 90%-Schwelle. Diese kann bereits mit $6 \mu\text{m}$ erreicht werden. Damit ergibt sich eine Detektorfläche $A=1.8 \mu\text{m}^2$, diese liegt deutlich unter der maximalen Detektorfläche.

Der zweite im Projekt verfolgte Ansatz beruht auf der Integration einer RTD in einem optischen Resonator. Dies kann beispielsweise epitaktisch durch das Wachstum sogenannter Bragg-Spiegel (DBR) aus alternierenden AlAs/GaAs Schichten mit der Dicke $\lambda/4$ erreicht werden. Diese schließen eine Kavität der Dicke $d_{\text{Kav}} = (n + 1) \cdot \lambda/2$ ein. In Resonanz kommt es durch Interferenz zur Erhöhung des Lichtfeldes innerhalb der Kavität bei $(n + 1/2) \cdot \lambda/2$. Durch Platzierung der Absorptionsschicht im Maximum des optischen Feldes wird die Interaktion gesteigert. Durch geeignete Wahl der Anzahl der Spiegel wird die Absorption für eine Wellenlänge auf über 90% gesteigert (siehe Abbildung 4).

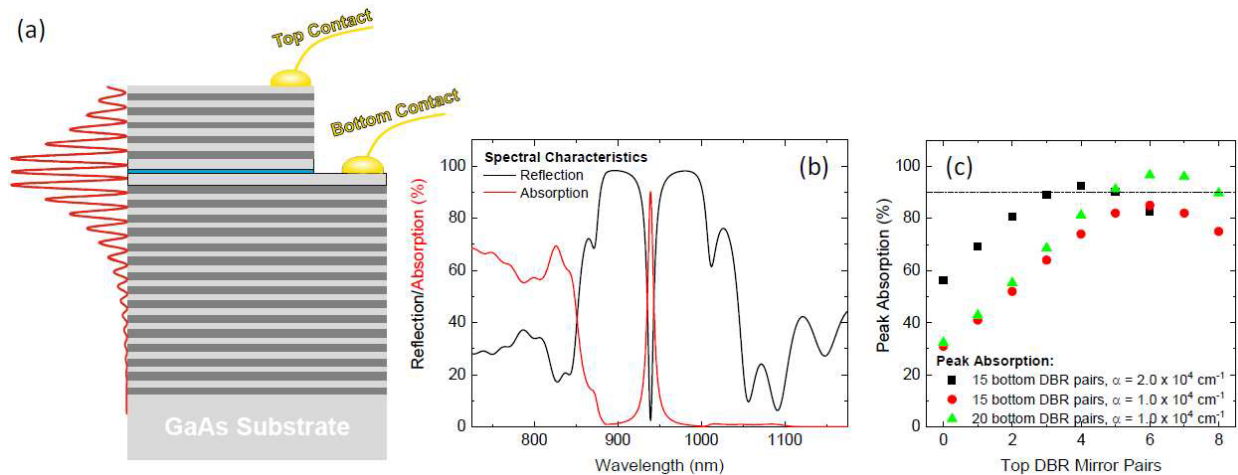


Abbildung 4: RTD-Einzelphotonendetektor in optischem Resonator. (a) Exemplarischer Schichtstrukturaufbau. Die RTD ist in den optischen Resonator basierend aus alternierenden AlAs/GaAs $\lambda/4$ DBR Spiegelpaaren integriert. Dunkelgraue Bereiche repräsentieren AlAs. Der Resonator (Kavität) ist auf eine Resonanzwellenlänge von $\lambda = 940 \text{ nm}$ designt. Die Breite der Kavität beträgt λ , was ausreichend Platz für die RTD mit Absorptions- und Kontaktschichten bietet. Um optimale Detektoreffizienz zu garantieren, ist die GaAsSb-Absorptionsschicht mit 25 nm Schichtdicke in das Intensitätsmaximum des Lichtfeldes platziert. (b) Mittels Transfer-Matrix-Methode (TMM) berechnetes Reflexionsspektrum (schwarze Linie) und Absorptionsspektrum (rote Linie) für senkrechten Photoneinfall. (c) Absorptionsmaximum gegenüber der Anzahl der oberen DBR Spiegelpaare für verschiedene Konfigurationen.

Im Vergleich zeigt sich, dass der erste Ansatz die Messung eines breiten Spektrums erlaubt, während der zweite eine Resonanzwellenlänge hat, die vorher durch die genaue Schichtstruktur festgelegt wird. Eine

kleine Variation der Wellenlänge kann hier über die Verkippung der Probe zum einfallenden Licht erzielt werden. Der Nachteil des ersten Ansatzes ist die Einkopplung des Lichtes in das Bauteil und ist aktuell noch technologisch limitiert. Für den Aufbau eines Labormusters haben wir uns deshalb für den Ansatz der RTD im Resonator entschieden.

AP 1.3: GaAsSb-Lochbarrieren:

Im Rahmen des Projektes sollen die Betriebstemperaturen der Photodetektoren über $T > 77\text{ K}$ gesteigert werden. In InAs Quantenpunkt-RTDs konnten bis jetzt einzelne Photonen bis $T = 77\text{ K}$ detektiert werden.[5] Für eine weitere Steigerung der Betriebstemperatur ist ein möglichst hoher Potentialeinschluss der Löcher ein entscheidender Faktor. Im Rahmen haben wir deshalb erstmalig RTD Einzelphotonendetektoren mit einem ternären GaAsSb-Quantenfilm – anstelle der Quantenpunkte – realisiert. In Abbildung 4 ist der Einschluss der Ladungsträger im Valenzband in Abhängigkeit des Sb-Anteils dargestellt. Mit steigendem Sb-Einbau steigt der Einschluss der Ladungsträger. Zudem wurde der theoretische Valenzband-Offset von verspannten InAs-Schichten auf GaAs (gestrichelte Linien) eingezeichnet. Der Offset beträgt 0.38 eV . [8] Die Verschiebung für den Einschluss in InAs-QP mit 0.25 eV ist angedeutet.[9] In GaAsSb ist ab 14%-Sb der Einschluss größer als in InAs-QP und mit bereits 24% wird das theoretische Limit von InAs weit überschritten. Somit kann bereits mit einem geringen Sb-Anteil ein deutlich erhöhtes Einschlusspotential erreicht werden.

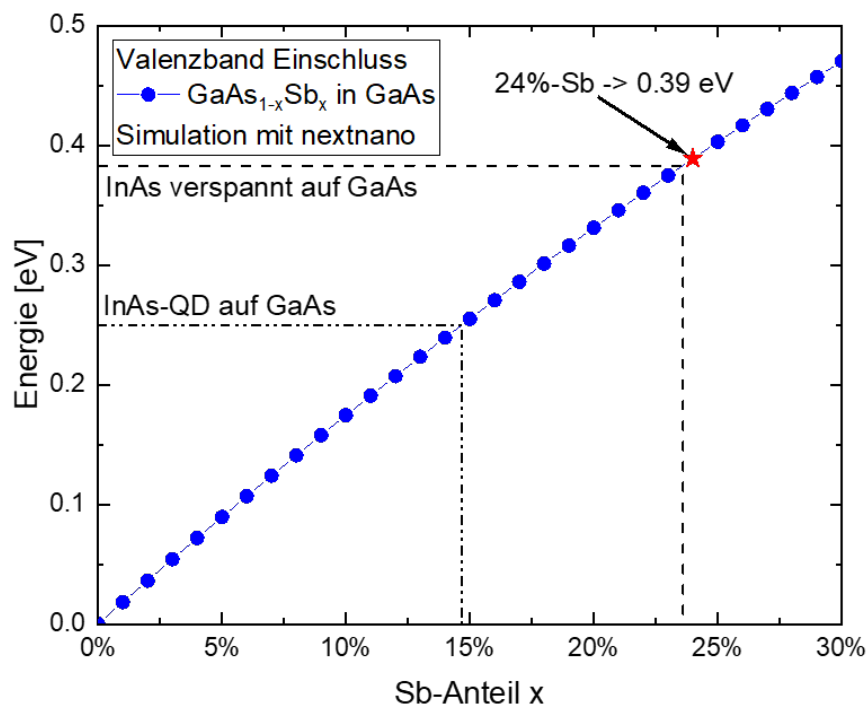


Abbildung 5: Vergleich des Locheinschlusses in GaAsSb-Schichten und InAs-Quantenpunkten. Das Maximum von InAs auf GaAs (gestrichelte Linien) und InAs-Quantenpunkten sind gekennzeichnet.[8],[9] Der Einschluss mit GaAsSb wurde mit dem Simulationstool nextnano bestimmt.

AP 2|3: Halbleiterwachstum mittels MBE & Grundcharakterisierung der Halbleiterepitaxie

In AP 2 werden die Halbleiterschichten nach Designvorgaben mittels Molekularstrahlepitaxie gewachsen. Diese werden sodann in AP 3 auf ihre physikalischen Eigenschaften grundcharakterisiert. Alle Informationen über die Ergebnisse aus AP 2 werden deshalb in AP 3 erarbeitet, sodass wir in diesem Bericht beide Arbeitspunkte zusammengefasst haben.

AP 2 | 3.1: Optimierung des Wachstums der GaAsSb-Absorptionsschicht

Für einen Photodetektor ist es notwendig, das einfallende optische Signal in ein elektrisches umzuwandeln. Das geschieht in der Regel durch Absorption eines Photons unter Generation eines Elektron-Loch-Paares. Dazu ist es notwendig, dass die direkte Bandlückenenergie des verwendeten Halbleitermaterials geringer ist als die Energie des einfallenden Photons. Für die optisch aktive Schicht (Absorptionsschicht) in den RTD-Einzelphotonendetektoren benötigen wir ein Material, das gegenüber GaAs eine reduzierte Bandlückenenergie aufweist. Um Kompatibilität zur den am Lehrstuhl für Technische Physik vorhandenen Einzelphotonenquellen (Emissionsfenster $880 \text{ nm} \leq \lambda \leq 1.0 \text{ }\mu\text{m}$) zu garantieren, bedeutet das eine Bandlückenenergie von $\lambda \leq 1.24 \text{ eV}$. Zudem muss diese bei kryogenen Temperaturen erreicht werden.

Neben der Bandlückenenergie-Bedingung, muss in RTD-Einzelphotonen ein Einfangen optisch erzeugter Minoritätsladungsträger (typischerweise Löcher) an der Resonanztunnelstruktur erfolgen. Hierzu bedarf es eines Einschlusspotentials im Valenzband. Um den normalen elektrischen Transport nicht zu beeinträchtigen, sollte das Leitungsband möglichst wenig gegenüber GaAs beeinflusst sein. Diese Eigenschaften vereint der ternäre Komposit-Halbleiter GaAsSb, der jedoch nur pseudomorph und verspannt auf GaAs gewachsen werden kann. Dies begrenzt die maximal erzielbaren Schichtdicken stark; auf nur wenige Nanometer bis wenige 10 nm. Um dennoch Schichtdicken bis zu $d \leq 30 \text{ nm}$ erzielen zu können, ist daher ein Halbleiterwachstum unter idealen Bedingungen zwingend erforderlich. Ein besonders kritischer Faktor ist dabei die Einstellung der Substrattemperatur. Ausgehend von der idealen Substrattemperatur kann dann über das Flussverhältnis zwischen As- und Sb-Cracker-Zellen der Sb-Gehalt eingestellt werden. Der genaue Sb-Gehalt lässt sich aus dem HR-XRD Spektrum (HR-XRD: hochaufgelöste Röntgenbeugung, siehe Abbildung 6 (a)) bestimmen. Die Tieftemperatur Bandlückenenergie wird durch Photolumineszenz (PL)-Messungen bei $T = 10 \text{ K}$ bestimmt, siehe Abbildung 6 (b). Innerhalb des Projektes konnten wir dabei die optimalen Wachstumsparameter für GaAsSb bestimmen, die es erlauben, einen optischen Bereich bis hin zu 1050 nm abzudecken (siehe Abbildung 6 (c)).

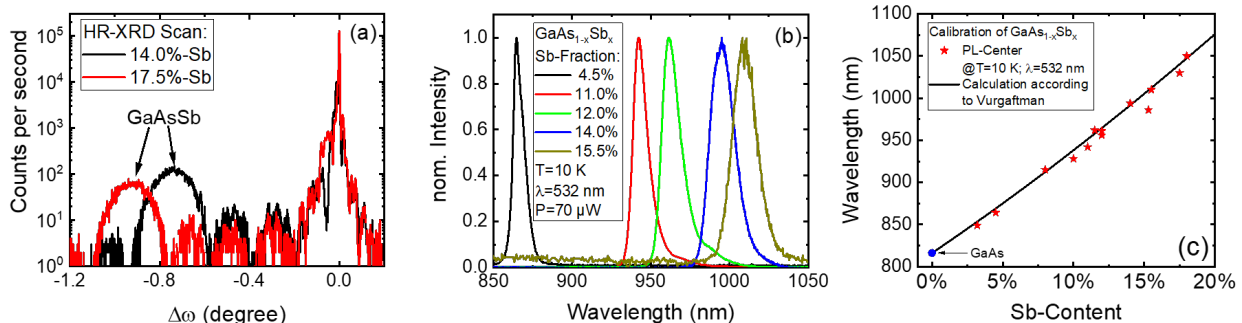


Abbildung 6: Bestimmung des Stoffmengenanteils mittels HR-XRD und der Bandlückenenergie durch Tieftemperatur Photolumineszenz (PL)-Spektroskopie. (a) HR-XRD-Spektren für unterschiedliche Sb-Konzentrationen. Mit zunehmender Antimon-Inkorporation werden die Schichten zunehmend Druckverspannt, daraus resultiert eine Verschiebung des Winkels zu kleineren Winkeln. (b) Normierte PL-Spektren für unterschiedliche Sb-Konzentrationen. (c) PL-Emissionsmaximum als Funktion der Sb-Konzentration (rote Sterne) und der theoretische Verlauf nach Referenz [10]. Es zeigt sich eine gute Übereinstimmung der Messwerte mit dem theoretischen Verlauf.

AP 2 | 3.2: Wachstums und Optimierung von QP-RTD Halbleiterstrukturen

Im Projekt wurden zudem Quantenpunkt (QP-) RTDs hergestellt und untersucht. Diese eignen sich besonders gut für einen Vergleich zum Stand der Technik. Außerdem eignen sie sich wegen ihrer charakteristischen Emission hervorragend zur Bestimmung der Ladungsträgedynamiken im Halbleiter.

Für Einzelphotonendetektoren mit InAs-Quantenpunkten sind die verschiedenen Wachstumsfenster der Doppelbarrierenstruktur und Quantenpunkte zu beachten. Quantenpunkte werden bei deutlich geringeren Temperaturen gewachsen, da die Desorption von Indium die Wachstumsrate stark reduzieren würde. Das Wachstumsfenster von GaAs ist deutlich größer und überlagert sich somit mit dem von InAs. Allerdings sinkt die optische Qualität des Quantenfilms in der DBS bei einer Reduktion der Wachstumstemperatur.[11] In Abbildung 7 ist bereits ein deutlicher Unterschied der

Quantenfilmemission bei ca. 800 nm zu beobachten. Das Wachstum der DBS bei höheren Temperaturen erfordert allerdings eine Wachstumspause nach dieser. In dieser Zeit werden Verunreinigungen an der Oberfläche der Probe abgeschieden, diese könnten auch die elektronische Qualität der Struktur beeinträchtigen.

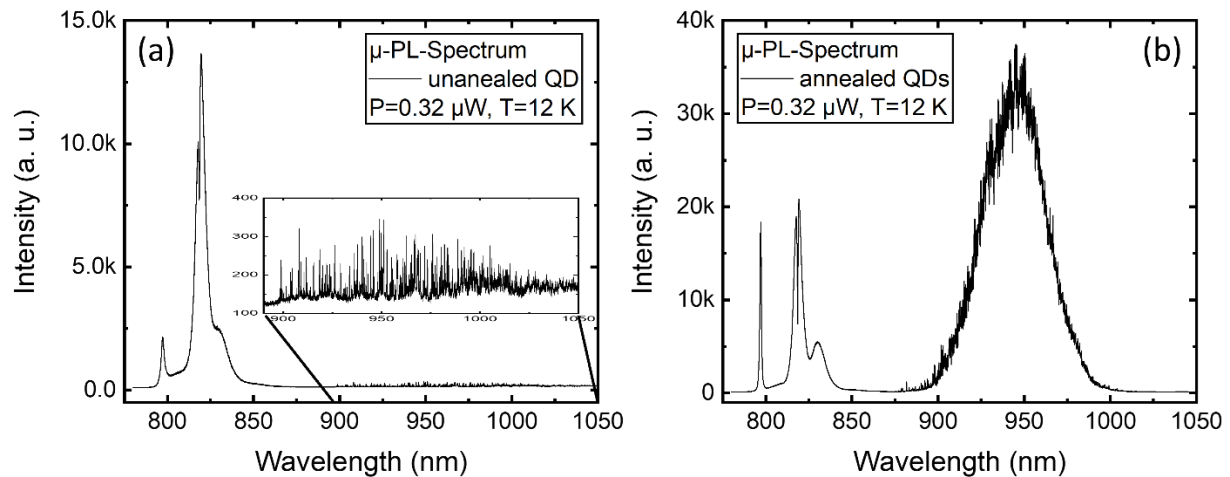


Abbildung 7: Grundlagen-Charakterisierung Halbleiterepitaxie zwei Quantenpunkt-RTDs. Mikro-PL-Spektren von QP-RTDs ohne ausheilen in (a) und mit einer 3 nm dicken GaAs-Bedeckung und ausheilen in (b). Beide Spektren zeigen die Quantenfilmemission der Doppelbarrierenstruktur bei knapp unter 800 nm, das GaAs-Exziton um 817 nm, eine kleine Schulter neben diesem von der Kohlenstoff-Hintergrunddotierung und die Charakteristischen Quantenpunktlinien. Das Ensemble liegt bei nicht ausgeheilten Quantenpunkten bei ca. 1300 nm, daher sind hier nur einzelne Linien kleinerer Quantenpunkte zu sehen. Das Ausheilen schiebt das Ensemble je nach GaAs Abdeckung zu kleineren Wellenlängen, hier 950 nm.

AP 2 | 3.3: RTDs mit GaAsSb-Absorptionsschicht im optischen DBR-Resonator

Im Rahmen des Projektes wurden erstmalig RTDs mit einer Antimonid haltigen Absorptionsschicht gewachsen und diese in eine optische Kavität integriert.

Abbildung 8 (a) zeigt eine Rasterelektronenmikroskop Aufnahme des Querschnitts des Entwurfs aus AP 1. Die alternierenden hellen (GaAs) und dunklen (AlAs) Schichten zeigen den oberen und unteren DBR. Die Position der RTD mit Absorptionsschicht in der λ -Kavität ist angedeutet. Das simulierte Leitungs- und Valenzbandprofil des RTD-Photodetektors sind in Abbildung 8 (b) dargestellt.

Die optischen Eigenschaften wurden mittels Fourier-Transformation Infrarotspektroskopie gemessen. Abbildung 8 (c) zeigt das Reflexionsspektrum des optischen Resonators mit RTD. Ein sogenanntes Stopband bildet sich von 875 nm bis 1000 nm aus mit einer Resonanzwellenlänge von $\lambda_{Res} = 950 \text{ nm}$. Bei dieser Wellenlänge wird die Interaktion von Photonen mit der Absorptionsschicht verstärkt. Dies ist zwingend für eine Steigerung der Effizienz notwendig.

Technologiebedingt sinkt die Wachstumsrate vom Zentrum des Wafers zum Rand leicht. Dies führt zu einer kürzeren Kavität und somit einer Blauverschiebung der Resonanzwellenlänge, siehe Abbildung 8 (d). Eine gewachsene Struktur deckt somit einen Bereich von ca. 30 nm ab. Damit kann die Resonanzwellenlänge des Prozessstückes passend zur erforderlichen Wellenlänge gewählt werden.

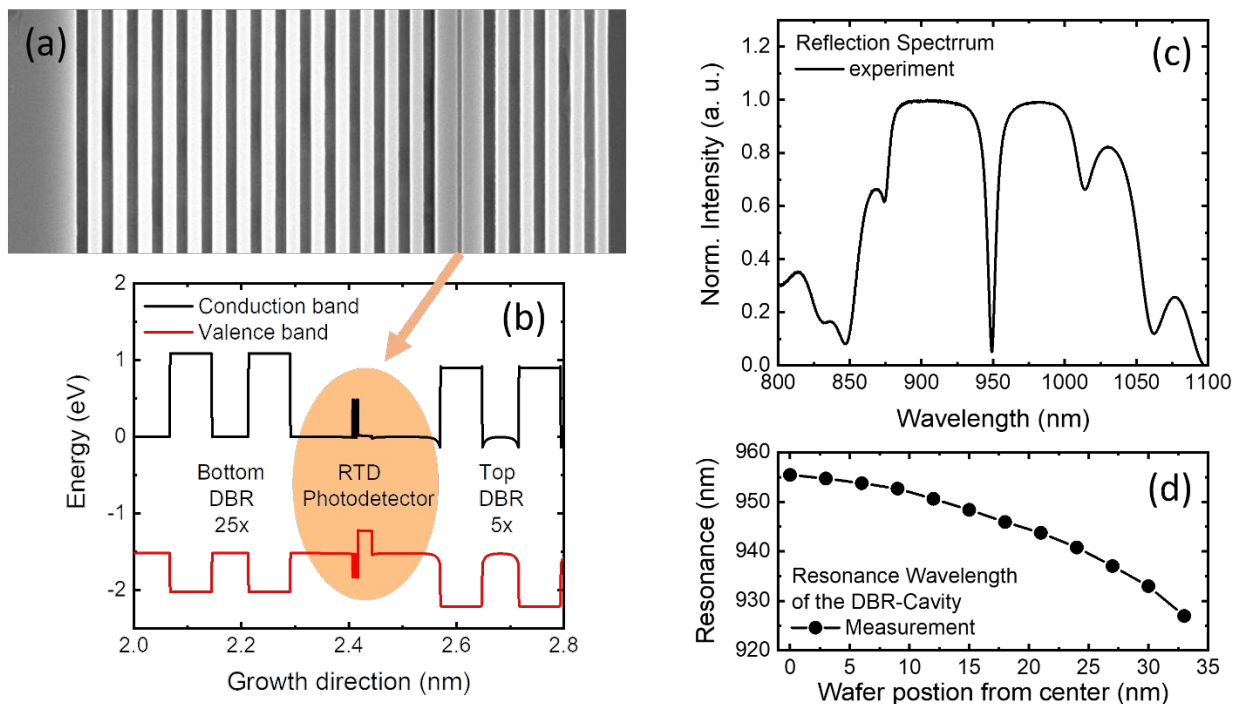


Abbildung 8: (a) Schichtstruktur des RTD-Photodetektors mit GaAsSb-Absorptionsschicht im Resonator nach Designvorgabe aus AP 1. (b) Simulation von Leistungs- und Valenzbandprofil innerhalb des optischen Resonators. (c) Optische Eigenschaft des DBR-Resonators gegen die Wellenlänge unter einem Winkel von 30 Grad zur Oberflächennormalen. Es bildet sich ein deutlich ausgeprägtes Minimum bei der Resonanzwellenlänge von 950 nm aus. (d) Verschiebung der Resonanzwellenlänge durch den Schichtdickengradienten über den Wafer.

AP 4: Halbleiter-Lithografie und Bauteilfabrikation

Zur optoelektronischen Charakterisierung wurden Mesen in die gewachsene Struktur geätzt und diese mit Ringkontakten für die elektrische Kontaktierung und den optischen Zugang versehen. Für ein gutes Signal-zu-Rausch Verhältnis sind Mesen mit Durchmessern weniger als $5\ \mu\text{m}$ (siehe AP 1.1) von besonderem Interesse. Bei kleinen Dioden ist das Verhältnis der Oberfläche zum Querschnitt größer, wodurch etwaige Leckströme dominanter sind. Deren Reduktion kann durch eine geeignete Passivierung erzielt werden. Verwendet wurde eine Lösung aus 5 ml Ammoniumsulfid (20% in Wasser) und 1 ml Salzsäure (37%-Lösung) in 500 ml Wasser bei einer Temperatur von $50\ ^\circ\text{C}$. In Abbildung 9 ist der Einfluss der Passivierung für verschiedene Prozesszeiten dargestellt. Hierfür wurden zuerst Breitstreifen auf undotiertes GaAs prozessiert und die Oberflächen zwischen diesen passiviert. Bereits 5 Minuten erzielen eine deutliche Reduzierung. Für längere Zeiten nimmt der Leckstrom wieder zu, siehe Abbildung 9 (a). Den genauen Beitrag von Oberflächenströmen kann bei Mesen deutlich besser beobachtet werden. Daher erfolgte eine feinere Zeitauflösung für eine epitaktisch, gewachsene n-i-n Struktur mit verschiedenen Bauteildurchmessern. Für 450 s ist kein Einfluss des Durchmessers auf die Leitfähigkeit pro Fläche zu beobachten, siehe Abbildung 9 (b). Damit ist kein nennenswerter Beitrag von Leckströmen, zu dem Strom durch das fertige Bauteil, zu beobachten. Das Ergebnis eines vollständigen Prozesses ist in den mikroskopischen Bildern in Abbildung 10 gezeigt. Aus der ersten Prozessserie konnte die Erkenntnis gewonnen werden, dass eine λ -Kavität sich nicht für einen Intrakavitätskontakt eignet. Im weiteren Verlauf des Projektes wurde die Heterostruktur deshalb auf eine 2λ -Kavität angepasst.

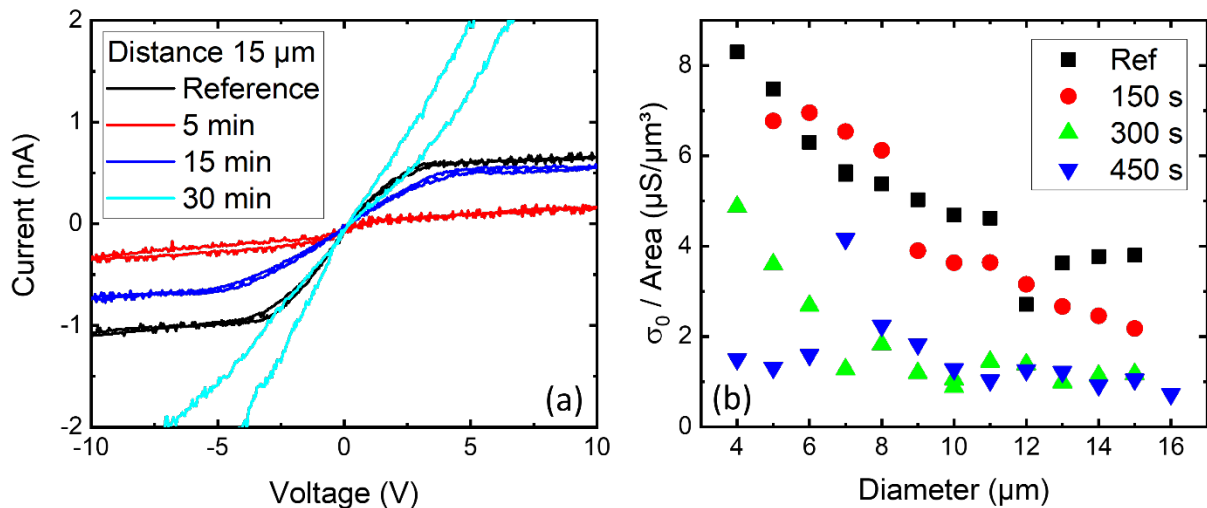


Abbildung 9: Passivierung von GaAs mit wässriger Lösung aus Ammoniumsulfid und Salzsäure. (a) Strom-Spannungs-Charakteristik für Breitstreifen auf undotierten GaAs. (b) Leitfähigkeit pro Fläche als Funktion des Mesendurchmessers. Für eine Passivierungszeit von 450 Sekunden ist kein nennenswerter Einfluss der Oberflächen Leitfähigkeit zu beobachten.

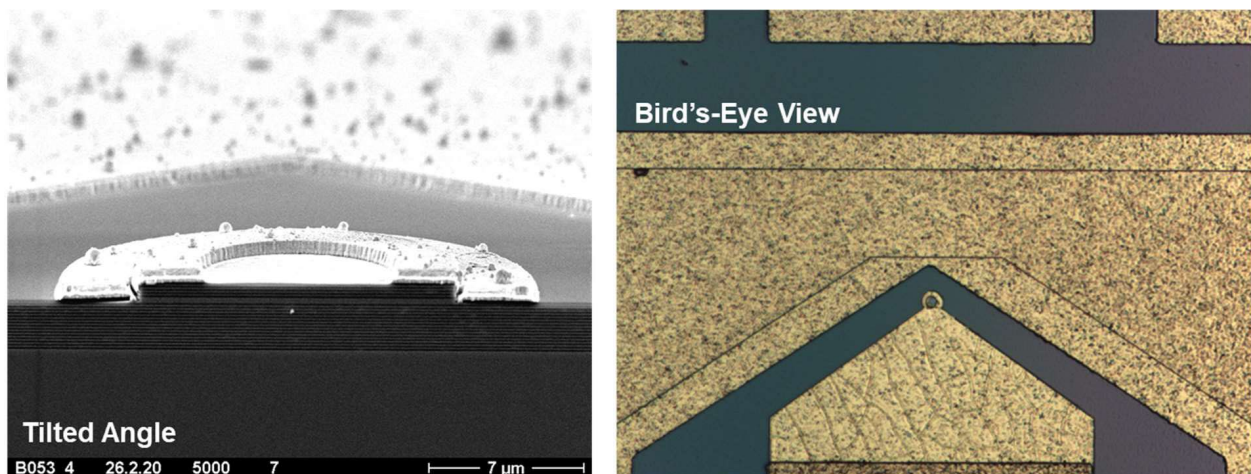


Abbildung 10: Fertig prozessierte und in einen DBR-Resonator integrierte RTD mit GaAsSb-Absorptionsschicht. Links: Rasterelektronenmikroskop Aufnahme unter verkippten Winkel zeigt den Querschnitt durch den Halbleiter mit Kavität, Mesa-Struktur, Ringkontakt und Intrakavitätskontakt (im Hintergrund). Rechts: Optische Mikroskopie aus der Vogelperspektive der verschiedenen Kontakte.

AP 5: Aufbau & Ausführen Optoelektronischer Transportspektroskopie

In diesem Arbeitspaket wurden die optoelektronischen Eigenschaften von RTD-Photodetektoren mit Quantenpunkten und Quantenfilmen untersucht. Zu hohe Betriebsspannung führen in diesen zu Stoßionisation. Die so generierten Minoritätsladungsträger akkumulieren an der DBS und führen zu einer Reduktion der Sensitivität bzw. Sättigung des Bauteils. Des Weiteren konnte die Tunnelstruktur mit Absorptionsschicht in einen optischen Resonator integriert werden bei nur geringem Einfluss auf die elektronischen Transporteigenschaften. Das bessere Einschlusspotential für Minoritätsladungsträger in GaAs_{1-x}Sb_x-Quantenfilme im Vergleich zu In_xGa_{1-x}As-Quantenfilme nach AP 1.3 wurde gezeigt. Mit den bisherigen Ergebnissen aus AP4 & 5 wird im Folgenden der Einfluss der Wachstumstemperatur auf die optoelektronischen Eigenschaften erläutert.

Ein kritischer Parameter der ternären Materialien InGaAs und GaAsSb ist deren Wachstumstemperatur, da sowohl die Integration von Indium bzw. Antimon als auch die optischen Eigenschaften von dieser abhängen. Das Wachstumsfenster dieser liegt tendenziell bei niedrigeren Temperaturen,[12][13]

während die elektrischen und optischen Eigenschaften von GaAs-Quantenfilmen vergleichsweise bei höheren Temperaturen eine deutlich bessere Qualität aufweisen.[11]

In Abbildung 11 (a) sind die PL-Spektren von zwei Quantenpunkt-RTDs für zwei verschiedene Wachstumstemperaturen dargestellt (Struktur nach Referenz [14]). Da die QPs bei einer Temperatur von $T = 490\text{ °C}$ gewachsen werden, wurde in Probe 1 (schwarze Linie) die DBS bei $T = 540\text{ °C}$ gewachsen, mit 2 nm GaAs abgedeckt und dann mit einer Wachstumspause die Substrattemperatur auf $T = 490\text{ °C}$ eingestellt. In Probe 2 (rote Linie) wurde bereits vor der DBS die Substrattemperatur reduziert, damit keine Wachstumspause nahe der DBS benötigt wird. Die Qualität des eingeschlossenen Quantenfilms kann besonders gut an seinem optischen Übergang bei knapp unter 800 nm beobachtet werden. Die Intensität der Probe 1 ist knapp das Neunfache der Probe 2. Dies spiegelt sich auch in der Stromdichte-Spannungs-Charakteristik wider. Probe 1 zeigt drei ausgeprägte Resonanzen mit geringeren Einsatzspannungen und Untergrundströmen. Die dritte Resonanz der Probe 2 hat keinen NDC-Bereich, sondern nur noch ein Plateau.

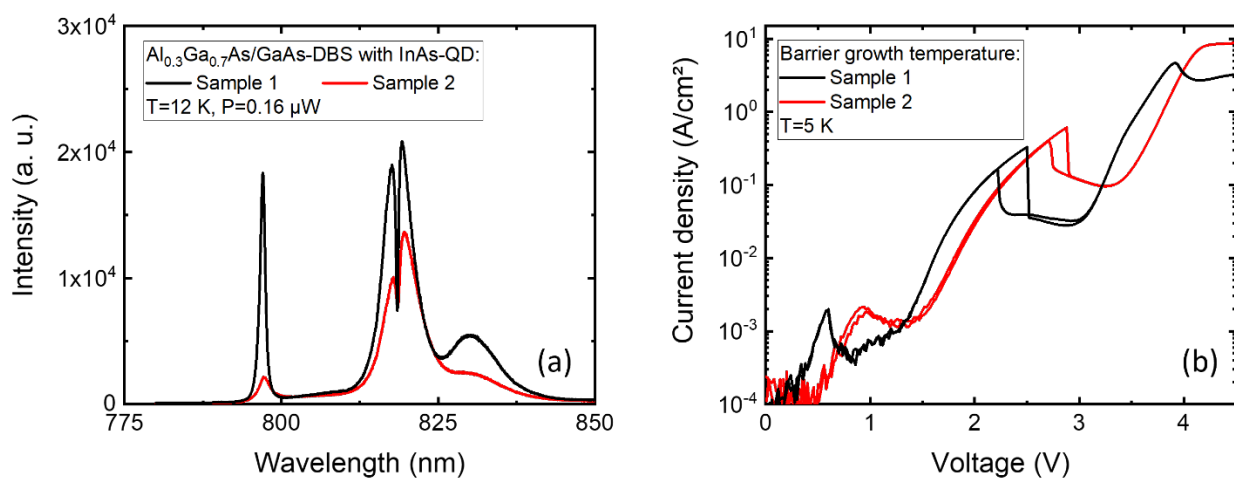


Abbildung 11: Einfluss der Wachstum Temperatur auf die Qualität der Doppelbarrierenstruktur für $T=540\text{ °C}$ (Probe 1, schwarze Linie) und $T=490\text{ °C}$ (Probe2, rote Linie). Die Photolumineszenz-Spektren sind in (a) dargestellt und die Stromdichte-Spannungs-Charakteristiken in (b). Für eine höhere Wachstumstemperatur nimmt die PL-Intensität beträchtlich zu. Das Verhalten spiegelt sich auch in der $j(V)$ -Charakteristik wider.

Im Folgenden werden die elektrooptischen Eigenschaften des RTD-Einzelphotonendetektors bei $T = 5\text{ K}$ betrachtet. Abbildung 12 zeigt die Dunkelstromkennlinie (schwarz) und die Kennlinie unter Beleuchtung mit der Leistung $P = 10\text{ nW}$, $P = 100\text{ nW}$ und $P = 1\text{ }\mu\text{W}$ in rot, blau bzw. pink. In Vorwärtsrichtung wird die Kennlinie unter Beleuchtung zu kleineren Spannungen verschoben und der Strom leicht erhöht. Die Spannungsverschiebung ist auf die Akkumulation von Minoritätsladungsträgern in den Quantenpunkten nahe der DBS zurückzuführen. Wird die RTD in Rückwärtsrichtung betrieben kann keine Verschiebung der Kennlinie unter Beleuchtung beobachtet werden.

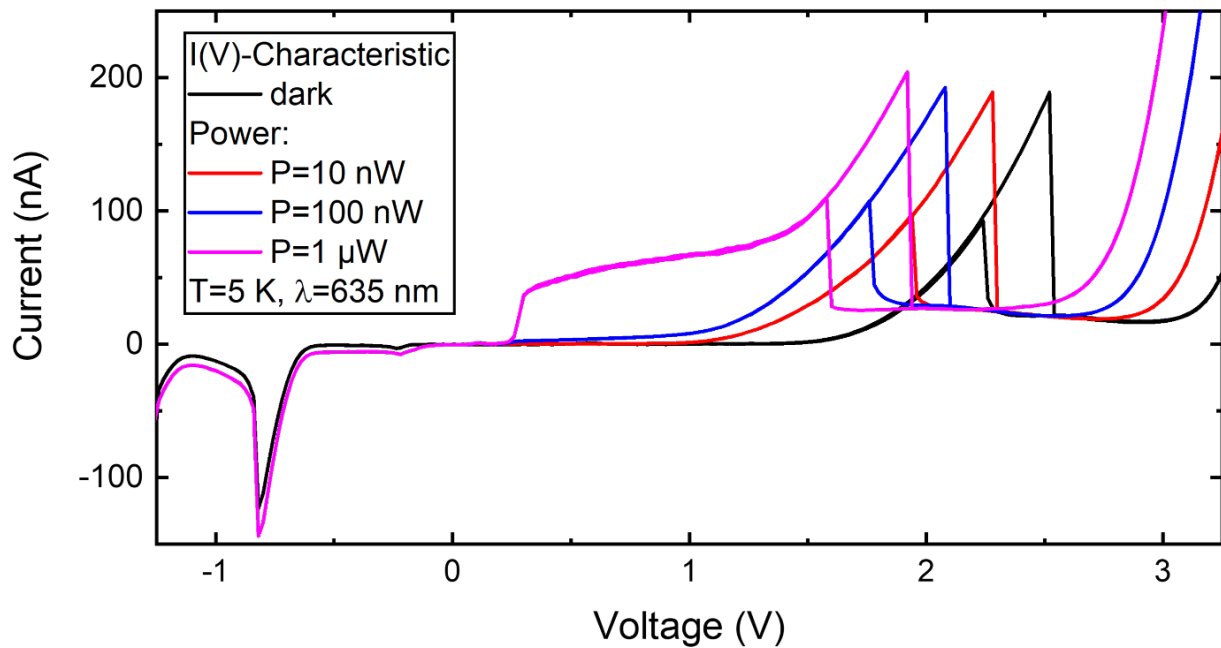


Abbildung 12: Strom-Spannungs-Charakteristik einer QP-RTD im Dunkeln (schwarze Linie) und unter den Beleuchtungsleistungen 10 nW, 100 nW und 1 μ W (rote, blau bzw. pinke Linie) für eine Diode mit dem Durchmesser $d = 8.5 \mu\text{m}$. In Vorwärtsrichtung wird die Kennlinie unter Beleuchtung schon für kleine Beleuchtungsleistungen stark verschoben. Bei Umkehrung der Polarität ist keine Spannungsverschiebung unter Beleuchtung zu beobachten. Die Spannungsverschiebung ist auf die Akkumulation von Minoritätsladungsträgern an der DBS.

AP 6: Demonstration Einzelphotonenauflösung

Nachdem angepassten Heterostrukturdesign der Doppelbarrierenstruktur, der Optimierung der Wachstumsparameter und der Passivierung der Oberfläche wurden sowohl InGaAs-Quantenpunkte als auch GaAsSb-Quantenfilme in RTD-Photodetektoren erfolgreich realisiert. Die Quantenpunktprobe dient dabei als Referenz des aktuellen Forschungsstandes.[14] Im Folgendem werden wir Einzelphotonendetektion mit einer RTD als Phototransistor zeigen.[15]

Die Heterostruktur des RTD-SPD besteht aus InGaAs-Quantenpunkten, die mittels Stranski-Krastanov Wachstum in einem Abstand von 4 nm der DBS, bestehend aus 10 nm dicken Barrieren und einem 10 nm Quantenfilm, gewachsen. Die hier untersuchte Diode hat einen Durchmesser von $d = 3.4 \mu\text{m}$. Die entsprechende $j(V)$ -Kennlinie ist in Abbildung 13 (a) dargestellt. Es können mehrere, ausgeprägte Resonanzen bei 0.5 V, 2.5 V und 4.0 V beobachtet werden. Unter Beleuchtung mit einer Laserleistung von unter $P < 100 \text{ fW}$ steigt der Photostrom stark an, siehe Abbildung 13 (b). Die hohe Fluktuation im Photostrom impliziert das Einfangen von Ladungsträgern nahe der DBS. Die Stufen in den Kennlinien zeigen die Einzelphoton-induzierten Events, angedeutet mit Pfeilen in Abbildung 13 (b). Basierend auf dem theoretischen Modells, das im Rahmen dieses Projektes entwickelt wurde [6], und der gemessenen Stromdichte-Spannungs-Charakteristik kann die zu erwartende Stufenhöhen eines einzelnen Events berechnet werden, siehe Abbildung 13 (c). Die experimentellen Ergebnisse der Stufenhöhe für verschiedene Betriebsspannung (rote Kreuze) zeigen eine sehr gute Übereinstimmung mit der Theorie (siehe AP1). Die Ergebnisse sind in Referenz [16] veröffentlicht.

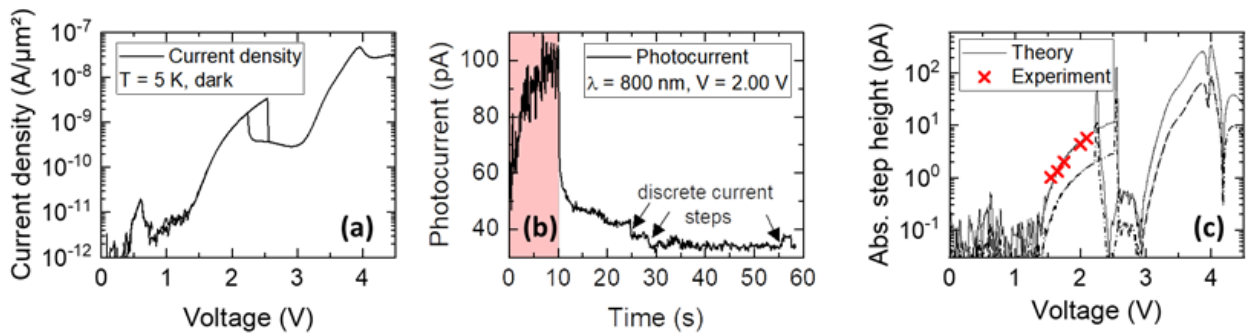


Abbildung 13: (a) Stromdichte-Spannungs-Charakteristik eines RTD-Einzelphotonendetektors mit 10 nm breiten $Al_{0.3}Ga_{0.7}As$ -Barrieren, die einen 10 nm GaAs-Quantenfilm einschließen. Drei Resonanzen können beobachtet werden. (b) Photostrom als Funktion der Zeit bei einer Arbeitsspannung von $V = 2.00$ V. Die Dauer der Beleuchtung mit einer Leistung von $P = 100$ fW ist rot hinterlegt. (c) Theoretischer und experimenteller Bestimmung der Stromstufenhöhe eines einzelnen Ladungsträgerereignis als Funktion der angelegten Spannung. Mit zunehmender Spannung steigt auch die Stufenhöhe an. [16]

Aktuell wurde die Detektion von einzelnen Photonen mit Resonanztunneldioden nur in Quantenpunkt-Proben demonstriert, was die Betriebstemperatur limitiert. Quantenpunkte werden zumeist mit der sogenannten Stranski-Krastanov-Methode gewachsen, bei dem sich diese selbstorganisierend durch die Verspannung und die Migration von Indium auf der Oberfläche bilden. Damit variiert sowohl ihre Dichte als auch das entscheidende Einschlusspotential über den Wafer stark. Alternativ könnten zwar vorpositionierte Quantenpunkte gewachsen werden, deren Materialqualität ist jedoch deutlich schlechter. Durch die Variation der QP-Dichte entstehen bereits zwei große Nachteile gegenüber Quantenfilmen. Zum einen schränkt dies die Reproduzierbarkeit des Bauteils ein und zum anderen können nicht alle Ladungsträger eingefangen werden. Letzteres ist durch das endliche Potentialfeld eines Punktes gegeben, dies nur von Ladungsträgern nahe dem QP gesehen werden. Wie bereits in AP 1.3 gezeigt wurde, bietet der ternäre Halbleiter GaAsSb ein tieferes, elektronisches Einschlusspotential im Valenzband im Vergleich zum Indium haltigen GaAs Halbleitersystem, während das Leitungsband nahezu unbeeinflusst bleibt, siehe AP 5.4. Im Projekt konnten wir erstmals diese Limitierung aufheben, und Einzelphotonendetektion mit ternären Quantenfilmen nachweisen.

Wir haben RTD-SPD mit einem 4 nm breiten GaAsSb-Quantenfilm anstelle der Quantenpunkte im Abstand von 2 nm zu der DBS gewachsen. Die Stromdichte-Spannungs-Charakteristik ist nahezu identisch zu der Quantenpunktprobe und zeigt ebenfalls 3 Resonanzen, siehe Abbildung 14 (a). Das PL-Spektrum in Abbildung 14 (b) zeigt vier ausgeprägte Peaks, die den diskreten Energielevel der DBS, Volumenmaterial GaAs und dem ternären GaAsSb-Quantenfilm zugeordnet werden können. Für die zeitaufgelöste Messung des Fotostromes wurde eine Spannung von $V = 2.00$ V angelegt und mit einer Leistung $P < 2$ fW beleuchtet, siehe Abbildung 14 (c). Analog zur Berechnung der Stufenhöhe der QP-RTD, kann diese für ein einzelnes Ladungsträgerereignis aus der Stromdichte $j(V=2.00$ V) bestimmt werden. Die Stromänderung wird demnach $\Delta I < 3$ pA sein. Der zeitaufgelöste Fotostrom zeigt Stromstufen der Einzelevents von $\Delta I \approx 2$ pA. Zu erkennen ist zudem, dass die Stufenhöhe auch unterschiedliche Größen besitzt, was ein erster Indikator für Photonenanzahl Auflösung ist. Aktuell konnte dies leider noch nicht abschließend eruiert werden. Die Ergebnisse sind in Referenz [16] veröffentlicht.

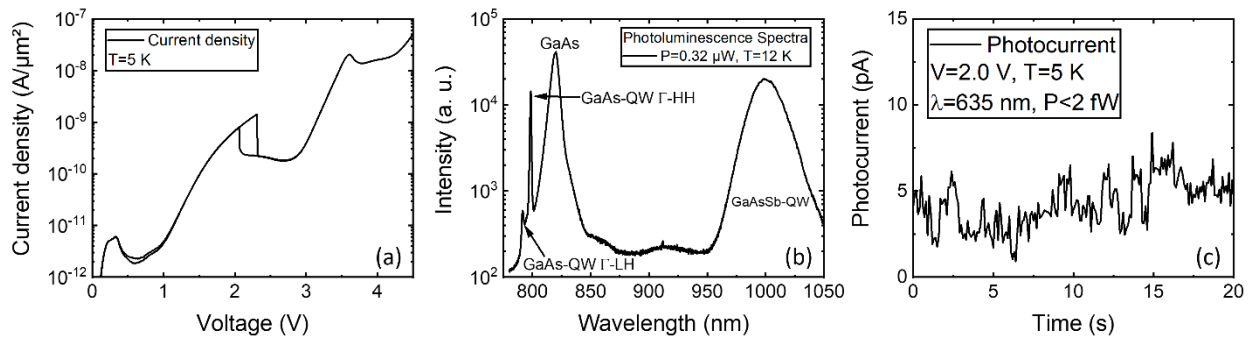


Abbildung 14: RTD-Einzelphotonendetektor mit ternären $\text{GaAs}_{0.83}\text{Sb}_{0.17}$ -Quantenfilm als Minoritätsladungsträgerfalle. (a) Photolumineszenz Spektrum mit 2 Peaks des DBS-QW, dem GaAs-Volumenmaterial und dem GaAsSb-QW. (b) Stromdichte-Spannungs-Charakteristik bei einer Temperatur $T = 5 \text{ K}$, ohne Beleuchtung. (c) Zeitlicher Verlauf des Photostrom bei einer Arbeitsspannung von $V = 2.0 \text{ V}$ und einer nominellen Beleuchtungsleistung von unter $P < 2 \text{ fW}$. Einzelne Stromstufen der Höhe $I_{\text{Step}} \approx 2 \text{ pA}$ können beobachtet werden, die durch Detektion von einzelnen Photonen entstehen. [16]

Literaturverzeichnis:

- [1] A. R. Dixon, J. F. Dynes, Z. L. Yuan, A. W. Sharpe, A. J. Bennett, and A. J. Shields, "Ultrashort dead time of photon-counting InGaAs avalanche photodiodes," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 94, no. 23, pp. 3–6, 2009.
- [2] X. Zhou *et al.*, "Arrays With High Uniformity," vol. 40, no. 10, pp. 1591–1594, 2019.
- [3] F. Marsili *et al.*, "Detecting single infrared photons with 93% system efficiency," *Nat. Photonics*, vol. 7, no. 3, pp. 210–214, 2013.
- [4] J. Huang *et al.*, "High speed superconducting nanowire single-photon detector with nine interleaved nanowires," *Supercond. Sci. Technol.*, vol. 31, no. 7, 2018.
- [5] Q. Weng *et al.*, "Quantum dot single-photon switches of resonant tunneling current for discriminating-photon-number detection," *Sci. Rep.*, vol. 5, pp. 2–6, 2015.
- [6] A. Pfenning, J. Jurkat, A. Naranjo, D. Köck, F. Hartmann, and S. Höfling, "Resonant tunneling diode photon number resolving single-photon detectors," vol. 1112808, no. September 2019, p. 10, 2019.
- [7] J. N. . H. J. D. L. S. and D. H. C. Schulman, "Physics-Based RTD Current-Voltage Equation." .
- [8] K. Kim, P. R. C. Kent, A. Zunger, and C. B. Geller, "Atomistic description of the electronic structure of (formula presented) alloys and InAs/GaAs superlattices," *Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys.*, vol. 66, no. 4, pp. 1–15, 2002.
- [9] K. Y. Ban, D. Kuciauskas, S. P. Bremner, and C. B. Honsberg, "Observation of band alignment transition in InAs/GaAsSb quantum dots by photoluminescence," *J. Appl. Phys.*, vol. 111, no. 10, pp. 1–5, 2012.
- [10] I. Vurgaftman, J. R. Meyer, and L. R. Ram-Mohan, "Band parameters for III-V compound semiconductors and their alloys," *J. Appl. Phys.*, vol. 89, no. 11, pp. 5815–5875, 2001.
- [11] A. Forster, J. Lange, D. Gerthsen, C. Dieker, and H. Luth, "The effect of growth temperature on AlAs/GaAs resonant tunnelling diodes," *J. Phys. D: Appl. Phys.*, vol. 27, no. 3, pp. 175–178, 1994.
- [12] P. Kratzer, E. Penev, and M. Scheffler, "Understanding the growth mechanisms of GaAs and InGaAs thin films by employing first-principles calculations," *Appl. Surf. Sci.*, vol. 216, no. 1-4 SPEC., pp. 436–446, 2003.
- [13] Y. S. Chiu, M. H. Ya, W. S. Su, and Y. F. Chen, "Properties of photoluminescence in type-II GaAsSb/GaAs multiple quantum wells," *J. Appl. Phys.*, vol. 92, no. 10, pp. 5810–5813, 2002.
- [14] J. C. Blakesley *et al.*, "Efficient single photon detection by quantum dot resonant tunneling diodes," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 94, no. 6, pp. 1–4, 2005.
- [15] A. Pfenning, F. Hartmann, and S. Höfling, "Photon counting with resonant tunneling diodes: overview and recent developments," vol. 1138606, no. May, p. 5, 2020.
- [16] A. Pfenning, S. Krüger, F. Jabeen, L. Worschech, F. Hartmann, and S. Höfling, "Single-Photon Counting with Semiconductor Resonant Tunneling Devices," manuscript submitted.

2. Vergleich des Stands des Vorhabens mit der ursprünglichen Arbeits-, Zeit- und Ausgabenplanung

Ziel des Projektes war es eine Resonanztunneldiode (RTD) für die Einzelphotonendetektion und Photonenanzahl Auflösung mit erhöhter Effizienz und Betriebstemperatur zu realisieren. Hierzu sollte eine RTD in Wellenleitergeometrie mit einer ternären GaAsSb-Absorptionsschicht verwendet werden. Hier wurde von dem ursprünglichen Designvorhaben abgewichen und die RTD mit Absorptionsschicht in einen optischen DBR Resonator integriert. Dieser ist zwar vom strukturellen Aufbau komplexer, kann jedoch in VCSEL-Geometrie prozessiert werden, bei gleichbleibender Steigerung der Effizienzen von $\eta \geq 90\%$. Das Design des optischen Resonators mit unterem und oberem Bragg-Spiegelpaaren ist in Abbildung 4 und die optischen Eigenschaften des fertigen Bauteils in Abbildung 8 (c) dargestellt. Das Reflexionsspektrum zeigt dabei eine Absorption von über 90% (Teilziel, TZ1 und Teilziel, TZ3).

Im weiteren Verlauf des Projektes konnte erstmalig die Detektion von einzelnen Photonen mit einem ternären GaAsSb-Quantenfilm demonstriert werden (Halbzeitmeilenstein). Dieser bietet mehrere Vorteile zu den in aktuellen RTD-Einzelphotonendetektoren verwendeten InAs-Quantenpunkten (QP). Zum einen ist das Einschusspotential für Minoritätsladungsträger deutlich höher, was Betriebstemperaturen über dem Stand der Technik ermöglicht ($T = 77\text{ K}$). Zudem ist die Zweidimensionalität des Quantenfilms zum Einfangen von Ladungsträgern besser geeignet als ein punktförmiges Potential. Dies reduziert den Verlust von Ladungsträgern in der Akkumulation an der Doppelbarrierenstruktur der RTD. Zu erkennen ist zudem, dass die Stufenhöhe auch unterschiedliche Größen besitzt, was ein erster Indikator für Photonenanzahl Auflösung ist. Aktuell konnte dies mit dem fertigen Demonstrator leider noch nicht abschließend eruiert werden (Teilziel, TZ2).

Projektziel	Monat	Beschreibung
Teilziel, TZ1	6	Bauelement nach Designvorhaben verfügbar. Resonanztunneldiode in Wellenleiterstruktur und Absorptionsschicht.
Halbzeitmeilenstein	12	Aufbau eines Labormusters und Demonstration von RTD-Einzelphotonendetektion bei kryogenen Temperaturen, $\eta \geq 10\%$.
Teilziel, TZ2	18	Photon-Anzahl aufgelöste Einzelphotonendetektion bei $T = 4.2\text{ K}$.
Teilziel, TZ3	24	Demonstrator zur RTD-Einzelphotonendetektion bei erhöhter Temperatur $T \geq 77\text{ K}$, mit Quanteneffizienzen $\eta \geq 90\%$.

Tabelle 1: Übersicht der im Projekt angestrebten Teilziele und des Halbzeitmeilensteins.

3. Änderungen zu den Aussichten für die Erreichung der Ziele

Im Rahmen des Projektes konnte erstmalig die Detektion von einzelnen Photonen mit Resonanten Tunneldioden ohne Verwendung von InAs-Quantenpunkten demonstriert werden. Diese wurden durch das ternäre Material GaAsSb ersetzt, was ein um über 150 meV besseres Einschusspotential gegenüber InAs-Quantenpunkten aufweist und damit Betriebstemperaturen über 77 K erlaubt. Zudem konnten diese erfolgreich in eine optische Kavität mit Effizienzen über 90 % integriert werden. Somit konnte die Zielsetzung der Steigerung der Effizienz und Betriebstemperatur in der Projektlaufzeit umgesetzt werden. Das Modell zur Bestimmung kritischer Parameter des Detektors konnte durch die Variation der Betriebsspannung sehr gut bestätigt werden. Aufgrund der Notwendigkeit unterschiedliche Technologien (DBR Kavität und den damit verbundenen Prozessoptimierungen) zu konzipieren, konnte das Benchmarking der Detektoren mit den Quellen jedoch nicht vollständig im Rahmen des Projektes durchgeführt werden.

4. Ergebnisse von dritter Seite Ergebnisse

Im Projektzeitraum sind keine Publikationen von dritter Seite sowie Patente mit RTD-Einzelphotonendetektoren bekannt geworden. Publikationen hinsichtlich Einzelphotonendetektoren unter Verwendung von Avalanche-Photodioden bzw. supraleitenden Nanodrähten sind erschienen und relevante Ergebnisse nachfolgend dargestellt.

Shandong University (China):

- Ultra-low dead time free-running InGaAsP single-photon detector with active quenching (Journal of Modern Optics, Vol. 67, No. 13, 1817591).

Dieser Artikel beschäftigt sich mit der Reduzierung der Totzeit in Avalanchen-Photodioden. Diese wurde auf 35 ns bei einer Detektoreffizienz von 10% und einer Temperatur von $T = 242\text{ K}$ reduziert. Da hier nur eine sehr geringe Effizienz erzielt werden kann beeinflusst dies den Verlauf des Projektes nicht.

National University of Science and Technology MSIS (Russland):

- A low-noise single-photon detector for long-distance free-space quantum communication (EPJ Quantum Technol., vol. 8, no. 1, 2021).

In diesem Artikel wird ein Einzelphotonendetektor basierend auf einer Silizium Avalanche-Photodiode vorgestellt. Es konnte eine Effizienz von 50% bei $T = -100\text{ °C}$ erzielt werden. Dies liegt jedoch weit unterhalb der anvisierten 90% dieses Projektes und hat daher keine Auswirkungen auf die Zielsetzung.

Delft University of Technology (Niederlande):

- Superconducting nanowire single-photon detectors: A perspective on evolution, state-of-the-art, future developments, and applications (Appl. Phys. Lett. 118, 190502).

In diesem Artikel wird eine aktuelle Übersicht zu Supraleitenden Nanodrähten als Einzelphotonendetektoren bzgl. Effizienz, Zeitauflösung, Temperatur und Wellenlängenbereich gegeben. So können Effizienzen von über 90% nur bei Temperaturen unterhalb $T < 3\text{ K}$ erzielt werden. Dies schränkt die Anwendung auf Forschungseinrichtung ein und erfordert daher keine Änderung der Zielsetzung.

5. Änderungen der Zielsetzung

Der Ansatz von RTD-Einzelphotonendetektoren in einer optischen Kavität mit ternären Absorberschichten konnte erstmal erfolgreich nachgewiesen werden und somit gezeigt werden, dass die Detektion von Einzelphotonen auch ohne Quantenpunkte und mit einem Quantenfilm möglich sind. Das höhere Einschusspotential von Minoritätsladungsträger im Antimonid haltigen Materialsystem konnte im Rahmen dieses Projektes bestätigt werden. Daher sind keine Änderungen der Zielsetzungen notwendig. Die Vorteile von ternären GaAsSb-Quantenfilmen gegenüber InAs-Quantenpunkten (QP) durch den besseren Ladungsträgereinschluss erlaubt entscheidende Nachteile von Quantenpunkt RTD-SPD auszugleichen. Es konnte zudem gezeigt werden, dass der Photoresponse sich um das zehnfache steigern lassen kann. Eine wichtige Erkenntnis aus diesen Experimenten war das obere Limit des Sb-Gehaltes in den Quantenfilmen. Der maximale Photostrom mit einem 24%-tigen Quantenfilm war dreimal so hoch als bei dem mit 34%. Die Abnahme kann durch nicht-radiative Rekombination in Defekten erklärt werden, die mit steigender Verspannung zunehmen.

6. Fortschreibung des Verwertungsplans

6.1 Erfindungen, Schutzrechtsanmeldungen und erteilte Schutzrechte

Von der Julius-Maximilians-Universität Würzburg wurde während des Projektes kein Schutzrecht angemeldet.

6.2 Wirtschaftliche Erfolgsaussichten nach Projektende

Aktuell ist keine direkte wirtschaftliche Verwertung der Ergebnisse des Projektes geplant. Durch das Projekt wurde jedoch ein gemeinsames Projekt mit KMU nanoplus GmbH und dem Fraunhofer IAF in Freiburg initiiert. In dem Projekt „Thermoelektrisch gekühlte Einzelphotonendetektoren im Telekommunikationsbereich für schnelle Quantenkommunikationsanwendungen“ sollen Einzelphotonenquellen, hier InGaAs APDs, mit einer voll integrierten elektronischen Differenzschaltung erstmals in einem thermoelektrisch gekühlten Gehäuse aufgebaut werden. Durch die Steigerung der Arbeitstemperatur der RTD-SPDs wollen wir diesen Ansatz ebenfalls weiterverfolgen, was die Möglichkeit realisiert, die Detektoren von Laborumgebung in reale Umgebungen zu transferieren.

6.3 Wissenschaftliche und/oder technische Erfolgsaussichten nach Projektende

Der wissenschaftliche und technischen Erfolgsaussichten nach Projektende sind sehr gut. Neben den bereits getätigten Veröffentlichungen sind weitere Veröffentlichungen aktuell in Bearbeitung:

Im Projekt wurden die folgenden wissenschaftlichen Publikationen getätigt:

- **Publikationen:**

1. Edson Cardozo de Oliveira, Andrea Naranjo, **Andreas Pfenning**, Victor Lopez-Richard, Gilmar Eugenio Marques, Lukas Worschech, Fabian Hartmann, Sven Höfling & Marcio Daldin Teodoro
"Determination of Carrier Density and Dynamics via Magneto-electroluminescence Spectroscopy in Resonant-Tunneling Diodes"
Phys. Rev. Applied 15, 014042. (2021). doi: [10.1103/PhysRevApplied.15.014042](https://doi.org/10.1103/PhysRevApplied.15.014042)
2. Ed Edgar David Guarin Castro, Florian Rothmayr, Sebastian Krüger, Georg Knebl, Anne Schade, Johannes Koeth, Lukas Worschech, Victor Lopez-Richard, Gilmar Marques, Fabian Hartmann, **Andreas Pfenning** & Sven Höfling.
"Resonant tunneling of electrons in AlSb/GaInAsSb double barrier quantum wells."
AIP Advances. 10(5), 055024. (2020). doi: 10.1063/5.0008959
3. **Andreas Pfenning**, Jonathan Jurkat, Andrea Naranjo, Dominik Köck, Fabian Hartmann, Sven Höfling
"Resonant tunneling diode photon number resolving single-photon detectors,"
Proc. SPIE 11128, Infrared Remote Sensing and Instrumentation XXVII, 1112808 (9 September 2019); <https://doi.org/10.1117/12.2529929>
4. **Andreas Pfenning**, Fabian Hartmann, Sven Höfling
"Photon counting with resonant tunneling diodes: overview and recent developments,"
Proc. SPIE 11386, Advanced Photon Counting Techniques XIV, 1138606 (18 May 2020); <https://doi.org/10.1117/12.2559290>
5. **Andreas Pfenning**, Sebastian Krüger, Fauzia Jabeen, Lukas Worschech, Fabian Hartmann, and Sven Höfling
"Single-Photon Counting with Semiconductor Resonant Tunneling Devices."
Nanomaterials 2021, 11, x. <https://doi.org/10.3390/xxxxx>

Zu diesen Veröffentlichungen sind aktuell zwei weitere Publikationen in Bearbeitung:

6. Andrea Naranjo, Victor Lopez-Richard, Gilmar Marques, Fabian Hartmann, Andreas Pfenning & Sven Höfling
„Impact ionization as upper limit for the operation of quantum dot resonant tunneling diode single-photon detectors. “
7. Sebastian Krüger, Andreas Pfenning, Fauzia Jabeen, Fabian Hartmann, and Sven Höfling
"Resonant Tunneling Diode Photodetectors with Type II Postwells."

Zudem werden die Ergebnisse zur weiteren Ausbildung des wissenschaftlichen Nachwuchses genutzt. Im Rahmen des Projektes forschte ein Bachelor-Student in seiner Abschlussarbeit an GaAs-basierten Resonanztunnelstrukturen zur Einzelphotonendetektion. Die optoelektronischen Transporteigenschaften und die Elektrolumineszenz von Quantenpunkt-RTDs basierend auf GaAs wurden von einer Doktorandin untersucht. Das Halbleiterwachstum des ternären GaAsSb-Materialsystems auf GaAs mittel Molekularstrahlepitaxie und die Integration in RTDs sowie deren Transporteigenschaften und Eignung als Photodetektoren werden in einer weiteren Doktorarbeit erforscht. Aufbauend auf den Ergebnissen sollen weitere Nachwuchswissenschaftler ausgebildet werden, und die Erfahrung in der Epitaxie, der Prozesstechnologie ausgenutzt werden und auch auf andere Fragestellungen übertragen werden.

6.4 Wissenschaftliche und wirtschaftliche Anschlussfähigkeit

Ergebnisse der Kontaktierung der RTD in Kavitäten, werden auch bei der Realisierung von VCSEL Strukturen für den mittleren Infrarotbereich Anwendung finden. Gerade hier ist die Kontaktierung, die Passivierung und die Minimierung von Leckströmen essenziell und die Expertise, welche zusätzlich im Projekt aufgebaut wurde, wird hier Verwendung finden. Zudem werden die elektro-optischen Ergebnisse (mit der Steigerung des Einschlusspotentials durch Sb haltige Schichten) auch für RTD Detektoren auf dem InGaAs Materialsystem ausgenutzt werden. Hierbei sollen RTD Oszillatoren hergestellt werden, welche bei Frequenzen bis 100 GHz arbeiten und die ein Interface zwischen der Glasfaserübertragung und der WiFi Informationsübertragung darstellen können. Hierfür müssen die RTD Strukturen kleinste Barrieren besitzen und der Lichtdetektionsmechanismus optimiert werden. Gerade bei den hohen Frequenzen muss dabei die Absorberschicht kurz gehalten werden und der Einschluss der Ladungsträger maximiert werden. Gerade durch die hohe Stromdichte (hohe Betriebstemperatur) und dem verwendeten Materialsystem kann der Einsatz der ternären oder sogar quaternären Sb haltigen Schichten hilfreich sein. Auch hilft hier die Integration innerhalb einer Kavität die Effizienz zu steigern.

Zusammenfassung/Profi Online Version

1. Aufzählung der wichtigsten wissenschaftlich-technischen Ergebnisse und anderer wesentlicher Ereignisse (max. 16000 Zeichen)*

Es wurde ein Modell entwickelt, das eine Modellierung von RTD-Einzelphotonendetektoren erlaubt unter Berücksichtigung der Doppelbarrierenstruktur und der Detektorfläche. Die Gültigkeit konnte experimentell bestätigt werden. Durch die Verwendung eines Wellenleiters oder optischen Resonators konnten zwei Lösungsansätze erarbeitet werden, die eine Steigerung der geringen Quanteneffizienz von RTD-Photodetektoren ermöglichen. Es konnte kein negativer Einfluss des Resonators auf die elektrischen Transporteigenschaften festgestellt werden. Der Wellenleiteransatz wurde im Rahmen des Projektes nicht weiter untersucht, da hier das Einkoppeln der Photonen mit einem immensen technologischen Aufwand verbunden ist.

Die Detektion von einzelnen Photonen mit einem RTD-Photodetektor mit einem Quantenfilm konnte erstmalig demonstriert werden. Die Vorteile von ternären GaAsSb-Quantenfilmen gegenüber InAs-Quantenpunkten (QP) liegen zum einen in dem besseren Ladungsträgeranschluss im Valenzband. Dieser Parameter spielt eine entscheidende Rolle bei der Steigerung der Betriebstemperaturen des Detektors. Quantenpunkte sind 0-dimensionale Objekte, diese hat zwei weitere Nachteile gegenüber Quantenfilmen. Das selbstorganisierte Wachstum dieser führt zu einer inhomogenen Verteilung. Damit fluktuiert die Dichte stark über den Wafer. Hier muss vor dem Prozess genau geprüft werden welche Bereiche sich als Detektoren eignen. Ein weiteres Problem dieser Dimensionalität ist das Einfangen von Ladungsträgern. Das Potential des QP hat nur eine endliche Ausdehnung. Photogenerierte Ladungsträger, die zur DBS beschleunigt werden, können in den QP zu akkumulieren durch die DBS tunneln und somit verloren gehen. Dies senkt die Effizienz des RTD-Photodetektors. Der zweidimensionale Quantenfilm umgeht beide Probleme.

Das höhere Einschlusspotential von Minoritätsladungsträger im Antimonid haltigen Materialsystem wurde im Rahmen dieses Projektes bestätigt werden. Hier ergaben sich Photoströme, die um das zehnfache höher waren im Vergleich zu InGaAs. Eine wichtige Erkenntnis aus diesen Experimenten war das obere Limit des Sb-Gehaltes in den Quantenfilmen. Der maximale Photostrom mit einem 24%-tigen Quantenfilm war dreimal so hoch als bei dem mit 34%. Die Abnahme kann durch nicht-radiative Rekombination in Defekten erklärt werden, die mit steigender Verspannung zunehmen.

Die genannten Erkenntnisse sind Meilensteine zum Design eines RTD-Einzelphotonendetektor, der bei höheren Betriebstemperatur mit einer hohen Effizienz betrieben werden kann. Auf Grund der zeitlichen Einschränkung konnten nicht alle Zielsetzungen im Rahmen des Projektes erreicht werden.

2. Vergleich des Stands des Vorhabens mit der ursprünglichen (bzw. mit Zustimmung des Zuwendungsgebers geänderten) Arbeits-, Zeit- und Ausgabenplanung (max. 16000 Zeichen) *

Das im Projektzeitraum vorgesehene Teilziel TZ1 konnte erfüllt werden, während die Teilziele TZ 2 & 3 nicht erfüllt werden konnten. Die für den Halbzeitmeilenstein anvisierte Quanteneffizienz von $\eta \geq 10\%$ konnte nicht erreicht werden. Für die Steigerung der Effizienz wurden im Projekt zwei Ansätze gewählt: Zum einen die Wellenleitergeometrie und zum anderen die Integration der RTD in eine optische Kavität. In Wellenleitergeometrie ist eine ausreichende Einkopplung des Lichtes in die Struktur mit der derzeitigen Technologie nicht möglich. Bei der Verwendung einer optischen Kavität konnte keine Passivierung aus SiO₂ verwendet werden. Durch den oberen DBR, der die optische Kavität einschließt, werden auch die Mesen höher, dies führte dazu, dass das SiO₂ im Prozess aufbrach. Beim Aufdampfen der Kontakte wurden die Dioden dann kurzgeschlossen. Alternative wurde BCB verwendet, dies führte allerdings vermehrt zu Leckströmen.

3. Haben sich die Aussichten für die Erreichung der Ziele des Vorhabens innerhalb des angegebenen Ausgabenzeitraums gegenüber dem ursprünglichen Antrag geändert (Begründung)? (max. 16000 Zeichen) *

Im Rahmen des Projektes konnte erstmalig die Detektion von einzelnen Photonen mit Resonanten Tunnelndioden ohne Verwendung von InAs-Quantenpunkten demonstriert werden. Diese wurden durch das ternäre Material GaAsSb ersetzt. Dessen im Vergleich deutlich besseren Minoritätsladungsträger Einschluss konnte ebenfalls bestätigt werden. Die Zielsetzung der Steigerung der Effizienz und Betriebstemperatur konnte in der geplanten Projektlaufzeit nicht umgesetzt werden. Für die Steigerung der Effizienz konnten zwei Lösungsansätze erarbeitet werden. Zum einen die Integration in einen optischen Resonator, dieser konnte direkt in das Wachstum eines RTD-Photodetektors integriert werden, und zum anderen die Verwendung eines Wellenleiters. Letzterer konnte technologisch nicht im Rahmen des Projektes umgesetzt werden. Das Modell zur Bestimmung kritischer Parameter des Detektors konnte durch die Variation der Betriebsspannung bestätigt werden.

4. Sind inzwischen von dritter Seite Ergebnisse bekannt geworden, die für die Durchführung des Vorhabens relevant sind? (Darstellung der aktuellen Informationsrecherchen nach Nr. 2.1 BNBest-BMBF 98) (max. 16000 Zeichen) *

Im Projektzeitraum sind keine Publikationen von dritter Seite sowie Patente mit RTD-Einzelphotonendetektoren bekannt geworden. Publikationen hinsichtlich Einzelphotonendetektoren unter Verwendung von Avalanche-Photodioden bzw. Supraleitenden Nanodrähten sind erschienen. Diese beeinflussen die für die Durchführung des Vorhabens nicht.

Shandong University (China):

- Ultra-low dead time free-running InGaAsP single-photon detector with active quenching (Journal of Modern Optics, Vol. 67, No. 13, 1817591).

Dieser Artikel beschäftigt sich mit der Reduzierung der Totzeit in Avalanchen-Photodioden. Diese wurde auf 35 ns bei einer Detektoreffizienz von 10% und einer Temperatur von $T = 242\text{ K}$ reduziert. Da hier nur eine sehr geringe Effizienz erzielt werden kann beeinflusst dies den Verlauf des Projektes nicht.

National University of Science and Technology MSIS (Russland):

- A low-noise single-photon detector for long-distance free-space quantum communication (EPJ Quantum Technol., vol. 8, no. 1, 2021).

In diesem Artikel wird ein Einzelphotonendetektor basierend auf einer Silizium Avalanche-Photodiode vorgestellt. Es konnte eine Effizienz von 50% bei $T = -100\text{ °C}$ erzielt werden. Dies liegt jedoch weit unterhalb der anvisierten 90% dieses Projektes und hat daher keine Auswirkungen auf die Zielsetzung.

Delft University of Technology (Niederlande):

- Superconducting nanowire single-photon detectors: A perspective on evolution, state-of-the-art, future developments, and applications (Appl. Phys. Lett. 118, 190502).

In diesem Artikel wird eine aktuelle Übersicht zu Supraleitenden Nanodrähten als Einzelphotonendetektoren bzgl. Effizienz, Zeitauflösung, Temperatur und Wellenlängenbereich gegeben. So können Effizienzen von über 90% nur bei Temperaturen unterhalb $T < 3\text{ K}$ erzielt werden. Dies schränkt die Anwendung auf Forschungseinrichtung ein und erfordert daher keine Änderung der Zielsetzung.

5. Sind oder werden Änderungen in der Zielsetzung notwendig? (max. 16000 Zeichen) *

Es sind keine Änderungen in der Zielsetzung geplant.

6. Fortschreibung des Verwertungsplans. Dies soll so weit im Einzelfall zutreffend, Angaben zu folgenden Punkten enthalten (Geschäftsgeheimnisse des Zuwendungsempfängers brauchen nicht offenbart zu werden):

(a) Erfindungen, Schutzrechtsanmeldungen und erteilte Schutzrechte, die vom Zuwendungsempfänger oder von am Vorhaben Beteiligten gemacht oder in Anspruch genommen wurden sowie deren standortbezogene Verwertung (Lizenzen u.a.) und erkennbare Verwertungsmöglichkeiten, (max. 16000 Zeichen) *

Von der Julius-Maximilians-Universität Würzburg wurde während des Projektes kein Schutzrecht angemeldet.

(b) Wirtschaftliche Erfolgsaussichten nach Projektende (mit Zeithorizont) - z.B. auch funktionale/wirtschaftliche Vorteile gegenüber Konkurrenzlösungen, Nutzen für verschiedene Anwendergruppen/-industrien am Standort Deutschland, Umsetzungs- und Transferstrategien (Angabe sowie die Art des Vorhabens dies zulässt), (max. 16000 Zeichen) *

Aktuell ist keine wirtschaftliche Verwertung der Ergebnisse des Projektes geplant.

(c) Wissenschaftliche und/oder technische Erfolgsaussichten nach Projektende (mit Zeithorizont) - u.a. wie die geplanten Ergebnisse in anderer Weise (z.B. für öffentliche Aufgaben, Datenbanken, Netzwerke, Transferstellen etc.) genutzt werden können. Dabei ist auch eine etwaige Zusammenarbeit mit anderen Einrichtungen, Firmen, Netzwerken, Forschungsstellen u.ä. einzubeziehen, (max. 16000 Zeichen) *

Der wissenschaftliche Verwertungsplan der Ergebnisse im Projekt beruht sich auf Publikationen in einschlägigen Journalen sowie die Präsentation der Ergebnisse auf internationalen Konferenzen. Außerdem können die optoelektronische Charakterisierung, die Optimierung des Prozesses und des Halbleiterwachstums verwendet werden um Studierende des Bachelors-, Masters- oder Promotionsstudiums auszubilden. Die Erkenntnisse können auf andere Bereiche des Lehrstuhls übertragen werden, wie zum Beispiel der Herstellung von Einzelphotonenquellen.

(d) Wissenschaftliche und wirtschaftliche Anschlussfähigkeit für eine mögliche notwendige nächste Phase bzw. die nächsten innovatorischen Schritte zur erfolgreichen Umsetzung der Ergebnisse. (max. 16000 Zeichen) *

Die im Rahmen des Projektes gewonnen Erkenntnisse und sich daraus ergebenden Problemstellungen können durch bereits genannte Lösungsansätze weiter ausgearbeitet werden. Der Ansatz zur Verwendung eines epitaktisch gewachsenen unteren Bragg-Spiegel, die angepasste Passivierung und eines oberen Bragg-Spiegels aus $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ können die Effizienz der Detektoren erheblich steigern. Somit kann der Leckstrom durch andere Dielektrika, die für den Prozess mit einem epitaktischen oberen DBR zwingend notwendig sind, umgangen werden. Der zweite Prozessschritt erlaubt eine Vorcharakterisierung der Heterostruktur und ermöglicht so die Anpassung des oberen DBR. Damit kann nach dem Wachstum der Detektor geringfügig optimiert werden.