

Epitaktisches Wachstum und Transportuntersuchung topologisch isolierender Materialien: GaSb/InAs Doppelquantenfilme und Bi₂Se₃ Nanostrukturen

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

> vorgelegt von Georg Knebl aus Altötting Würzburg 2019

Eingereicht am:23.04.2019bei der Fakultät für Physik und Astronomie

- 1. Gutachter: Prof. Dr. Sven Höfling
- 2. Gutachter: Prof. Dr. Hartmut Buhmann
- 3. Gutachter:
- der Dissertation

Vorsitzende(r)

Prüfer: Prof. Dr. Sven Höfling
Prüfer: Prof. Dr. Hartmut Buhmann
Prüfer: Prof. Dr. Ewelina M. Hankiewicz

Im Promotionskolloquium

Tag des Promotionskolloquiums:	26.07.2019
Doktorurkunde ausgehändigt am:	

Zusammenfassung

Topologische Isolatoren gehören zu einer Klasse von Materialien, an deren Realisation im Rahmen der zweiten quantenmechanischen Revolution gearbeitet wird. Einerseits sind zahlreiche Fragestellungen zu diesen Materialen und deren Nutzbarmachung noch nicht beantwortet, andererseits treiben vielversprechende Anwendungen im Feld der Quantencomputer und Spintronik die Lösung dieser Fragen voran. Topologische Rand- bzw. Oberflächenzustände wurden für unterschiedlichste Materialien und Strukturen theoretisch vorhergesagt, so auch für GaSb/InAs Doppelquantenfilme und Bi₂Se₃. Trotz intensiver Forschungsarbeiten und großer Fortschritte bedürfen viele Prozesse v. a. im Bereich der Probenherstellung und Verarbeitung noch der Optimierung. Die vorliegende Arbeit präsentiert Ergebnisse zur Molekularstahlepitaxie, zur Probenfertigung sowie zu elektrooptisch modulierter Transportuntersuchung von GaSb/InAs Doppelquantenfilmen und der epitaktischen Fertigung von Bi₂Se₃ Nanostrukturen.

Im ersten Teil dieser Arbeit werden die Parameter zur Molekularstrahlepitaxie sowie die Anpassung der Probenfertigung von GaSb/InAs Doppelquantenfilmen an material- und untersuchungsbedingte Notwendigkeiten beschrieben. Dieser verbesserte Prozess ermöglicht die Fertigung quantitativ vergleichbarer Probenserien. Anschließend werden Ergebnisse für Strukturen mit variabler InAs Schichtdicke unter elektrostatischer Kontrolle mit einem Frontgate präsentiert. Auch mit verbessertem Prozess zeigten sich Leckströme zum Substrat. Diese erschweren eine elektrostatische Kontrolle über Backgates. Die erstmals durch optische Anregung präsentierte Manipulation der Ladungsträgerart sowie des Phasenzustandes in GaSb/InAs Doppelquantenfilmen bietet eine Alternative zu problembehafteten elektrostatisch betriebenen Gates. Im zweiten Teil wird die epitaktische Herstellung von Bi₂Se₃ Nanostrukturen gezeigt. Mit dem Ziel, Vorteile aus dem erhöhten Oberfläche-zu-Volumen Verhältnis zu ziehen, wurden im Rahmen dieser Arbeit erstmals Bi₂Se₃ Nanodrähte und -flocken mittels Molekularstrahlepitaxie für die Verwendung als topologischer Isolator hergestellt.

Ein Quantensprung – **Kapitel 1** führt über die umgangssprachliche Wortbedeutung des Quantensprungs und des damit verbundenen Modells der Quantenmechanik in das Thema. Die Anwendung dieses Modells auf Quanten-Ensembles und dessen technische Realisation wird heute als erste Quantenmechanische Revolution bezeichnet und ist aus unserem Alltag nicht mehr wegzudenken. Im Rahmen der zweiten Quantenmechanischen Revolution soll nun die Anwendung auf einzelne Zustände realisiert und technisch nutzbar gemacht werden. Hierbei sind topologische Isolatoren ein vielversprechender Baustein. Es werden das Konzept des topologischen Isolators sowie die Eigenschaften der beiden in dieser Arbeit betrachteten Systeme beschrieben: GaSb/InAs Doppelquantenfilme und Bi₂Se₃ Nanostrukturen.

GaSb/InAs Doppelquantenfilme

Kapitel 2 beschreibt die notwendigen physikalischen und technischen Grundlagen. Ausgehend von der Entdeckung des Hall-Effekts 1879 werden die Quanten-Hall-Effekte eingeführt. Quanten-Spin-Hall-Isolatoren oder allgemeiner topologische Isolatoren sind Materialien mit einem isolierenden Inneren, weisen an der Oberfläche aber topologisch geschützte Zustände auf. Doppelquantenfilme aus GaSb/InAs, die in AlSb gebettet werden, weisen – abhängig vom Aufbau der Heterostruktur – eine typische invertierte Bandstruktur auf und sind ein vielversprechender Kandidat für die Nutzbarmachung der topologischen Isolatoren. GaSb, InAs und AlSb gehören zur 6,1 Ångström-Familie, welche für ihre opto-elektronischen Eigenschaften bekannt ist und häufig verwendet wird. Die Eigenschaften sowie die technologischen Grundlagen der epitaktischen Fertigung von Heterostrukturen aus den Materialien der 6,1 Ångström-Familie mittels Molekularstrahlepitaxie werden besprochen. Abschließend folgen die Charakterisierungs- und Messmethoden. Ein Überblick über die Literatur zu GaSb/InAs Doppelquantenfilmen in Bezug auf topologische Isolatoren rundet dieses Kapitel ab.

Zu Beginn dieser Arbeit stellten Kurzschlusskanäle eine Herausforderung für die Detektion der topologischen Randkanäle dar. **Kapitel 3** behandelt Lösungsansätze hierfür und beschreibt die Verbesserung der Herstellung von GaSb/InAs Doppelquantenfilm-Strukturen mit Blick auf die zukünftige Realisation topologischer Randkanäle. In Abschnitt 3.1 werden numerische Simulationen präsentiert, die sich mit der Inversion der elektronischen Niveaus in Abhängigkeit der GaSb und InAs Schichtdicken d_{GaSb} und d_{InAs} beschäftigen. Ein geeigneter Schichtaufbau für Strukturen mit invertierter Bandordnung liegt im Parameterraum von 8 nm $\leq d_{InAs} \leq 12$ nm und 8 nm $\leq d_{GaSb} \leq 10$ nm. Abschnitt 3.2 beschreibt die epitaktische Herstellung von GaSb/InAs Doppelquantenfilmen mittels Molekularstrahlepitaxie. Die Fertigung eines GaSb Quasisubstrats auf ein GaAs Substrat wird präsentiert und anschließend der Wechsel auf native GaSb Substrate mit einer reduzierten Defektdichte sowie reproduzierbar hoher Probenqualität begründet. Ein Wechseln von binärem AlSb auf gitterangepasstes AlAsSb erlaubt die Verwendung dickerer Barrieren. Versuche, eine hinlängliche Isolation des Backgates durch das Einbringen einer dickeren unteren Barriere zu erreichen, werden in diesem Abschnitt diskutiert. In Abschnitt 3.3 wird die Optimierung der Probenprozessierung gezeigt. Die Kombination zweier angepasster Ätzprozesse – eines trockenchemischen und eines sukzessive folgenden nasschemischen Schrittes – liefert zusammen mit der Entfernung von Oberflächenoxiden reproduzierbar gute Ergebnisse. Ein materialselektiver Ätzprozess mit darauffolgender direkter Kontaktierung des InAs Quantenfilmes liefert gute Kontaktwiderstände, ohne Kurzschlusskanäle zu erzeugen. Abschnitt 3.4 gibt einen kompakten Überblick, über den im weiteren Verlauf der Arbeit verwendeten "best practice" Prozess.

Mit diesem verbesserten Prozess wurden Proben mit variabler InAs Schichtdicke gefertigt und bei 4,2 K auf ihre Transporteigenschaften hin untersucht. Dies ist in **Kapitel 4** präsentiert und diskutiert. Abschnitt 4.1 beschreibt die Serie aus drei Proben mit GaSb/InAs Doppelquantenfilm in AlSb Matrix mit einer variablen InAs Schichtdicke. Die InAs Schichtdicke wurde über numerische Simulationen so gewählt, dass je eine Probe im trivialen Regime, eine im invertierten Regime und eine am Übergang liegt. Gezeigt werden in Kapitel 4.2 Magnetotransportmessungen für konstante Frontgatespannungen sowie Messungen mit konstantem Magnetfeld gegen die Frontgatespannung. Die Messungen bestätigen eine Fertigung quantitativ vergleichbarer Proben, zeigen aber auch, dass keine der Proben im topologischen Regime liegt. Hierfür kommen mehrere Ursachen in Betracht: Eine Überschätzung der Hybridisierung durch die numerische Simulation, zu geringe InAs Schichtdicken in der Fertigung oder ein asymmetrisches Verschieben mit nur einem Gate (Kapitel 4.3). Zur Reduktion der Volumenleitfähigkeit wurden Al-haltigen Schichten am GaSb/InAs Übergang eingebracht. Die erwartete Widerstandssteigerung konnte in ersten Versuchen nicht gezeigt werde.

Die in **Kapitel 5** gezeigte optische Manipulation des dominanten Ladungsträgertyps der InAs/GaSb-Doppelquantentöpfe gibt eine zusätzliche Kontrollmöglichkeit im Phasendiagramm. Optische Anregung ermöglicht den Wechsel der Majoritätsladungsträger von Elektronen zu Löchern. Dabei wird ein Regime durchlaufen, in dem beide Ladungsträger koexistieren. Dies weist stark auf eine Elektron-Loch-Hybridisierung mit nichttrivialer topologischer Phase hin. Dabei spielen zwei unterschiedliche physikalische Prozesse eine Rolle, die analog eines Frontgates bzw. eines Backgates wirken. Der Frontgate Effekt beruht auf der negativ persistenten Photoleitfähigkeit, der Backgate Effekt fußt auf der Akkumulation von Elektronen auf der Substratseite. Das hier gezeigte optisch kontrollierte Verschieben der Zustände belegt die Realisation von opto-elektronischem Schalten zwischen unterschiedlichen topologischen Phasen. Dies zeigt die Möglichkeit einer optischen Kontrolle des Phasendiagramms der topologischen Zustände in GaSb/InAs Doppelquantenfilmen. In Abschnitt 5.1 wird die optische Verstimmung von GaSb/InAs Quantenfilmen gezeigt und erklärt. Sie wird in Abhängigkeit von der Temperatur, der Anregungswellenlänge sowie der Anregungsintensität untersucht. Kontrollversuche an Proben mit einem unterschiedlichen Strukturaufbau zeigen, dass das Vorhandensein eines Übergitters auf der Substratseite der Quantenfilmstruktur essentiell für die Entstehung der Backgate-Wirkung ist (Abschnitt 5.2). Abschließend werden in Abschnitt 5.3 die Erkenntnisse zur optischen Kontrolle zusammengefasst und deren Möglichkeiten, wie optisch definierte topologischen Phasen-Grenzflächen, diskutiert.

Bi₂Se₃ Nanostrukturen

Mit Blick auf die Vorteile eines erhöhten Oberfläche-zu-Volumen Verhältnisses ist die Verwendung von Nanostrukturen für das Anwendungsgebiet der dreidimensionalen topologischen Isolatoren effizient. Mit dem Ziel, diesen Effekt für die Realisation des topologischen Isolators in Bi₂Se₃ auszunutzen, wurde im Rahmen dieser Arbeit erstmalig das Wachstum von Bi₂Se₃ Nanodrähten und -flocken mit Molekularstrahlepitaxie realisiert. In Kapitel 6 werden technische und physikalische Grundlagen hierzu erläutert (Abschnitt 6.1). Ausgehend von einer Einführung in dreidimensionale topologische Isolatoren werden die Eigenschaften des topologischen Zustandes in Bi2Se3 gezeigt. Darauf folgen die Kristalleigenschaften von Bi₂Se₃ sowie die Erklärung des epitaktischen Wachstums von Nanostrukturen mit Molekularstrahlepitaxie. In Abschnitt 6.2 schließt sich die Beschreibung der epitaktischen Herstellung an. Die Kristallstruktur wurde mittels hochauflösender Röntgendiffraktometrie und Transmissionselektronenmikroskopie als Bi2Se3 identifiziert. Rasterelektronenmikroskopie-Aufnahmen zeigen Nanodrähte und Nanoflocken auf mit Gold vorbehandelten bzw. nicht mit Gold vorbehandelten Proben. Der Wachstumsmechanismus für Nanodrähte kann nicht zweifelsfrei definiert werden. Das Fehlen von Goldtröpfchen an der Drahtspitze legt einen wurzelbasierten Wachstumsmechanismus nahe (Abschnitt 6.3).

Abstract

Topological insulators are among the concepts being worked on in the second quantum mechanical revolution. On the one hand, numerous questions on these materials and their utilization have not yet been answered; on the other hand, promising applications in the field of quantum computing and spintronics are driving the solution of these questions. Topological edge and surface states have been predicted theoretically for a wide variety of materials and structures, including GaSb/InAs double quantum wells and Bi₂Se₃. Despite intensive research and great progress, many processes, especially in the field of sample preparation and processing, still require optimization. This thesis presents detailed studies on growth, fabrication and electro-optically modulated transport analysis of GaSb/InAs double quantum films as well as the epitaxial fabrication of Bi₂Se₃ nanostructures.

In the first part of this thesis, the parameters for molecular beam epitaxy and sample preparation for GaSb/InAs double quantum films are described. The protocols for sample preparation have been adapted to the necessities of the material and experimental requirements. The achieved reproducibility of the presented process enables the production of quantitatively comparable sample series. Subsequently, results for structures with variable InAs layer thickness under electrostatic control with a front gate are presented. Despite of an improved process, leakage currents to the substrate were still observed. These hinder electrostatic control via back gates. The manipulation of the charge carrier type and the phase state in GaSb/InAs double quantum films are presented for the first time by optical excitation and offer an alternative to problematic electrostatically operated gates.

The second part shows the epitaxial production of Bi₂Se₃ nanostructures. The increased surface-to-volume ratio of nanostructures is advantageous to supress the bulk conductivity in reference to surface conduction. Here, the molecular beam epitaxy of Bi₂Se₃ nanowires and flakes is shown for the first time.

Chapter 1 introduces the topic of quantum technology, and in particular protected quantum (edge) states, starting with the proverb "Quantum Leap" (german "Quantensprung"). The application of quantum mechanics to quantum ensembles and its technical realization nowadays is called the first quantum mechanical revolution and is an indispensable part of our everyday life. Within the framework of the second quantum mechanical revolution, the application to individual states is now to be realized and made technically usable. Here topological insulators are a promising building block. The concept of the topological insulator as well as the properties of the two systems considered in this thesis are briefly described: GaSb/InAs double quantum films and Bi₂Se₃ nanostructures.

GaSb/InAs double quantum films

Chapter 2 describes the physical and technical basics of topological insulators as well as methods used for fabrication and analysis. Starting with the discovery of the Hall effect in 1879, the quantum Hall effects are introduced. Quantum spin Hall insulators or general topological insulators are materials with an insulating bulk but have topologically protected states at the surface. Double quantum films of GaSb/InAs embedded in AlSb matrix show – depending on the structure of the heterostructure – a typical inverted band structure and are a promising candidate for the utilization of topological insulators. GaSb, InAs and AlSb belong to the 6.1 Ångstrom family, which is known for its opto-electronic properties and is frequently used. The properties as well as the technological basics of epitaxial fabrication of heterostructures from the materials of the 6.1 Ångstrom family by molecular beam epitaxy are reviewed. Finally, the characterization and measurement methods are shown.

At the beginning of the work leading up to this thesis, various short circuit channels hindered the detection of topological edge channels. **Chapter 3** deals with possible solutions and describes the improvement of the fabrication of GaSb/InAs double quantum film structures with regard to the future realization of topological edge channels. In section 3.1 numerical simulations are presented. The inversion of the electronic level is calculated as a function of GaSb and InAs layer thicknesses d_{GaSb} and d_{InAs} . A suitable layer structure for structures with inverted band order lies within the parameter space of 8 nm $\leq d_{InAs} \leq$ 12 nm and 8 nm $\leq d_{GaSb} \leq 10$ nm. Section 3.2 describes the epitaxial production of GaSb/InAs double quantum films by molecular beam epitaxy. The production of a GaSb quasi-substrate on a GaAs substrate is presented. Subsequently, the change to native GaSb substrates is motivated with a reduced defect density as well as reproducibly high sample quality. Changing from binary AlSb to lattice-matched AlAsSb allows the use of thicker barriers. Attempts to achieve sufficient isolation of the back gate by introducing a thicker lower barrier are discussed in this section. Section 3.3 shows the optimization of sample processing. The combination of two adapted etching processes – a dry chemical and a successive wet chemical step – in combination with the removal of surface oxides provide reproducible good results. A material selective etching process with subsequent direct contacting of the InAs quantum film provides good contact resistance without creating short circuit channels. Section 3.4 gives a compact overview of the "best practice" process used in the further course of this thesis.

With this improved process, samples with variable InAs layer thickness were produced and examined at 4.2 K regarding their transport properties. This is presented and discussed in **chapter 4**. Section 4.1 describes a series of three samples with GaSb/InAs double quantum films in AlSb matrix with a variable InAs layer thickness. The InAs layer thickness was selected by numerical simulations in such a way that one sample is in the trivial regime, one in the inverted regime and one at the transition point. In section 4.2 magneto-transport measurements for constant front gate voltage and measurements with constant magnetic field versus the front gate voltage are shown. The measurements confirm a production of quantitatively comparable samples, but also show that none of the samples are in the topological regime. This might be explained by several possible reasons: an overestimation of hybridization by numerical simulation, insufficient InAs layer thicknesses in production or asymmetric shifting with only one gate (section 4.3). To reduce the volume conductivity, Al-containing layers were introduced at the GaSb/InAs transition. The expected increase in resistance could not be shown in first experiments.

The optical manipulation of the dominant charge carrier type of the InAs/GaSb double quantum wells shown in **chapter 5** provides an additional possibility of control in the phase diagram. Optical excitation allows the change of the majority charge carriers from electrons to holes. The transition involves a regime in which both charge carriers coexist. This strongly suggests electron-hole hybridization with a non-trivial topological phase. Here, two different physical processes play a role, which act analogously to a front gate or a back gate. The front gate effect is based on the negative persistent photoconductivity, the back-gate effect is based on the accumulation of electrons on the substrate side. The optically controlled shifting of the states shown here proves the realization of opto-electronic switching between different topological phases. This shows the possibility of an optical control of the phase diagram of the topological states in GaSb/InAs double quantum films. Section 5.1 displays and explains the optical detuning of GaSb/InAs quantum films. It is investigated as a function of temperature, excitation wavelength and excitation

intensity. Control experiments on samples with a different structure show that the presence of a superlattice on the substrate side of the quantum film structure is essential for the formation of the back-gate effect (section 5.2). Finally, Section 5.3 summarizes the findings on optical control and discusses its possibilities for optical defined interfaces between topological phases in this system.

Bi₂Se₃ Nanostructures

Due to the increased surface-to-volume ratio, it is beneficial to use nanostructures for the application of three-dimensional Tis. With the aim to exploit this effect for the realization of a Bi₂Se₃ topological insulator, the growth of Bi₂Se₃ nanowires and flakes with molecular beam epitaxy was first realized in the context of this work. **Chapter 6** explains the technical and physical basics (Section 6.1). Starting from an introduction to three-dimensional topological isolators, the properties of the topological state in Bi₂Se₃ are shown. This is followed by the crystal properties of Bi₂Se₃ and the explanation of the epitaxial growth of nanostructures with molecular beam epitaxy. Section 6.2 describes the epitaxial production. The crystal structure was identified as Bi₂Se₃ by high-resolution X-ray diffraction and transmission electron microscopy. Scanning electron microscopy images show nanowires and nanoflakes on samples that were either pre-treated with gold or not pre-treated with gold. While the growth mechanism for the nanowires cannot be defined beyond doubt, the absence of gold droplets at the wire tip suggests a root-catalysed growth mechanism (section 6.3).

Inhaltsverzeichnis

Zusammenfassung						
Abstract						
Inhaltsverzeichnis						
Abkürzungsverzeichnis						
1	E	Cinleitung	1			
2	2 Allgemeine Grundlagen & Technologie					
2	.1	Hall-Effekte und topologische Isolatoren	5			
2	.2	III-V Verbindungshalbleiter und die 6,1 Ångström-Familie	14			
2	.3	Molekularstrahlepitaxie von GaSb/InAs Doppelquantenfilmen	16			
2	.4	Lithografie und Bauteil-Prozessierung	20			
2	.5	Messtechnik	23			
3	0	Optimierung der GaSb/InAs-Probenherstellung	27			
3	.1	Simulationen	28			
3	.2	Epitaktisches Wachstum	34			
3	.3	Prozessoptimierung	37			
3	.4	Optimierte Probenherstellung	48			
4	V E	Variation der InAs Schichtdicke und elektrische Manipulation von GaSb/InAs Doppelquantenfilmen	51			
4	.1	Variation in binären GaSb/InAs Doppelquantenfilmen	51			
4	.2	Elektronische Manipulation der InAs Schichtdickenvariation	54			
4	.3	Fazit InAs Variation und elektrostatische Manipulation	58			
5	0	Optische Manipulation von GaSb/InAs Doppelquantenfilmen	64			
5	.1	Optische Manipulation an Probe opt1	65			
5	.2	Kontrollversuche optische Manipulation	74			
5	.3	Fazit optische Manipulation	78			
6	E	Bi2Se3 Nanoflocken und -drähte	80			
6	.1	Grundlagen und Technologie Bi ₂ Se ₃	81			
6	.2	MBE Wachstum Bi ₂ Se ₃ Nanoflocken und -drähte	87			
6	5.3	Fazit Bi ₂ Se ₃ Nanoflocken und -drähte	91			
Literaturverzeichnis			92			
Veröffentlichungen des Autors			101			
Danksagungen			103			

Abkürzungsverzeichnis

2DEG	2-dimensionales Elektronengas
2DHG	2-dimensionales Lochgas
ALD	Atomlagenabscheidung von engl. atomic layer deposition
ARPES	Winkelaufgelöste Photoelektronen Spektroskopie
BEP	Flussäquivalenter Druck, von engl. beam equivalent pressure
BHZ-Modell	Bernevig-Hughes-Zhang Modell
BIA	Kristall-Inversionsasymetrie, von engl. bulk inversion asymetry
bin	binäre Probenserie
CNP	Ladungsträgerneutralitätspunkt, von engl. charge neutrality point
DQW	Doppelquantenfilm, von engl. double quantum well
ECR	Elektron-Zyklotron-Resonanz, von engl. electron cyclotron resonance
HH	Schwerloch, von engl. heavy hole
HL	Halbleiter
HRXRD	hochauflösende Röntgendiffraktometrie, von engl. high resolution x-ray diffraction
ICL	Interbandkaskadenlaser, von engl. interband cascade laser
IML	Probenserie mit Monolage Al, von interfacial monolayer
LDOS	lokale Zustandsdichte, von engl. local desity of states
LED	Licht-emittierende Diode
LH	Leichtloch, von engl. light hole
LL	Ladekammer, von engl. load lock
LN ₂	flüssiger Stickstoff, von engl. liquid nitrogen
MBE	Molekularstrahlepitaxie, von engl. molecular beam epitaxy
МС	Haupt- oder Wachstumskammer, von engl. main chamber
MOCUD	Metallorganische chemische Gasphasenabscheidung,
MOCVD	von engl. metalorganic chemical vapour deposition
NPPC	negative persistente Photoleitfähigkeit, von engl. negative persistent photoconductivity
DECUD	Plasmaunterstützte chemische Gasphasenabscheidung,
FECVD	von engl. plasma-enhanced chemical vapour deposition
PLD	gepulste Laserdeposition, von engl. pulsed laser deposition
PPC	persistente Photoleitfähigkeit, von engl. persistent photoconductivity
PPPC	positive persistenten Photoleitfähigkeit, von engl. positive persistent photoconductivity
QCL	Quantenkaskadenlaser, von engl. quantum cascade laser
QW	Quantenfilm bzwtrog, von engl. quantum well
REM	Rasterelektronenmikroskop
RIE	Reaktives Ionenatzen, engl. reactive ion etching
RTD	Resonante Tunneldiode
SADP	selektives Beugungsmuster von engl. selective area diffraction pattern
SC	Supraleiter, von engl. superconductor
SIA	strukturelle Inversionsasymetrie, von engl. structure inversion asymmetry
SIP	Ionengetterpumpe, von engl. secondary ion pump
SOC	Spin-Bahn Wechselwirkung, von engl. spin orbit coupling
STEM	Raster TEM, von engl. scanning TEM
STM	Rastertunnelmikroskopie, von engl. scanning tunneling microscope
TEM	Transmissionselektronenmikroskop
TI	Topologischer Isolator
ТМАН	Tetramethylammoniumhydroxid
VLS	Gasförmig-flüssig-fest Wachstumsmodus, von engl. vapor-liquid-solid
XPS	Röntgenphotoelektronenspektroskopie, von engl. X-ray photoelectron spectroscopy
XRD	Röntgendiffraktometrie

1 Einleitung

Ein Quantensprung – im allgemeinen Sprachgebrauch stellt ein "Quantensprung" eine große Veränderung oder Errungenschaft dar. In seiner physikalischen, seiner ursprünglichen Bedeutung geht der Begriff des Quantensprungs auf das von Max Planck definierte Energiequant zurück. Die Einführung des "unanschaulichen Quantensprungs" [1] als Modell der sprunghaften Zustandsänderung eines Systems führte in der ersten Hälfte des 20. Jahrhunderts zu vielen Diskussionen in der physikalischen Gemeinschaft. Der Begriff, der an sich einen sehr, sehr kleinen Vorgang beschreibt, wurde zum Sinnbild einer veränderten Weltanschauung. Weg von der seit der Antike bestehenden Sichtweise einer sich stetig verändernden Welt ("Die Natur macht keine Sprünge" ¹), hin zur modernen Quantenmechanik.

Mit dem Halbleitertransistor und dem Laser – um nur zwei Beispiele zu nennen – hat die Quantenmechanik in der Computertechnik und der Datenübertragung Einzug gehalten und damit unseren Alltag verändert. Dies wird oft als erste quantenmechanische Revolution bezeichnet. Dabei wurden die Theorien der Quantenmechanik auf Ensemble von Quanten, Teilchen bzw. Zuständen angewandt. Durch den technologischen Fortschritt ergibt sich aktuell die Möglichkeit Kontrolle über einzelne Quanten auszuüben, diese zu manipulieren und nutzbar zu machen. [2] Um einzelne Quanten gezielt ansteuern und deren Information auslesen zu können, müssen sie von ihrer Umgebung möglichst perfekt isoliert sein, da jedwede Wechselwirkung die Wellenfunktion kollabieren lässt und so bspw. die Berechnung verfälscht oder die gespeicherte Information vernichtet wird.

Das damit verbundene Potential ruft wissenschaftliche sowie kommerzielle Interessenten auf den Plan. Hier sind beispielsweise das "Microsoft Projekt Quantum" [3] oder das

¹ Vom lateinischen: "natura non facit saltus"

"Flaggschiff Quantentechnologie" der Europäischen Union zu nennen. In diesem eine Milliarde Euro schweren Förderprogramm bündeln sich unterschiedliche Bereiche der Quantentechnologie: Quantenkommunikation, Quantencomputer, Quantensimulatoren, Quantensensoren und -metrologie sowie fundamentale wissenschaftliche Fragen und Schlüsselkomponenten zu diesen Themen [4], [5]. Diese Veränderungen und Möglichkeiten werden als zweite quantenmechanische Revolution gepriesen [2], [6]. Eines dieser in die experimentelle Umsetzung getragenen quantenmechanischen Konzepte ist das des topologischen Isolators (TI).

Topologische Isolatoren sind Halbleiter oder Isolatoren mit einer Bandlücke im Volumenmaterial. An der Oberfläche bzw. den Kanten der TIs bilden sich leitende Kanäle mit einzigartigen Eigenschaften aus. Diese Kanäle sind topologisch geschützt und somit stabil genug, um die enthaltenen quantenmechanischen Zustände nutzbar zu machen. Hier kann mit Blick auf diese Arbeit in zwei- und dreidimensionale TIs unterteilt werden. In zweidimensionalen TIs wird eine isolierende 2D-Struktur betrachtet, die an ihren Kanten eindimensionale Randkanäle aufweist. Diese werden – nach dem in ihnen auftretenden Quanten-Spin-Hall-Effekt – auch Quanten-Spin-Hall-Isolatoren genannt. 3D-TIs beschreiben einen isolierenden 3D-Volumenkörper, an dessen Oberfläche topologisch geschützte Zustände auftreten. Topologische Isolatoren sind interessante Kandidaten für zukünftige Anwendungen im weiten Gebiet der Quantencomputer und für spintronische Anwendungen [7]–[9].

Topologie war ursprünglich ein Modell zur Unterscheidung mathematischer Strukturen. Für die erstmalige Anwendung auf Phasenübergänge in Materialien [10] wurden im Jahr 2016 David J. Thouless, F. Duncan, M. Haldane und J. Michael Kosterlitz mit dem Nobelpreis für Physik ausgezeichnet [11]. Diese Anwendung auf Phasenübergänge wurde von Thouless mit Einführung der Chern-Nummer auf die Erklärung des Quanten-Hall-Effektes übertragen (TKNN-Modell) [12]. Darauf aufbauend lieferten Kane und Mele im Jahre 2005 die erste Erwähnung eines topologischen Isolators ("quantum spin Hall state") [13]. Die erste Realisation eines TIs geht auf die Vorhersage von Bernevig zurück [14], [15]. In HgTe-Schichten², die in CdTe³ gebettet eine kritische Schichtdicke überschreiten, konnten König et al. [16] 2007 in Würzburg den ersten experimentellen Nachweis eines topologischen Isolators erbringen.

GaSb/InAs Doppelquantenfilme

Auf der weiteren Suche nach Systemen mit analogen Eigenschaften zu HgTe fanden Liu et al. [17] 2008 die Möglichkeit, in Doppelquantenfilmen (DQWs) aus GaSb⁴ und InAs⁵ eine

² Quecksilbertellurid

³ Cadmiumtellurid

⁴ Galliumantimonid

⁵ Indiumarsenid

invertierte, topologisch nicht triviale Bandstruktur zu schaffen. Weiter zeigte sich die Möglichkeit, die Ladungsträgerdichte wie auch den Phasenzustand über externe elektrische Felder einzustellen. Trotz vieler Untersuchungen [18]–[34] ist bisher noch keine vollständig überzeugende Darstellung eines Quanten-Spin-Hall-Effekts in der topologischen Phase der GaSb/InAs DQWs erbracht worden. Kurzschlusskanäle sowie eine eingeschränkte Backgate-Funktion stellen Herausforderungen in der Probenfertigung dar, die eine systematische Untersuchung erschweren [27], [32], [33], [35]. Zu Beginn der hier gezeigten Arbeiten erzeugten sowohl elektrisch leitende, aber triviale Oberflächenkanale und Leitfähigkeit im Volumenmaterial als auch Leckströme ins Substrat unerwünschte Kurzschlusskanäle. Diese führen zu Stromtransport parallel zu den gesuchten topologischen Randkanälen und verhindern Detektion wie auch Nutzung. Leckströme zum Substrat bedeuten zusätzlich eine eingeschränkte Funktion des Backgates. Dies führt zu einer mangelnden Kontrolle über die Struktur und damit zu einer Nichterreichbarkeit aller gewünschten Phasenzustände.

Die vorliegende Dissertation begegnet diesen Herausforderungen und legt einen Schwerpunkt auf die Verarbeitung von GaSb/InAs Doppelquantenfilmen. Für die epitaktische Herstellung wurden neue Erkenntnisse aus der Literatur [36] adaptiert und in den bestehenden Wachstumsprozess integriert. Zur lateralen Definition der Struktur wurde ein kombinierter Ätzprozess eingeführt, der einen genauen Strukturübertrag mit einer guten Oberflächenqualität an den Ätzflanken verbindet. Durch Sauerstoffexposition und am Prozess beteiligte Chemikalien bilden sich an der Oberfläche bzw. an den Ätzflanken leitfähige Oxide aus. Es wurden zwei Schritte zur Oxidentfernung etabliert. Die erstmalig gezeigte optische Modulation der Ladungsträgerart bietet eine Möglichkeit, elektrostatische Kontrolle durch optische Kontrolle zu ersetzten [37] und gibt somit einen Alternative zu problembehafteten Backgates.

Bi₂Se₃ Nanostrukturen

Das zuerst für zweidimensionale Materialien genutzte Konzept des TIs wurde kurz darauf von Fu, Kane und Mele [38] auf dreidimensionale Körper erweitert. Auf dem Feld der dreidimensionalen topologischen Isolatoren sind die Chalkogenide um Bi₂Se₃ eine intensiv untersuchte Materialgruppe [39]–[61]. Vor allem die hohe Bandlückenenergie und die früh gezeigte Existenz von helikalen Oberflächenzuständen sind hervorzuheben [62], [63]. Bei Beginn der Forschung zu Bi₂Se₃ behinderte die Volumenleitfähigkeit des Materials die Detektion der Oberflächenzustände [53], [54]. Durch die erstmalige Herstellung von Bi₂Se₃-Nanostrukturen mittels Molekularstrahlepitaxie (MBE) wurden im Rahmen dieser Arbeit zwei wichtige Punkte vereint [39]. Über MBE hergestellte Bi₂Se₃-Nanostrukturen zeichnen sich gegenüber herkömmlichen Strukturen unter anderem durch ein stark erhöhtes Oberflächen-Volumenverhältnis sowie eine überlegene Wachstumsqualität aus. Beides stellt einen wichtigen Schritt auf dem Weg zur Nutzbarmachung der topologischen Isolatoren dar.

Die Kapitel 2 bis Kapitel 5 dieser Arbeit befassen sich mit GaSb/InAs-Doppelquantenfilmen, Kapitel 6 mit Bi₂Se₃ Nanostrukturen.

2 Allgemeine Grundlagen und Technologie

"Man muss viel gelernt haben, um über das, was man nicht weiß, fragen zu können." Jean-Jacques Rousseau

In diesem Kapitel werden zum Verständnis der Arbeit notwendige technologische und physikalische Grundlagen erklärt. Es erfolgt eine Einordnung in den aktuellen Stand der Forschung. Auf weiterführende Literatur wird an entsprechender Stelle verwiesen.

Ausgehend vom Hall-Effekt werden in Abschnitt 2.1 die Grundlagen zu zweidimensionalen topologischen Isolatoren eingeführt. Darauf aufbauend werden die speziellen elektronischen Eigenschaften von Galliumantimonid/Indiumarsenid (GaSb/InAs) Doppelquantenfilmen als topologische Isolatoren diskutiert.

Anschließend werden charakteristische Materialeigenschaften der sogenannten 6,1 Ångström-Familie [64] beschrieben, zu der GaSb und InAs gehören. Hierfür werden die Funktionsweise sowie die Eigenschaften des Kristallwachstums mittels Molekularstrahlepitaxie (MBE) für Schichtwachstum besprochen. Zusätzlich wird der Aufbau der verwendeten MBE-Anlagen vorgestellt (Abschnitt 2.3).

Weiter folgt in Abschnitt 2.4 die Beschreibung der verwendeten Lithographie-, Strukturierungs-, Metallisierungs- und Passivierungsmethoden. Abschließend werden die verwendeten Charakterisierungsmethoden und Messtechniken sowie die dazu verwendeten experimentellen Aufbauten gezeigt (Abschnitt 2.5).

2.1 Hall-Effekte und topologische Isolatoren

Die Entdeckung und Realisierung topologischer Isolatoren ist eng mit der Geschichte des Quanten-Spin-Hall-Effektes (QSHE) verbunden. Der Begriff des QSHE wird oft synonym für das Vorliegen eines 2-dimensionalen topologischen Isolators verwendet, benennt dabei allerdings nur den auftretenden Effekt. Für die Vorhersage und Beschreibung des QSHE wurde das mathematische Modell topologischer Klassen auf die Eigenschaften von Materie angewandt. Aus den ursprünglichen Modellen (TKNN-Modell [12] und Z2-Invarianz [13]) hat sich ein Periodensystem der topologischen Klassen für Materialien entwickelt [65]. Im Folgenden wird kurz der Weg von der Entdeckung des Halleffektes 1879 [66] bis zur Entdeckung des anormalen Quanten-Hall-Effektes in einem magnetischen topologischen Isolator im Jahr 2013 [67] beschrieben.

Aus den Entdeckungen von Edwin Hall im Jahre 1879 folgt der heute sowohl zur Messung der magnetischen Flussdichte verwendete als auch zur Charakterisierung von elektrisch leitfähigen Proben genutzte Hall-Effekt [66]. Dieser besagt, dass in einem stromdurchflossenen Leiter in einem statischen Magnetfeld eine Spannung senkrecht zu Strom und Magnetfeld abfällt: Die sogenannte Hallspannung. Hierüber lassen sich sowohl die Ladungsträgerart und -dichte bestimmen. Für die Hallspannung U_H gilt:

$$U_H = \frac{1}{nq} \frac{IB}{d} \tag{1}$$

mit *n* als Ladungsträgerdichte, *q* als Ladung eines Ladungsträgers, dem Strom *I*, der Magnetfeldstärke *B* sowie der Probenbreite *d*. Eine charakteristische Kenngröße zur Beschreibung der untersuchten Probe ist der sogenannte Hall-Widerstand. Der Hall-Widerstand ist abhängig vom Magnetfeld und beschreibt einen nichtlokalen Widerstand, der sich aus der Hallspannung und dem senkrecht dazu fließenden Strom I berechnet:

$$R_H(B) = \frac{U_H}{I}.$$
 (2)

Schon zwei Jahre später entdecke Edwin Hall 1881 in ferromagnetischen Materialien den außergewöhnlichen Hall-Effekt (AHE), der auch als planar bzw. anormal bezeichnet wird [68]. Zusammen mit dem Spin-Hall-Effekt (SHE), theoretisch vorhergesagt 1971 von Dyakonov und Perel [69] und experimentell gezeigt 2004 von Kate et al. [70], ergibt das die drei klassischen Hall-Effekte.

1980 entdeckte K. v. Klitzing den Quanten-Hall-Effekt (QHE) und zeigte erstmalig die Quantisierung des Leitwertes [71]. Für diese Entdeckung wurde ihm 1985 der Nobelpreis für Physik verliehen. Während R_H beim klassischen Hall-Effekt linear vom Magnetfeld abhängt, verändert er sich beim QHE stufenweise. Der Wert der Hall-Widerstandstufen entspricht hierbei ganzzahligen Bruchteilen der von-Klitzing-Konstante

$$R_K = \frac{h}{e^2} = 25812,807\ 4555(59)\ \Omega. \tag{3}$$

Es sind h das Plancksche Wirkungsquantum und e die Elementarladung. Der Wert für R_K entspricht dem Vorschlag der CODATA Datenbank [72].

Analog zum QHE wurde nach quantisierten SHE und AHE gesucht. Die erste Erwähnung eines topologischen Isolators ("spin quantum hall effect") [13] sowie die erste Vorhersage für einen solchen Effekt in Graphen [73] lieferten im Jahr 2005 Kane und Mele. 2006 und 2007 folgten die theoretische Vorhersage und der experimentelle Nachweis des Quanten-Spin-Hall-Effektes in HgTe Quantenfilmen durch A. Bernevig et al. [14], [15] bzw. König et al. [16]. Vervollständigt wurde das Trio der quantisierten Hall-Effekte durch den außergewöhnlichen Quanten-Hall-Effekt in einem magnetischen topologischen Isolator [67], [74].

Abbildung 2.1 zeigt die schematische Bandstruktur eines QSH-Isolators. Ausgehend von der Struktur eines Isolators mit Valenz- und Leitungsband, getrennt durch eine Bandlücke, bilden sich beim topologischen Isolator Spin-helikale Rand bzw.- Oberflächenzustände aus, die eine Dirac-ähnliche Dispersion aufweisen. Aufgrund des Zusammenspiels von Zeitumkehrinvarianz und Spin-Bahn-Kopplung sind diese topologischen Zustände gegen kleine Störungen geschützt [7]–[9].

Die experimentelle Bestätigung des QSHE durch König et al. [16] gab den Auftakt für das Forschungsfeld der topologischen Materialien. Hier zeigt sich die ganze Bandbreite physikalischer Arbeitsweise. Grundlegende mathematische, theoretische oder chemische Ansätze ermöglichen einen neuen Blickwinkel auf die Materie, sagen Effekte in immer neuen Materialien vorher und die experimentelle Physik macht sich auf die Suche danach. Eine Vielfalt von chemischen Synthese-Methoden, epitaktischem Wachstum, lithographischen Methoden und Transportmessungen oder aber Oberflächen-Untersuchungen (z. B. ARPES⁶, STM⁷) arbeiten zusammen und im Wettbewerb gegeneinander. Vielversprechende Anwendungen im Bereich der Spintronik und im Feld der Quantencomputer treiben diesen Wettbewerb voran. [7]–[9]

Mit Blick auf die Anwendbarkeit begann die Suche



Abbildung 2.1 Schematische Bandstruktur topologischer Isolator In blau und rot sind schematisch Valenz- bzw. Leitungsband gezeigt. Das Ferminiveau liegt in der Bandlücke. Beim topologischen Isolator treten an der Oberfläche/Kante Spin-polarisierte Oberflächenzustände auf (schwarz). Diese liegen in der Bandlücke des Volumenmaterials. Nach [7].

nach Materialien mit höherer (topologischer) Bandlücke – und damit verbunden höheren möglichen Betriebstemperaturen – sowie nach Materialien, deren experimentelle Handhabung bekannt oder gut zu realisieren ist. Neben den 2-dimensionalen QSH-Systemen kommen hierfür 3-dimensionale topologische Systeme in Frage [7]–[9]. Im kommenden

⁶ Winkelaufgelöste Photoelektronen Spektroskopie, vom engl. angle resolved photo electron spectroscopy

⁷ Rastertunnelmikroskopie

Abschnitt werden die Grundlagen zum 2-dimensionalen TI-System im GaSb/InAs Doppelquantenfilm [17] gezeigt.

Die Charakteristika 3-dimensionaler topologischer Isolatoren werden – mit einem Blick auf Bi₂Se₃ und die Herstellung von Bi₂Se₃ Nanostrukturen mittels Molekularstrahlepitaxie – in Kapitel 6 besprochen. Weiterführende Informationen zu topologischen Isolatoren finden sich unter anderem in [7]–[9].

2-dimensionale topologische Isolatoren

2-dimensionale topologische Isolatoren treten in 2D-Systemen auf. Ein Beispiel eines 2D-Systems ist das 2-dimensionalen Elektronengas (2DEG). In 2-dimensionalen Elektronenoder Lochgasen (2DHG) sind die Ladungsträger in einer ihrer Bewegungsrichtungen eingeschränkt. Diese Beschränkung kann entweder an Heteroübergängen (z. B. GaAs/ AlGaAs), in Monolagen (z. B. Graphen) oder aber in ausreichend dünnen Quantentöpfen (QW)⁸ realisiert werden. Zur Ausbildung quantisierter Zustände muss die Einschränkung der Bewegungsrichtung in etwa der Längenwelle der Ladungsträger entsprechen. Die quantisierten Energiezustände innerhalb eines Quantentopfes führen zur Ausbildung diskreter Subbänder. Deren Energie ist indirekt proportional zum Quadrat der Topfbreite $E \propto L^{-2}$. In einem Magnetfeld senkrecht zum Quantentrog und zum Stromfluss bildet sich der Quanten-Hall-Effekt aus. Für spezielle Materialen, die 2-dimensionalen topologischen Isolatoren (2D TI), lässt sich ein quantisierter Randkanaltransport auch ohne Magnetfeld beobachten – der Quanten-Spin-Hall-Effekt.

Die erste Erwähnung eines 2D-topologischen Isolators ("quantum spin Hall state") geht auf Kane und Mele im Jahre 2005 zurück [73]. Sie zeigten in ihrer theoretischen Arbeit, dass in Graphen zwei gegenläufige Randkanäle mit entgegengesetzter Spin-Polarisation vorliegen können. Dabei sollte, im Gegensatz zum Quanten-Hall-Effekt, kein Magnetfeld notwendig sein, um diese zu beobachten. Allerdings zeigte sich, dass diese Randkanäle – mit dem aktuellen Stand der Technik – experimentell in Graphen nicht nachweisbar sind. 2017 wurde dieser Nachweis für Bismuten erbracht [75]. Bismuten ist ein dem Graphen strukturell ähnlicher Stoff auf Bismut-Basis und besitzt eine größere Bandlücke. Die erste Realisation eines 2D TIs geht auf die Vorhersage von Bernevig et al. zurück [14], [15]. In HgTe Schichten, die in CdTe gebettet eine kritische Schichtdicke überschritten, konnten König et al. [16] den ersten experimentellen Nachweis für einen topologischen Isolator erbringen.

Der QSHE zeigt mehrere einzigartige und sowohl aus physikalischem als auch aus anwendungsbezogenem Blickwinkel vielversprechende Charakteristika. Seine Randkanäle treten ohne externes Magnetfeld auf, sind 1-dimensional und zeigen einen quantisierten

⁸ Von engl. quantum well

Leitwert. Zusätzlich sind diese Kanäle spinpolarisiert und bieten sich somit für die Verwendung in spintronischen Anwendungen an.

Topologischer Isolator GaSb/InAs Doppelquantenfilm

Als Alternative zum HgTe/CdTe-Materialsystem zur Realisierung von 2D TIs wurde 2008 von Liu et al. eine Halbleiterschichtstruktur bestehend aus einem GaSb/InAs-Doppelquantenfilm (DQW) vorgeschlagen. Diese Struktur setzt sich aus nur wenigen Nanometer breiten Schichten GaSb und InAs zusammen die in AlSb Barrieren eingebettet sind. Diese DQW-Struktur bietet den Vorteil, dass unter bestimmten Voraussetzungen ein Zustand existiert, der durch externe Manipulation zwischen topologisch geschütztem Zustand und trivialem Zustand geschaltet werden kann.

Noch 1980 wurde das invertierte AlSb/GaSb/InAs-System als halbmetallisch und ohne Bandlücke beschrieben [76]. Kurz darauf wurde theoretisch [77] und experimentell [78][79] gezeigt, dass eine Vermischung der Elektronen- und Lochzustände zum Öffnen einer Hybridisations-Bandlücke Δ führt. Nach der Entdeckung des QSHE in HgTe-Quantenfilmen [16] und der Einführung des Bernevig, Hughes und Zhang (BHZ-) Modells [15] lag die Vermutung nahe, dass dies auch in kombinierten GaSb/InAs-Quantenfilmen der Fall sei. Ähnlich zu HgTe Quantenfilmen bilden sich, wie Liu et al. [17] zeigten, bei Inversion der ursprünglichen Elektronen- und Lochzustände topologisch geschützte Randzustände.

Abbildung 2.4 a) und b) zeigen eine Skizze des Leitungsband- (LB) und Valenzband- (VB) Profils von in AlSb eingebetteten GaSb/InAs-Doppelquantenfilmen unterschiedlicher Schichtdicken. Der zwischen zwei AlSb Barrieren eingebettete Doppelquantenfilm besitzt einen Typ-II(b) gebrochenen Bandübergang. Die Schichtdicke ist so gewählt, dass in Teilbild a) keine Bandinversion vorliegt, d. h. der im InAs lokalisierte Elektronenzustand E1 liegt energetisch oberhalb des Schwerlochzustandes HH1. In Teilbild b) ist die Schichtdicke so gewählt, dass der elektronische Zustand energetisch unterhalb des Lochzustandes liegt. Für diese Fälle sagen Liu et al. [17] das Auftreten eines QSH Effektes vorher. In Abbildung 2.4 c) ist der Bandverlauf für den trivialen Fall gezeigt; er entspricht dem eines Halbleiters, mit parabelförmigem Valenz- und Leitungsband sowie einer Bandlücke E_{gap} . In Bild d) ist der Bandverlauf für den invertierten Fall gezeigt. Für k = 0, am Γ -Punkt, bildet sich eine Inversionsbandlücke aus. Abseits vom Γ -Punkt entsteht eine so genannte Hybridisationsbandlücke Δ .



Abbildung 2.4 Schematischer Bandverlauf GaSb/InAs DQW zwischen zwei AlSb Barrieren **a)** Ohne Bandinversion, Schichtdicken sind so gewählt, dass E1 über HH1. **b)** Die Wahl der Schichtdickenkombination führt zu Bandinversion, HH1 über E1. **c)** Dispersionsrelation für den trivialen Zustand, diese entspricht der eines Halbleiters. **d)** Dispersionsrelation im invertierten Fall. Am Γ -Punkt bildet sich eine Inversions-Bandlücke aus, abseits vom Γ -Punkt bildet sich eine Hybridisationsbandlücke Δ aus.

Die theoretische Vorhersage von Liu et al. [17] folgt methodisch dem BHZ-Modell. Die räumliche Separation der beiden Ladungsträgerarten (Elektronen im InAs-QW und Löcher im GaSb-QW) führt zu einer Reihe von unterschiedlichen Resultaten, die zusätzlich zum ursprünglichen BHZ-Modell für HgTe-QWs beachtet werden müssen. Durch die räumliche Trennung von Elektron- und Lochwellenfunktion innerhalb des DQWs ist die Hybridisierung weniger stark ausgeprägt, was einer quantitativen Verkleinerung der Hybridisationsbandlücke entspricht. Da die Heterostruktur in Wachstumsrichtung keine Symmetrie aufweist, muss die strukturelle Inversionsasymmetrie (SIA) ⁹ betrachtet werden, die eine reduzierte Hybridisationsbandlücke schließen könnte. Zwei unterschiedliche Atomsorten pro Einheitszelle führen zu Kristall-Inversionsasymmetrie (BIA) ¹⁰ [80]. Auch diese liegt potentiell in der Größenordnung der reduzierten Hybridisationsbandlücke und muss folglich in Betracht gezogen werden. Mit BIA und SIA ergibt sich für den Hamilton-Operator:

$$H = H_0 + H_{BIA} + H_{SIA} \tag{4}$$

⁹ SIA von engl. structure inversion asymmetry

¹⁰ BIA von engl. bulk inversion asymetry

Für H_0 folgt mit der Basis {|E1+>, |H1+>, |E1->, |H1->} sowie einer quadratischen Näherung für k aus dem BHZ Modell [15]:

$$H_{0} = \varepsilon(k)I_{4\times4} + \begin{pmatrix} M(k) & Ak_{+} & 0 & 0\\ Ak_{-} & -M(k) & 0 & 0\\ 0 & 0 & M(k) & -Ak_{-}\\ 0 & 0 & -Ak_{+} & -M(k) \end{pmatrix}$$
5

Hierbei ist $M(k) = M_0 + M_2 k^2$ und $\varepsilon(k) = C_0 + C_2 k^2$. $I_{4\times 4}$ entspricht der 4×4-Einheitsmatrix [15], [17]. Für eine Betrachtung der BIA und SIA ergibt sich aus einer Projektion auf die energetisch niedrigsten Zustände [17]:

$$H_{BIA} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & \Delta_e k_+ & -\Delta_0 \\ 0 & 0 & \Delta_0 & \Delta_h k_- \\ \Delta_e k_- & \Delta_0 & 0 & 0 \\ -\Delta_0 & \Delta_h k_+ & 0 & 0 \end{pmatrix}$$
 6

und

$$H_{SIA} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & i\xi_e k_- & 0\\ 0 & 0 & 0 & 0\\ -i\xi_e^* k_+ & 0 & 0 & 0\\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$$
7

Der SIA-Term entspricht dem linearen *k*-Rashba-Ausdruck, der k^2 -Anteil des Rashba-Terms für das Schwerlochband wird vernachlässigt. Die Parameter Δ_e , Δ_h , Δ_0 und ξ_e sind abhängig vom Aufbau der Heterostruktur.

Der Hamilton-Operator (im weiteren Verlauf Hamiltonian genannt) H_0 , ohne BIA und SIA, ist blockdiagonal und beide Blöcke entsprechen einem massiven Dirac-Hamiltonian in 2+1 Dimensionen. Aus dem BHZ-Modell ist bekannt, dass hierfür bei $M_0 = 0$ ein topologischer Phasenübergang stattfindet. Für $M_0/M_2 < 0$ liegt eine topologisch nicht-triviale Phase vor. Unter Hinzunahme von H_{BIA} und H_{SIA} koppeln die beiden Blöcke von H_0 und eine direkte Übernahme der Interpretation ist nicht mehr möglich. Ausgehend von der topologischen Phase und unter adiabatischer Hinzunahme von BIA und SIA fanden Liu et al., dass das topologische Regime aufrecht erhalten bleibt, solange die Bandlücke nicht geschlossen wird [17]. Daraus folgt, dass die Hinzunahme des SIA und BIA Terms den topologischen Übergang verändert, ihn aber nicht zerstört.

Während die ursprünglichen Loch- und Elektronenzustände im GaSb- bzw. im InAs-Film lokalisiert waren, trifft dies für den hybridisierten Zustand nicht mehr zu. Dieser breitet sich über die Grenzfläche zwischen GaSb und InAs aus und ist in beiden Quantenfilmen lokalisiert. Das strukturell bedingte intrinsische elektrische Feld ermöglicht eine elektrostatische Modulation der Inversion und des Ferminiveaus über externe Gates. So ist es möglich innerhalb eines Bauteils – ohne Variation der Schichtdicke – von trivialem zu topologischem Verhalten zu wechseln [17]. Abbildung 2.5 zeigt schematisch die Abhängigkeit der Inversion und Hybridisierung von Frontgate- und Backgate-Spannung. Durch die Kombination der beiden Spannungen können unterschiedliche Phasen erreicht werden. Es sind zwei Unterscheidungskriterien notwendig. Einerseits muss die Bandanordnung betrachtet werden. Hier wird zwischen trivial oder invertiert unterschieden (vgl. Abbildung 2.4). Zusätzlich ist die Lage des Ferminiveaus (E_F) von Bedeutung.

Für den trivialen Fall ergeben sich damit drei Bereiche: Im Loch-Regime liegt das Ferminiveau im Valenzband und es liegt Lochleitung vor, während es im elektronischen Regime im Leitungsband ist und hauptsächlich Elektronenleitung vorliegt. Dazwischen ist die Bandlücke und im trivialen Fall sind für T = 0 K somit keine an der Leitung beteiligten Ladungsträger vorhanden.

Im invertierten, topologischen Regime existieren drei Bereiche, die über die Lage des Ferminiveaus E_F unterschieden werden: Befindet sich das Ferminiveau im ursprünglichen Valenzband (blau in Abbildung 2.4 d), liegt hauptsächlich Lochleitung mit einem elektronischen Anteil vor. Bei E_F im ursprünglichen Leitungsband (rot in Abbildung 2.4 d) liegt Elektronleitung mit einem Lochanteil vor. Ist das Ferminiveau in der Hybridisationsbandlücke, findet Transport über die topologischen Randzustände statt.

Über eine geeignete Kombination von Frontgate- und Backgate-Betrieb kann vom normal isolierenden Zustand (E_F in der Bandlücke) direkt in einen topologisch isolierenden Zustand (E_F in Bandlücke mit topologischen Zuständen) gewechselt werden. Hier ergibt sich die aus wissenschaftlicher Sicht interessante Möglichkeit, diesen Übergang in situ zu beobachten. Aus Anwendungssicht ließe sich dadurch ein schaltbares Element realisieren, der topologische Feldeffekttransistor (FET) oder TI-FET.

Experimentell wurde dieses Phasendiagramm und damit die unabhängige Kontrolle des Ferminiveaus und der Bandstruktur über zwei Gates als erstes von F. Qu et al. [81] gezeigt. Darüber hinaus führten die Autoren dieser Veröffentlichung ein kapazitives Modell ein, mit dem die Ergebnisse von Liu et al. reproduziert werden konnten. Die roten bzw. blauen Linien in Abbildung 2.5 geben schematisch die von Qu et al. [81] bestimmten konstanten Elektronen- respektive Lochdichten an. Gelbe gestrichelte Linien verdeutlichen den konstanten Verlauf des Bandüberlapps (im invertierten Regime) bzw. des Bandabstandes (im trivialen Regime). Auf einer gelben Line ändert sich folglich nur das Ferminiveau, nicht die Bandordnung.



Backgate

Abbildung 2.5 Phasendiagramm in Abhängigkeit angelegter externer Spannung Über eine extern angelegte Spannung an Front- und Backgate kann die elektrische bzw. topologische Phase moduliert werden. Nach Wahl der Gatespannungen liegt entweder eine triviale Bandordnung (E über H) oder aber invertierte Bandordnung (H über E) vor. Darüber hinaus kann das Fermi Niveau entweder jeweils im Valenzband (Lochregime), in der Bandlücke oder aber im Leitungsband (Elektronenregime) liegen. Über geeignete Kombination von Spannungen können alle sechs relevanten Regime erreicht werden. Rote bzw. blaue Linien geben schematisch den Verlauf von konstanten Elektronen- bzw. Lochdichten an. Gelbe gestrichelte Linien verdeutlichen einen konstanten Verlauf des Bandüberlapps – im invertierten Regime – bzw. des Bandabstandes – im trivialen Regime. (Nach Liu et al [17] und Du et al. [81])

Trotz vieler Untersuchungen [18]–[34] ist bisher noch keine vollständig überzeugende Darstellung eines QSHE in der topologischen Phase der GaSb/InAs DQWs erbracht worden. In den ersten experimentellen Arbeiten zeigte die Gruppe um Knez und Du Anzeichen für Randkanäle in GaSb/InAs DQWs [19], [27]–[30] und kurz darauf quantisierten Transport nahe dem Ladungsträgerneutralitätspunkt [31]. Darauf aufbauend wiesen verschiedene Gruppen Randkanaltransport nach. Neben nichtlokalen Transportmessungen [32], [33] und der Detektion von Randkanal-Supraleitung [34] zeigten SQUID-Messungen [20] anschaulich Transport an den Probenkanten. Leitfähigkeit im "Volumen"-Material als auch eine eingeschränkte Backgate-Funktion stellen Herausforderungen in der Probenfertigung der, die eine systematische Untersuchung erschweren [27], [32], [33], [35].

Vor kurzem wurde Randkanaltransport im trivialen Regime von GaSb/InAs-Doppelquantenfilmen [21], [82] sowie in InAs-Quantenfilmen gezeigt [25]. Dies warf die Frage auf, ob diese trivialen Randkanäle auch im invertierten Regime auftreten und wie bzw. ob diese bei einer Messung von topologischen Randkanälen getrennt werden können. Alternativ muss die Ausbildung trivialer Randkanäle verstanden und unterbunden werden. Aus der Anwendung von GaSb/InAs-Übergittern in der Infrarot-Technologie ist die Ausbildung von Kurzschlusskanälen senkrecht zum Übergitter bekannt [83]. Neben Fermilevelpinning in der InAs-Schicht [84], [85] wird hierbei v. a. die Ausbildung oder Anlagerung von metallischen Ga-Verbindungen im Prozessverlauf [86]–[88] oder bei Exposition an Luft [89] betrachtet.

Die Elektronen- bzw. Lochleitung im "2-dimensionalen Volumen" der InAs bzw. GaSb Quantenfilme verläuft parallel zu den zu messenden topologischen Randkanälen. Eine Reduktion dieser "Volumen"-Leitfähigkeit ist für die Messung der topologischen Randkanäle unabdingbar. Um diese zu senken existieren unterschiedliche Ansätze. Die Inkorporation von Dotieratomen [31], [33], [90] sowie die Verwendung unterschiedlicher Gallium-Chargen [91] adressieren die Leitfähigkeit im GaSb oder InAs Quantenfilm[91].

In der Gestaltung der Heterostruktur gibt die 6,1 Ångström-Familie (s. Abschnitt 2.2) einen großen Gestaltungspielraum. Für die Verwendung von GaInSb/InAs Doppelquantenfilmen wurde eine Vergrößerung der Hybridisationsbandlücke Δ gezeigt [22]. Die optische Anregung und Modulation in Heterostrukturen der 6,1 Ångström-Familie ist seit vielen Jahren bekannt. Die Gruppe um R.R. Du zeigte vor kurzem die Möglichkeit, GaSb/InAs-Doppelquantenfilme mit negativer Photoleitfähigkeit zu modulieren [26].

2.2 III-V Verbindungshalbleiter und die 6,1 Ångström-Familie

In Kapitel 2.1 wurden GaSb/InAs-Doppelquantenfilme als alternative Materialstruktur zur Herstellung topologischer Isolatoren vorgestellt. Für die Fertigung kristalliner Proben ist die Kristallstruktur von überragender Wichtigkeit. Dieser Abschnitt konzentriert sich auf die Eigenschaften und Fertigung von GaSb/InAs-Doppelquantenfilmen. Details zu Kristallstruktur und Herstellung von Bi₂Se₃ werden in Kapitel 6.1 gegeben.

Die sogenannten III-V Verbindungshalbleiter setzen sich aus Elementen der dritten Hauptgruppe sowie der fünften Hauptgruppe des Periodensystems zusammen. Dabei werden Verbindungen aus zwei Elementen (z. B. GaSb) als binär, aus drei (z. B. GaInSb) als ternär bezeichnet. Die Gitterkonstante für Mischkristalle verhält sich nach der Regel von Vegard linear mit dem Mischungsverhältnis der Komponenten [92]. Die Bandlücke für ternäre Verbindungen errechnet sich mit Hilfe des sogenannten Bowing-Parameters über eine quadratische Näherung [93], [94].

III-V Halbleiter finden insbesondere aufgrund ihrer optoelektronischen Eigenschaften ein breites Anwendungsspektrum. Aufgrund ihrer oftmals direkten Energiebandlücke sind

sie im Bereich der Opto-Elektronik stark vertreten. Anwendungsbeispiele hierfür sind Laser in der Lichterzeugung [95], [96] und Solarzellen [97] und Photodioden zur Lichtdetektion (z. B. Resonanztunneldioden-Photodetektoren [98]). Des Weiteren stellen III-V Halbleiter-Quantenpunkte als sogenannte "künstliche Atome" zur Erzeugung von einzelnen Photonen einen vielversprechenden Baustein auf dem Weg zur Quantenkryptographie dar [99].

Da die Gitterkonstanten von GaSb, InAs und AlSb annähernd 6,1 Ångström (Å) betragen, werden diese auch als sogenannte 6,1 Ångström-Familie bezeichnet [64]. Alle Verbindungshalbleiter der 6,1 Å-Familie liegen in Zinkblende-Struktur vor. Für die epitaktische Herstellung (vgl. Abschnitt 2.3) liefert dies die Möglichkeit, Heterostrukturen guter kristalliner Qualität zu erzielen sowie eine breite Variabilität für die Realisation von Strukturen mit ternären Verbindungen zu fertigen. Einen Überblick über die Materialeigenschaften von III-V-Verbindungshalbleitern gibt die Zusammenfassung von Vurgaftman et al. [94].



Abbildung 2.6 Bandlücken und deren Ordnung für binäre Materialien der 6,1 Å-Familie Die Abbildung zeigt die für die Gestaltung einer Heterostruktur wichtigen Parameter der Bandlücke sowie des Bandversatzes für die binären Materialien der 6,1 Å-Familie. Abhängig vom Bandversatz bilden sich unterschiedliche Anordnungen zwischen den unterschiedlichen Materialien. Für den GaSb/InAs Übergang ergibt sich ein Typ II(b) oder auch Typ III "broken bandgap" Anordnung aus. Nach [100]

Für die Verwendung in Heterostrukturen, speziell für die sich ergebende Bandstruktur, ist neben der Bandlücke der sogenannte Bandversatz wichtig. In Abbildung 2.6 ist die Bandlücke (in Farbe) für die binären Materialien sowie deren Position zueinander gezeigt [100]. Bringt man die verschiedenen Halbleiter miteinander in Kontakt, lassen sich drei unterschiedliche Bandanordnungen unterscheiden. Bei einer Bandanordnung des Typ-I überschneiden sich die Bandlücken der beteiligen Materialien vollständig (z. B. GaSb/AlSb). Dies wird als gespreizte Bandlücke bezeichnet. Bei Typ-II (a) schneiden sich die Bandlücken teilweise (gestaffelte Bandlücke, z. B. InAs/AlSb) und bei Typ-II-(b) gar nicht (gebrochene Bandlücke, z. B. GaSb/InAs). Typ-II-(b) wird seltener auch als auch als Typ-II "broken bandgap" oder Typ-III bezeichnet. Während für die binären Mitglieder der 6,1 Å-Familie der Bandversatz einvernehmlich bestimmt ist, gilt dies für ternäre und quaternäre Mischungen nicht.

2.3 Molekularstrahlepitaxie von GaSb/InAs Doppelquantenfilmen

Molekularstrahlepitaxie (MBE) ist ein Verfahren zur schichtweisen Abscheidung kristalliner Materialien. Atomare bzw. molekulare Ausgangsstoffe werden in die Gasphase überführt und auf ein kristallines Substrat aufgebracht. Ein Vorteil von MBE ist die Herstellung von Heterostrukturen hoher Qualität aus Materialien unterschiedlicher elementarer Zusammensetzungen und Mischungsverhältnisse. Der MBE-Prozess findet unter Ultrahochvakuum (UHV) statt. Das gewährleistet, dass die freie Weglänge eines Teilchens innerhalb der Wachstumskammer größer ist als die Distanz von der Materialquelle zum Substrat. Weiter werden durch einen Wachstumsprozess unter UHV hochreine Proben und Halbleiterkristalle ermöglicht. Der Einbau von unerwünschter Hintergrunddotierung sowie Gitterdefekte durch Fremdatome werden unterdrückt, da im UHV der Wachstumskammer lediglich Atome und Moleküle der in den Effusionszellen vorliegenden Materialien vorhanden sind. In den Effusionszellen findet die Verdampfung höchstreiner Ausgangsmaterialien über ein thermisches Ungleichgewicht statt. MBE-Wachstum ermöglicht Probenfertigung bestmöglicher Qualität. Nach dem Auftreffen der Materialien auf der Probe spielen unterschiedliche, zum Teil konkurrierende physikalische Prozesse eine Rolle. Dazu gehören:

- Adsorption der Atome auf der Oberfläche
- Migration der Atome auf der Oberfläche
- Desorption der Atome von der Oberfläche
- Nukleation Bildung eines Kristallisationszentrums
- Chemiesorption Einbau der auftreffenden Atome ins Kristallgitter

Diese Prozesse sind stark von der Substrattemperatur, der Effusionsrate und dem Verhältnis der angebotenen Materialien abhängig. Im kommenden Abschnitt wird unterschieden zwischen Schichtwachstum nach Frank und van der Merwe für GaSb/InAsDQWs und Bi $_2$ Se $_3$ Nanostrukturwachstum mittels VLS-Wachstumsmodus 11 bzw. wurzelbasierter Nukleation .

Weiterführende Informationen zu Molekularstrahlepitaxie finden sich bei Herman und Sitter [101] sowie Henini [102].

Schichtwachstum von GaSb/InAs Quantenfilmen

Epitaktisches Schichtwachstum von III-V Halbleitern erfolgt im Idealfall Atomlage für Atomlage nach dem Frank-van-der-Merwe-Modus [103]. Für ein defektfreies Wachstum ist die Gitterkonstante *a* die ausschlaggebende Größe. Materialien mit identischer Gitterkonstante können verspannungsfrei aufeinander abgeschieden werden. Die Abscheidung von Materialien unterschiedlicher Gitterkonstanten aufeinander wird als pseudomorphes Wachstum bezeichnet. Dabei gleicht sich die Gitterkonstante parallel zur Wachstumsebene an, die Gitterkonstante senkrecht dazu wird gestreckt oder gestaucht. Materialien mit einer Gitterkonstante größer als die des verwendeten Substrates $a > a_{Sub}$ werden kompressiv verspannt, Materialien mit einer kleineren Gitterkonstante $a < a_{Sub}$ tensil. Unterhalb einer kritischen Schichtdicke können Materialien unterschiedlicher Gitterkonstanten diese Verspannung elastisch aufnehmen, oberhalb relaxiert das Kristallgitter durch die Verspannung in Versetzungen und Kristallfehler [104], [105].

Mit Blick auf bestmögliche optische und elektrische Eigenschaften des gewachsenen Materials ist eine fehlerfreie Kristallstruktur anzustreben. Zur Vermeidung von Kristallfehlern und unerwünschten Störstellen sind eine gute Anpassung der Gitterkonstanten bei ternären Materialien (Gitteranpassung), Maßnahmen zur Verspannungskompensation, geeignete Übergänge zwischen unterschiedlichen Materialien sowie nicht zuletzt gut gewählte Wachstumsparameter notwendig. Im Vergleich zu GaAs-Wachstum lässt sich festhalten, dass die Substrattemperaturen für antimonide Materialien jeweils einige 10 °C geringer sind.

Alle in dieser Arbeit gezeigten GaSb/InAs-Proben wurden unter Gruppe-V Überdruck gefertigt. Damit ist das Gruppe-III-Angebot der limitierende Faktor der Wachstumsgeschwindigkeit. Typische Wachstumsraten liegen im Bereich von 100 nm bis 1000 nm pro Stunde. Bedingt durch die niedrige Wachstumsgeschwindigkeit und schnell arbeitende Verschlussblenden bietet MBE eine sehr gute Kontrolle über die abgeschiedene Schichtdicke. Weiter lassen sich lange Oberflächenmigrationszeiten und somit sehr glatte Oberflächen bzw. defektfreies Wachstum realisieren.

¹¹ Gasförmig-flüssig-fest von engl. vapour-liquid-solid

Die Eiko EV-100 Epitaxieanlage – "Eiko-A"

Eine Skizze der verwendeten EIKO EV-100 MBE Anlage ("Eiko-A") findet sich in Abbildung 2.7. Neben der "Wachstumskammer" (MC)¹², in der das eigentliche Kristallwachstum stattfindet, gibt es eine durch ein Handventil "V" getrennte "Ladekammer" (LL)¹³. Im regulären Betrieb bleibt das Vakuum in der Wachstumskammer ungebrochen, nur die Ladekammer wird mit Reinststickstoff belüftet. Jeder Halter wird vor dem Transfer in die Wachstumskammer auf 300°C aufgeheizt, um Verunreinigungen (z. B. Wasser) zu entfernen. Die Ladekammer wird über eine Turbomolekularpumpe evakuiert. Die Wachstumskammer wurde über eine Ionengetterpumpe (SIP)¹⁴ evakuiert. Der Kühlschild in der Hauptkammer wird im Betrieb mit flüssigem Stickstoff (LN₂)¹⁵ gespült. Material, das nicht am Wafer haften bleibt, friert am Kühlschild aus und hat somit keinen weiteren (unkontrollierten) Einfluss auf das Kristallwachstum.



Abbildung 2.7 Schematische Darstellung der "Eiko-A"

Schematische Darstellung der Eiko-EV 100 Molekularstrahlepitaxie-Anlage in der verwendeten Konfiguration. Hauptbestandteile sind die Lade- sowie Wachstumskammer, getrennt durch ein Ventil V. In der Wachstumskammer sind Effusionszellen für die Gruppe-III Elemente Al, In, Ga sowie die Dotierelemente Si, Be, und GaTe angebracht. Die Gruppe-V Elemente As und Sb werden mit Hilfe von ventilgesteuerten (Mehrzonen-) Crackerzellen eingebracht. Zentral in der Wachstumskammer ist der Manipulator.

Die Wachstumskammer ist mit acht Zellenports ausgestattet. Die Belegung der Ports ist in Tabelle 2.1 zusammengefasst. In allen Zellen wird Material über ein thermisches Ungleichgewicht in die Gasphase überführt. In den Effusionszellen (Aluminium (Al), Gallium

¹² Von engl. main chamber

¹³ Von engl. load lock

¹⁴ SIP von engl. secondary ion pump

¹⁵ LN₂ von engl. liquid nitrogen

(Ga), Indium (In1 und In2) Beryllium (Be), Galliumtellurid (GaTe) und Silizium (Si)) wird die Effusionsrate (und resultierend die Geschwindigkeit des Halbleiterwachstums) direkt über die Temperatur des vorliegenden Materials bestimmt. Indium, Aluminium und Beryllium wurden mit Ein-Filament Standard Knudsen-Zelle verdampft. Gallium wird über eine sogenannte "hot-lip" Zwei-Filament-Zelle verdampft. In der Doppeldotierzelle befinden sich zwei kleinere Tiegel mit je einem Filament. Die einzelnen Tiegel sind voneinander durch eine separate Wasserkühlung abgeschirmt.

Die Gruppe-V Elemente werden durch ventilgesteuerte (Mehrzonen-) Crackerzellen ¹⁶ eingebracht. Diese besitzen unterschiedliche Temperaturbereiche. Im ersten Bereich wird die notwendige Menge Material sublimiert (Bulk-Bereich) und im heißeren Bereich, kurz bevor das Material den Cracker verlässt (Cracking-Zone, T_{As}=950°C und T_{Sb}=1000°C), werden die vorliegenden As₄- bzw. Sb₄-Cluster in Dimere aufgespalten [106]. Weiter besitzen beide Crackerzellen ein Auslassventil, mit dem die abgegebene Materialmenge schnell geregelt werden kann. Der Materialstrahl jeder Zelle kann durch eine Verschlussblende unterbrochen werden. Somit tragen nur Zellen mit offener Blende zum Kristallwachstum an der Substratoberfläche bei.

Bezeichnung	Material	Zellenart		
Al	Aluminium	Standard-Effusionszelle	Knudsen-Zelle	
Ga	Gallium	2-Filament-Effusionszelle	Knudsen-Zelle	
In1	Indium	Standard-Effusionszelle	Knudsen-Zelle	
In2	Indium	Standard-Effusionszelle	Knudsen-Zelle	
As	Arsen	As-Cracker	Cracker, ventilgesteuert	
Sb	Antimon	Sb-Cracker	Cracker, ventilgesteuert	
Ве	Beryllium	Standard-Effusionszelle	Knudsen-Zelle	
	Silizium	Doppeldotierzelle	Knudsen-Zelle	
Si/GaTe	Gallium-	Doppeldotierzelle,	Knudson-Zollo	
	tellurid	GaTe Ausgangsmaterial	Minusell-Zelle	

Tabelle 2.1

Effusionszellen an der "Eiko-A" Hauptkammer

Das zu bewachsende Substrat ruht auf dem Manipulator. Dieser kann um zwei Achsen rotiert werden: Manuell um die horizontale Achse und motorgestützt um die vertikale Achse. Eine Drehung um hie horizontale Achse dreht von der Schleus-Position (Probe zeigt zur Ladekammer) zur Wachstumsposition (Probe zeigt nach unten zu den Zellen)

¹⁶ Von engl. to crack sth. – etwas aufbrechen, knacken

und zur Flussmessposition (Druckmessröhre zeigt nach unten zu den Zellen). Während des Wachstums wurde das Substrat mit circa zehn Umdrehungen min⁻¹ um die vertikale Achse rotiert, um geometrisch bedingte Ungleichheiten in der Materialabscheidung zu verhindern. Die Steuerung und Kontrolle der Substrattemperatur erfolgten über ein Thermoelement und ein Pyrometer.

2.4 Lithografie und Bauteil-Prozessierung

"Lithographie" vom griechischen *"\lambdai\theta o \varsigma lithos"* – Stein und *"\rho \dot{\alpha} \varphi \varepsilon \iota v graphein"* – schreiben bedeutet wörtlich *"mit Steinen schreiben"* und besitzt in der Halbleitertechnik seine Wortbedeutung nur noch im übertragenen Sinn. Im Sinne der optischen Lithographie beschreibt sie den zentralen Prozess des Übertrags einer vorgegebenen Struktur (Maske) über ein Belichtungsverfahren auf die Probe – ähnlich einer Photographie. In Kombination aus lithografischen und weiterführenden Prozessschritten, wie beispielsweise dem Entwickeln des optischen Lacks oder dem Ätzen des Halbleitermaterials, kann die Probe sowohl in lateraler Richtung strukturiert (z. B. geätzt) als auch in selektiven Bereichen Material aufgebracht werden (z. B. Aufdampfen metallischer Kontakte). Eine inhaltlich treffendere Übersetzung für optische Lithographie ist folglich *"mit Licht in Steine schreiben"*.

Für die Untersuchung von DQWs im GaSb/InAs-System ergeben sich hier Besonderheiten im Vergleich zur Prozessierung von z. B. GaAs-QWs oder aber optischen Bauelementen im GaSb/InAs-System. Diese werden in Abschnitt 3.3 ausführlich besprochen. Hier werden die notwendigen Grundlagen eingeführt.

UV-Lithografie

Optische Lithografie ist ein schnelles Übertragungsverfahren einer Struktur von einer Schattenmaske auf eine Probe. Hierzu wird ein lichtsensitiver Lack zuerst selektiv belichtet und anschließend entwickelt. Dabei ist zwischen positivem und negativem Lack zu unterscheiden. Während negativer Lack unter Lichteinstrahlung polymerisiert und gegen den Entwickler unempfindlich wird, verliert positiver Lack unter Lichteinstrahlung seine Struktur und wird beim Entwicklungsschritt gelöst. Diese Schritte sind in Abbildung 2.8 dargestellt. Im Rahmen dieser Arbeit wurden alle optischen Belichtungen mit ultraviolettem (UV) Licht vorgenommen. UV-Licht hat gegenüber länger-welligem Licht einen Auflösungsvorteil, der sich im Abbe-Limit [107]–[110] begründet.

Anschließend an die Belichtung und Entwicklung folgte entweder ein Strukturierungsschritt oder die Abscheidung weiterer Materialien. Das eigentliche Layout setzt sich aus unterschiedlichen Lagen der zu übertragenden Maske zusammen. So zeigt die erste Lage einer Maskenserie z. B. die Struktur des Hall-Barrens¹⁷, der in die Heterostruktur übertragen werden soll und die zweite Lage die Kontakte, die im Anschluss aufgedampft werden sollen. Bei der Kombination mehrerer Maskenlagen ist die Wiederausrichtungsgenauigkeit als kritische Größe zu beachten.



Abbildung 2.8 UV-Lithographieverfahren

Schematische Darstellung der optischen Belichtung mit Positivlack (links) und Negativlack (rechts).

Ätzprozesse

Nach dem Belichtungsschritt folgt ein Strukturübertrag der Maske auf die Probe. Der Ätzprozess trägt überall Material ab, nur die vom Lack geschützten Bereiche bleiben unberührt (s. Abbildung 2.9).

Grundlegend wird bei den Ätzprozessen in zwei große Gruppen unterteilt. Auf der einen Seite stehen die Nassätzverfahren, auf der anderen Seite die Trockenätzverfahren. Während Nassätzverfahren immer einen chemischen Prozess zum Materialabtrag nutzen, kann beim Trockenätzverfahren entweder physikalischer oder che-



Abbildung 2.9 Schematische Darstellung des Strukturübertrags mit Hilfe eines Ätzprozesses.

mischer Abtrag stattfinden sowie kombiniert werden. Nasschemische Ätzverfahren ätzen vorwiegend isotrop; Verfahren mit physikalischem Anteil besitzen eine Vorzugsrichtung. Hierdurch kann ein höheres Aspekt-Verhältnis erreicht werden und die Struktur der Maske kann definierter in die Halbleiterstruktur übertragen werden. Jedoch kann der physikalische Anteil eines Ätzverfahrens auch zu einer Schädigung der Kristallstruktur führen.

¹⁷ engl. Hall bar

Elektron-Zyklotron-Resonanz-Trockenätzen

Das Elektron-Zyklotron-Resonanz- (ECR)¹⁸ Methode ist eine Vertreterin aus der Gruppe des Reaktiven-Ionen-Äztens (RIE)¹⁹. Hierbei wird der physikalische Abtrag in der Regel durch Argon-Ionen mit einem chemischen Chlorgas-Prozess kombiniert. Oberhalb der Probe wird über eine Mikrowellenquelle ein Plasma aus Argon und Chlorgas gezündet. Die entstehenden Argon-Ionen werden auf die Probe beschleunigt und tragen physikalisch Material ab. Dieser Prozess ist anisotrop und ätzt vorzugsweise nur in vertikaler Richtung. Das entstehende hochreaktive Chlor hingegen ätzt chemisch und isotrop. Über das Mischungsverhältnis der Gase sowie die Leistung der eingekoppelten Mikrowellenstrahlung lassen sich die Prozessparameter kontrollieren. Durch ECR-Ätzen können gute Aspekt-Verhältnisse und hohe Ätzgeschwindigkeiten bei geringer Schädigung des Probenmaterials erreicht werden [111]. Allerdings besitzt das ECR-Verfahren zwei Nachteile. Einerseits kann sich beim ECR-Prozess abgetragenes Material in der Nähe der Ätzstelle wieder ablagern und zu einer Verunreinigung der Oberfläche führen, andererseits schädigt das Ionen-Bombardement die Oberfläche und führt zur Einlagerung von Argon-Ionen in den Halbleiterkristall [112].

Nassätzen

Unter Nassätzen werden alle Ätzverfahren verstanden, die in einem flüssigen Medium stattfinden. Nassätzverfahren sind (z.T. abhängig von der Kristallsymmetrie) isotrope Ätzverfahren. Der Materialabtrag findet somit nicht bevorzugt in Wachstumsrichtung (z-Richtung) statt, sondern zu gleichen Teilen auch in der Ebene (x- und y-Richtung). Das führt im Regelfall zu einem unerwünschten Unterätzen der Maske.

Nassätzen beruht auf der chemischen Reaktion der Ätze mit dem Probenmaterial. Unterschiedliche Materialien werden dadurch verschieden schnell geätzt. Dies kann als Voroder als Nachteil betrachtet werden. Einerseits können somit ausgewählte Schichten den Ätzprozess an der gewünschten Stelle stoppen oder bestimmte Schichten der Heterostruktur abgetragen und andere Schichten stehen gelassen werden [113]. Andererseits erfordert das homogene Ätzen einer Struktur aus unterschiedlichen Materialien eine genau abgestimmte Mischung unterschiedlicher Nassätzen.

Eine gute Zusammenfassung zu chemischen Ätzverfahren in Bezug auf III-V Halbleiter gibt das Übersichts-Paper von Clawson [114].

¹⁸ Von engl. electron cyclotron resonance

¹⁹ Von engl. reactive ion etching

2.5 Messtechnik

In diesem Abschnitt werden die verwendeten Methoden der Charakterisierung sowie der Aufbau der Messplätze dargestellt. Das Augenmerk liegt auf der prinzipiellen Funktionsweise und dem daraus für diese Arbeit gewünschten Erkenntnisgewinn. Für tiefergehende Beschreibung und vollständiges Verständnis der jeweiligen Methode wird an entsprechender Stelle auf weiterführende Literatur verwiesen.

Bildgebende Verfahren

Eines der bekanntesten und ältesten bildgebenden Verfahren ist die optische Mikroskopie. Über das Zusammenspiel unterschiedlicher Linsen (v. a. Objektiv und Okular) kann eine Vergrößerung des zu betrachtenden Objektes erreicht werden. Optische Mikroskopie wurde im Rahmen dieser Arbeit verwendet, um Strukturen im Bereich mehrerer µm und größer zu betrachten. Weiter wurde die epitaktische Oberfläche der Proben mit optischer Mikroskopie untersucht. Dadurch ließen sich erste Rückschlüsse auf die Qualität des Wachstums schließen. Klassische Lichtmikroskopie ist durch das Abbe-Limit [107]– [110] auf Strukturgrößen größer als die Hälfte der verwendeten Wellenlänge beschränkt, was für kurzwelliges sichtbares Licht in einer Auflösungsbeschränkung von ca. 200 nm resultiert.

Für die Untersuchung kleiner Strukturen und Details – im Nanometerbereich – wurde auf die Rasterelektronenmikroskopie (REM) zurückgegriffen. Wie der Name beschreibt, wird bei dieser Methode, die 1938 erstmalig von M. v. Ardenne gezeigt wurde [115], die Probe mit einem Elektronenstrahl abgerastert. Die Auflösung ist hauptsächlich technisch limitiert und beträgt wenige nm. Der Bildkontrast ist u. a. von der Topographie, der Ausrichtung betrachteter Flächen und dem Material abhängig. Aufladungserscheinungen können vor allem an Ecken, Kanten oder sehr kleinen sowie isolierenden Strukturen auftreten und den Eindruck verfälschen. Für eine bessere Unterscheidbarkeit verschiedener Materialien wurden alle Aufnahmen von Spaltkanten – mit Blick auf die Heterostruktur – vor den Aufnahmen mit TMAH²⁰ angeätzt. Weitere Informationen zu Rasterelektronenmikroskopie finden sich in Quelle [116].

Hochauflösende Röntgendiffraktometrie

Hochauflösende Röntgendiffraktometrie (HRXRD²¹) ist eine Methode zur Untersuchung der Kristallstruktur. Sie beruht auf der Beugung von Röntgenstrahlung an den Netzebenen des Kristalls, die nach der Bragg Bedingung [117] konstruktiv interferiert. Mit Hilfe der HRXRD wird der Abstand der Kristallebenen gemessen. So bestimmt sich, entweder direkt oder im Vergleich von Messung und Simulation, die Qualität der Kristallstruktur,

²⁰ Tetramethylammoniumhydroxid

²¹ HRXRD von engl. high resolution x-ray diffraction

die Komposition des Materials und/oder die Schichtdicke. Besondere Bedeutung kommt der HRXRD im Blick auf die Gitter(fehl)anpassung sowie die Auswertung von Übergitter-Schichtdicken zu. Die im Rahmen dieser Arbeit gezeigten HRXRD Aufnahmen sind – soweit nicht anders genannt – ω – 20 Scans. Aufgenommen wurde sie an einem PANalytical HR-Röntgendiffraktometer mit einer monochromen Kupferquelle mit einer Wellenlänge $\lambda_{K_{\alpha}} = 1,540511$ Å. Weiterführende Informationen zur Röntgendiffraktometrie finden sich u. a. in [118].

Transmissionselektronenmikroskopie

Ähnlich zu REM werden auch bei der Transmissionselektronenmikroskopie (TEM) Elektronen zur Abbildung verwendet. Allerdings durchdringen die Elektronen bei der TEM die notwendigerweise dünne Probe und geben Aufschluss über den Aufbau des Materials. TEM wurde erstmalig 1931 von M. Knoll und E. Ruska realisiert [119] und 1986 mit dem Nobelpreis für Physik honoriert. TEM Messungen wurden mit einem FEI Titan 800-30 durchgeführt. Mit unterschiedlichen Linsen-Konfigurationen lassen sich bei TEM unterschiedlich geartete Messungen durchführen. Zuerst ist hier das selektive Beugungsmuster (SADP²²) zu nennen, mit dessen Hilfe die Kristallgruppe bestimmt sowie Rückschlüsse auf mono- oder poly-Kristallinität des untersuchten Bereichs der Probe gezogen werden können. Weiter wurde im Rahmen der Arbeit der STEM²⁵ Modus verwendet, bei dem (ähnlich zu REM) die Probe mit dem Elektronenstrahl abgefahren wird, um so ein detailreiches Bild eines größeren Ausschnittes zu erzeugen. Es ist möglich, einzelne Atome in der Halbleiterstruktur aufzulösen. Detailliertere Informationen zur Funktionsweise der beiden Messmethoden und der Technik der TEM finden sich z. B. in [120].

Magnetotransportmessungen

Eine viel genutzte Möglichkeit, die elektrischen Eigenschaften eines Materials zu untersuchen, sind Magnetotransportmessungen. Über den Hall-Effekt, bzw. in zweidimensionalen Materialien den Quanten-Hall-Effekt, lassen sich sowohl die Ladungsträgerart und dichte als auch die Beweglichkeit der am Transport beteiligten Ladungsträger bestimmen. In Abbildung 2.10 ist schematisch der Messaufbau zu Magnetotransportmessungen gezeigt. Alle durchgeführten Messungen wurden – soweit nicht anders gekennzeichnet – im Heliumbad gemessen, d. h. bei einer Temperatur von 4,2 K. Alternativ konnte anstelle eines Frontgates (V_{tg}) die Struktur über eine LED beleuchtet werden.

Sind mehrere Ladungsträgerarten am Transport beteiligt, d. h. tragen Löcher und Elektronen gleichzeitig zum Transport bei, führt dies zu einem nicht linearen Verhalten der Hall-Spannungs-Kurve für niedrige B-Felder. So besitzt eine Hall-Spannungs-Gerade für

²² SADP von engl. selective area diffraction pattern
überwiegend elektronischen Transport (mit Lochanteil am Transport) für hohe B-Felder eine positive Steigung, allerdings um B = 0 T eine negative Steigung.



Abbildung 2.10 Schematischer Aufbau zu Magnetotransportmessungen Blau zeigt den Hall-Barren, der aus der Heterostruktur gefertigt wird, Gold die Kontakte. Der Eingekoppelte Probenstrom wurde über den Spannungsabfall U_{vor} am Vorwiderstand R_{vor} ermittelt. Darüber können aus der Messung der Längs- und Hall-Spannung – U_{xx} respektive U_{xy} – die jeweiligen Widerstände berechnet werden. Rötlich transparent ist das Frontgate dargestellt. Über die daran angelegte Spannung V_{tg} konnte die Probe elektrostatisch moduliert werden.

Dieses Verhalten kann mit dem klassischen 2-Ladungsträgermodell in Gleichung 8 angepasst werden [22][121]. Dabei ist μ_e die Elektronenmobilität, *n* die Elektronendichte, μ_h die Lochmobilität und *p* die Lochdichte.

$$R_{xy} = \frac{+B}{e} \frac{(n\mu_e^2 - p\mu_h^2 + B^2 \mu_e^2 \mu_h^2 (n-p))}{(n\mu_e + p\mu_h)^2 + B^2 \mu_e^2 \mu_h^2 (n-p)^2}.$$
8

Für $B \gg 1/\mu_e$ sowie $B \gg 1/\mu_h$ lässt sich Gleichung 8 nähern und es gilt:

$$R_{xy} \approx \frac{B}{e(p-n)}$$
 für $B \gg 1/\mu_e$ sowie $B \gg 1/\mu_h$ 9

Weiter gilt für Messpunkte ohne Magnetfeld:

$$R_{xx} = L \times (eW(n\mu_e + p\mu_h)^{-1})$$
 für $B = 0$ 10

Dabei sind L und W die Länge und Breite der Hallstruktur.

Für die Messungen standen zwei unterschiedliche Layouts zur Verfügung, die mit Hilfe des in Abschnitt. 3.4 beschriebenen Prozesses in die Heterostruktur übertragen wurden. Vor allem das hier gezeigte Hall-Barren-Layout 2 wurde iterativ verbessert. Es soll im Folgenden ausschließlich die verwendete Version gezeigt sowie die Motivation für einzelne Details begründet werden.

Hall-Barren-Layout 1

Das Hall-Barren-Layout 1 wurde für die elektrische Charakterisierung von GaSb/InAs DQWs verwendet, allerdings stand hierfür kein Isolations- und Frontgate-Level zur Verfügung. Vorteil von Hall-Barren-Layout 1 ist das Vorhandensein mehrerer Kontakte zum Spannungsabgriff.

In konsekutiven Belichtungsschritten werden unterschiedliche Level des Layouts übertragen. Im ersten Level wird die Struktur der Hall-Barren übertragen. Der Mittelsteg ist 20 μ m breit, die Zuleitungen jeweils 10 μ m. Der Abstand der einzelnen Zuleitungen zueinander beträgt 20 μ m. Nach dem Strukturübertrag folgt das Kontaktlevel. Die Kontakte befinden sich jeweils 30 μ m zurückgesetzt auf den Zuleitungen und besitzen die gleichen Abmessungen wie die Struktur.

Hall-Barren-Layout 2

Für das Hall-Barren-Layout 2 wurden im Vergleich zu Layout 1 einige Änderungen vorgenommen. Einerseits wurde die Struktur auf vier Spannungsabgriffe verkleinert, andererseits wurden die Kontaktpads in Level 2 schmaler gestaltet als die darunterliegende Struktur. Ziel dieser Verkleinerung war es, einen Kurzschluss zwischen Kontakten und Substrat zu unterbinden, falls a) die Struktur unterätzt wird, sprich kleiner wird als die Struktur in der Maske oder b) die Struktur im Rahmen der Ausrichtung des 2. Levels nicht ideal getroffen wird. Diese beiden Effekte addieren sich auf, eine Verkleinerung der Gold-Zuleitungen um 1,5 μ m pro Seite wurde als ausreichend befunden. Die Kontakte sind nur 1 μ m von der Leitungsbahn zurückgesetzt. Anschließend wird flächig ein Oxid (z. B. ein SiO₂/Si₃N₄ Übergitter) als Oberflächenpassivierung und Gate-Dielektrikum aufgebracht. Darauf wird das Frontgate abgeschieden (rötlich transparent in Abbildung 2.11a). Hierbei ist zu beachten, dass das Frontgate alle Bereiche zwischen Strom Ein- und Auskopplung sowie Spannungsabgriff bedeckt, da sonst undefinierte Bereiche die Messung beeinflussen können. Die vom Gateoxid bedeckten Kontaktpads werden über einen Trockenätzprozess von Oxid befreit und anschließend wiederholt mit Gold bedampft.





Abbildung 2.11 Darstellung des Hall-Barren-Layouts 2

a) Vergrößerung des eigentlichen Hall-Barren Bereichs. Blau zeigt die Heterostruktur, Gold die Kontakte, transparent rötlich ist das Frontgate angedeutet. **b)** optische Mikroskopaufnahme ohne Frontgate. Über der Struktur sind Gold-Kontaktzuleitungen abgebildet. Helle Reflexe stammen von Goldkügelchen, die sich während des Aufdampfprozesses bilden

3 Optimierung der GaSb/InAs-Probenherstellung

"Nicht mit Erfindungen, sondern mit Verbesserungen macht man Vermögen." Henry Ford

Fortschritt bedeutet nicht zwangsläufig eine revolutionäre Veränderung. Fortschritt kann auch die schrittweise Entwicklung sein. Entweder evolutionär durch Versuch und Auslese oder aber durch die gezielte Weiterentwicklung und Verbesserung – ausgehend von bestehendem Wissen hin zu wissenschaftlicher Erkenntnis.

In dieser Arbeit zeigte sich, dass eine etablierte Kombination für GaSb-basierte Halbleiterlaser [95], [96] und RTDs [98], [122], [123] aus Wachstums-, Lithographie- und Strukturierungsprozessen nicht direkt für die Anforderungen elektrischer Transportuntersuchung an GaSb/InAs-Doppelquantenfilmen geeignet war. Neben den in GaSb/InAs Heterostrukturen zu erwartenden Herausforderungen – wie z. B. der Unterdrückung von Oberflächenleckströmen durch geeignete Wahl der Prozesse und Chemikalien – zeigten sich unerwartete Hindernisse. So wies z. B. die Kontaktierung des Doppelquantenfilms eine zuerst nicht erwartete Komplexität auf. Von diesen etablierten Wachstums-, Lithographie- und Strukturierungsprozessen ausgehend, wurde ein an die neuen Notwendigkeiten angepasster, verbesserter Prozess entwickelt

Im Vorlauf der Probenherstellung wurden die Bandprofile und Bandstrukturen der Heterostrukturen mittels des Schrödinger-Poisson-Solvers *nextnano* simuliert. So konnten bereits vor dem Wachstumsschritt passende Strukturparameter zur Fabrikation bestimmt werden (Abschnitt 3.1). Charakteristische Kenngrößen wie die Hybridisierung des Schwerloch- sowie des Leichtlochzustandes im GaSb-Film mit dem Elektronenzustand im InAs-Film wurden auf ihre Schichtdickenabhängigkeit hin untersucht. Die Simulation der Eigenschaften einer Heterostruktur gibt die Möglichkeit, einen breiten Parameterraum zu variieren. Die Simulation ist unabhängig von rein experimentellen Fragestellungen. Dies ermöglicht eine Konzentration auf die physikalischen Eigenschaften der Struktur.

Das epitaktische Wachstum von GaSb/InAs-DQW-Strukturen wurde zu Beginn dieser Arbeit auf GaAs-Substrat durchgeführt. In Abschnitt 3.2 wird der Wechsel auf native GaSb-Substrate durch eine geringere Defektdichte begründet. Weiter werden hier Versuche diskutiert, eine hinlängliche Isolation des Backgates durch das Einbringen einer dickeren unteren Barrieren-Schicht zu erreichen. Für versetzungsfreies Kristallwachstum ist ein Wechsel von binären AlSb Barrieren auf gitterangepasstes AlAsSb notwendig.

Anschließend wird in Abschnitt 3.3 die Optimierung des Verarbeitungsprozesses beschrieben. Zuerst werden Vor- und Nachteile materialselektiver Nassätzen für unterschiedliche Anwendungen aufgezeigt. In den Abschnitten 3.3.2 und 3.3.3 werden die Optimierung der Cocktail-Nassätze bzw. des ECR Trockenätzprozesses gezeigt, bevor diese in Abschnitt 3.3.4 zu einem Ätzverfahren kombiniert werden. Oxide, die während der Lagerung oder aber während des Prozesses an den jeweiligen Oberflächen entstehen, bilden im GaSb/InAs System einen relevanten Verlust- oder Kurzschlusskanal, der die Ergebnisse der Messungen verfälscht. In Abschnitt 3.3.5 wird dargestellt, wie diese Oxide vor der Weiterverarbeitung entfernt werden können. Die Auswirkungen dieser Entfernung wird über Transportmessungen untersucht. Ein positiver Einfluss der Oxidentfernung konnte in Form einer Leckstrom-Reduzierung verifiziert werden. Nach der Fertigung der Bauteilstruktur erfolgt die notwendige Kontaktierung zur Strom-Einkopplung bzw. zum Spannungsabgriff. In Abschnitt 3.3.6 werden drei unterschiedliche Ansätze zur Kontaktierung erörtert. Eine direkte Kontaktierung des InAs-Films stellt die bestmögliche Wahl im Hinblick auf Kontaktwiderstand und Kurzschlusskanäle dar.

Mit dem vorgestellten verbesserten Prozess ist eine reproduzierbare Probenfabrikation sichergestellt. Der Prozess ist mittlerweile am Lehrstuhl als *"Best-Practice-Verfahren"* zur Fabrikation von GaSb/InAs-DQW-Strukturen etabliert und wird in Abschnitt 3.4 beschrieben. Dabei werden die in Abschnitt 3.1 bis 3.3 gewonnen Erkenntnisse zusammengefasst und um weitere Punkte ergänzt.

3.1 Simulationen

Die wichtigsten charakteristischen Größen in der Heterostruktur der GaSb/InAs Strukturen sind die Schichtdicken des InAs Films d_{InAs} und des GaSb Films d_{GaSb}. Wie in Abschnitt 2.1 gezeigt, ist die Kombination dieser beiden Schichtdicken die grundlegende Bedingung für die energetische Anordnung der Elektronen- und Lochzustände. Mittels numerischer Simulationen wurden die Energiewerte des niedrigsten Lochzustands im GaSb-Film HH1 – des Schwerlochzustandes ²³ – und des elektronischen Grundzustands E1 im InAs-Film für unterschiedliche Schichtdicken bestimmt und die Differenz HH1 - E1 gebildet. Diese Differenz ist ein wichtiger Parameter, sie gibt die Inversion des Loch- und des Elektronenzustandes wieder und wird im Folgenden als Inversion bezeichnet. Ein negativer Wert gibt eine triviale Bandordnung wieder, ein positiver Wert eine invertierte Bandordnung (HH1 über E1). Vergleiche hierzu Abbildung 3.1.



Abbildung 3.1 Schematische Darstellung der Lage des E1 und HH1 Niveaus Teilbild **a)** zeigt den trivialen Fall, E1 liegt über HH1. **b)** Für geeignete Kombinationen aus d_{InAs} und d_{GaSb} ergibt sich ein invertierter Bandverlauf, der ursprüngliche E1 Zustand liegt unterhalb vom ursprünglichen HH1 Zustand.

Alle hier gezeigten Simulationen wurden mit dem kommerziellen Software-Tool nextnano erstellt. Nextnano bietet die Möglichkeit zur Berechnung unterschiedlicher optoelektronischer Halbleiterelemente. Über ein 8-Band k.p-Modell wurden die Bandstruktur, die Wellenfunktionen und die Energiewerte der Doppelquantenfilme bestimmt. Mittels störungstheoretischer Betrachtung der Lösungen der Schrödingergleichung, ausgehend von der Lösung für Position k = 0, kann die Dispersionsrelation bestimmt werden. Für alle Simulationen wurden die von Liu et al. [17] verwendeten Materialparameter benutzt.

Abbildung 3.2 zeigt die Inversion in Anhängigkeit von d_{GaSb} und d_{InAs} . Die Energiedifferenz HH1-E1 ist farbkodiert; negative Werte (grün) entsprechen einer normalen Bandordnung (E1 über HH1) und positive Werte (lila) einer invertierten Bandordnung (HH1 über E1). Mit zunehmender Schichtdicke sinkt die Quantisierungsenergie der beiden Zustände. Das Elektronenniveau sinkt ab, während das Lochniveau ansteigt. Weiter zeigt sich, dass – bedingt durch die höhere effektive Masse – der Einfluss der GaSb-Trogbreite auf das Lochniveau kleiner ist als der der InAs Schichtdicke auf das Elektronenniveau. Für die Realisation invertierter Schichtstrukturen lässt sich ableiten, dass eine kritische InAs Schichtdicke von $d_{k, InAs} > 8$ nm notwendig ist, damit sich das HH1 Niveau über das Niveau E1 hebt. Für GaSb-Schichtdicken von $d_{GaSb} > 8$ nm kann keine signifikante Auswirkung mehr auf die Inversion und somit auf die Grenze des Phasenübergangs beobachtet werden. Für die

²³ Von engl. heavy hole

Produktion von invertierten Heterostrukturen bedeutet dies, dass hier ein Maximalwert vorhanden ist. Sowohl für d_{InAs} als auch für d_{GaSb} gilt es, die Schichten so breit wie notwendig, aber so dünn wie möglich zu halten. Unnötig hohe Schichtdicken begünstigen einerseits eine ungewollte Leitfähigkeit im 2D-Material, die einen möglichen Randkanaltransport kaschiert. Andererseits nimmt der Überlapp der Elektronen- und Loch-Wellenfunktionen ab, je breiter die Schichten werden.



Abbildung 3.2 Inversion zwischen HH1 und E1 Niveau in Abhängigkeit der QW-Schichtdicken Die Differenz der Energie der HH1 und E1 Zustände gibt die Bandordnung bzw. den Grad der Inversion des Elektronen- und Lochzustandes an. Damit entsprechen positive Werte (lila, für dickere Schichten) einer invertierten Bandanordnung und negative Werte (grün, für dünner werdende Schichten) einer trivialen Struktur.

In den Berechnungen, die Abbildung 3.2 zugrunde liegen, wurde nur das Schwerlochband berücksichtigt. Um eine Inversion der Leichtlochzustände mit in Betracht zu ziehen, wurden ausgewählte Schichtdicken (8 nm, 10 nm, 12 nm und 15 nm) einer differenzierten Betrachtung unterzogen. Hierfür wurde der Verlauf des elektronischen Grundzustands E1, des Grundzustands des Schwerlochs (HH1) sowie des Grundzustands des Leichtloches (LH1) bestimmt und in Abbildung 3.3 a) bis Abbildung 3.6 a) in Abhängigkeit der GaSb-Schichtdicke aufgetragen. Zusätzlich wurde die Differenz zwischen Loch- und Elektronenzuständen gebildet, sprich die Inversion bestimmt. Dies ist jeweils in Teilbildern Abbildung 3.3 b) bis Abbildung 3.6 b) gezeigt.

Für die in Abbildung 3.3 a) bis Abbildung 3.6 a) dargestellten Werte wurde jeweils die Energie für HH1, LH1 und E1 am Γ-Punkt bestimmt. Der Energiewert für E1 bei $d_{GaSb} = 0$ nm entspricht dem eines reinen InAs Quantenfilms. Da ohne GaSb-Film keine Lochzustände existieren, wird für $d_{GaSb} = 0$ nm kein Wert für LH1 und für HH1 angegeben. Als Nullniveau der Energie wird jeweils die InAs Valenzbandkante verwendet.

Für $d_{InAs} = 8$ nm zeigt sich in den Simulationen in Abbildung 3.3 a) ein konstant leicht steigendes Energieniveau für E1 ($\approx +10$ meV) mit zunehmender GaSb Schichtdicke. Für kleine d_{GaSb} steigen sowohl die Energie für LH1 als auch HH1 stark an. Mit zunehmender GaSb Schichtdicke verlangsamt sich dieser Anstieg und flacht für $d_{GaSb} = 8$ nm ab. Das HH1-Niveau nähert sich dem E1 Zustand asymptotisch an, erreicht diesen aber nicht. Das LH1-Niveau ist für den gesamten Bereich energetisch unter dem HH1-Zustand angesiedelt.

In Abbildung 3.3 b) ist dies in der Inversion, der Differenz aus HH1-E1 sowie aus LH1-E1 noch einmal verdeutlicht. Auch für Schichtdicken $d_{GaSb} > 15$ nm kann die kritische Energie einer Inversion $E_k = 0$ meV nicht überschritten werden.



Abbildung 3.3 Simulierter Energieverlauf für d_{InAs} = 8 nm gegen die GaSb Schichtdicke d_{GaSb} **a)** Energie des ersten Schwerlochzustands (HH1), Leichtlochzustands (LH1) und Elektronenzustands (E1). **b)** Die Differenz aus der Energie des Lochzustandes minus der Energie des Elektronenzustandes ergibt die Inversion. Wird die kritische Energie E_k = 0 überschritten, liegt eine invertierte Schichtstruktur vor. Für d_{InAs} = 8 nm ist dies unabhängig von d_{GaSb} nicht zu beobachten.

Für eine InAs-Schichtdicke von 10 nm ist in Abbildung 3.4 a) der Verlauf der einzelnen Energieniveaus ähnlich. E1 steigt von $d_{GaSb} = 0$ nm bis $d_{GaSb} = 15$ nm annähernd linear um ≈ 20 meV an. HH1 und LH1 steigen für kleine d_{GaSb} stark an, nähern sich dann aber asymptotisch einem Wert von ≈ 145 meV bzw. flachen ab. Im Gegensatz zu $d_{InAs} = 8$ nm übersteigt das HH1 Niveau das E1-Niveau für GaSb-Schichten dicker als 4 nm. Das LH1-Niveau verbleibt unterhalb des E1-Niveaus, folglich auch unterhalb es HH1-Niveaus.

In der Auftragung der Inversion für $d_{InAs} = 10$ nm in Abbildung 3.4 b) zeigt sich, dass ab einer kritischen Schichtdicke von $d_{GaSb} > d_k \approx 4$ nm eine Inversion des HH1 Niveaus mit dem E1 Niveau existiert. Für $d_{GaSb} = 9$ nm liegt ein Maximum der Inversion mit $E_{gap} = 20,5$ meV vor. Für größere d_{GaSb} nimmt die Inversion wieder ab. Dies ergibt sich aus einer linearen Zunahme von E1 und einem abflachen in HH1. Für $d_{InAs} = 10$ nm ergibt dies eine maximale sinnvolle Schichtdicke $d_{GaSb} = 9$ nm. Für das LH1 Niveau liegt keine Inversion vor.



Abbildung 3.4 Simulierter Energieverlauf für d_{InAs} = 10 nm gegen die GaSb Schichtdicke d_{GaSb} **a)** Energie des ersten Schwerlochzustands (HH1), Leichtlochzustands (LH1) und Elektronenzustands (E1). **b)** Die Differenz aus der Energie des Lochzustandes minus der Energie des Elektronenzustandes ergibt die Inversion. Für d_{GaSb} > 4 nm liegt eine Inversion des HH1 Zustands und des E1 Zustandes vor. Es bildet sich eine maximale Bandlücke von $E_{gap} \approx 20,5$ meV aus. Für das LH1 Niveau liegt keine Inversion vor.

Für d_{InAs} = 12 nm zeigt sich in Abbildung 3.5 qualitativ ein analoges Bild zu d_{InAs} = 10 nm (vgl. Abbildung 3.4). HH1 und LH1 steigen für kleine GaSb Schichtdicken stark an und flachen für steigende d_{GaSb} ab. Für eine kritische Schichtdicke von d_{GaSb} >d_k ≈ 3 nm übersteigt das HH1 Niveau das E1 Niveau. E1 verhält sich nicht mehr konstant linear, die Steigung ist für d_{GaSb} zwischen 6 nm und 12 nm größer als in den äußeren Bereichen.

In der Auftragung der Inversion in Abbildung 3.5 b) überschreitet HH1-E1 die kritische Energie E_k für eine kritische Schichtdicke von $d_k \approx 3$ nm. Das Maximum der Inversion verschiebt sich zu 7 nm GaSb Schichtdicke und beträgt $E_{gap} \approx 37$ meV. Der, verglichen mit InAs = 8 nm bzw. 10 nm, stärkere Anstieg des E1 Niveaus führt für höhere GaSb Schichtdicken zu einer verstärkten Abnahme in der Inversion. Für das LH1 Niveau liegt keine Inversion vor.



Abbildung 3.5 Simulierter Energieverlauf für d_{InAs} = 12 nm gegen die GaSb Schichtdicke d_{GaSb} a) Energie des ersten Schwerlochzustands (HH1), Leichtlochzustands (LH1) und Elektronenzustands (E1). b) Die Differenz aus der Energie des Lochzustandes minus der Energie des Elektronenzustandes ergibt die Inversion. Für $d_{GaSb} > 3$ nm liegt eine Inversion des HH1 Zustands und des E1 Zustandes auf. Es bildet sich eine maximale Bandlücke von $E_{gap} \approx 37$ meV aus. Für das LH1 Niveau liegt keine Inversion vor.

Für $d_{InAs} = 15$ nm (Abbildung 3.6) zeigt sich ein für geringe $d_{GaSb} \leq 6$ nm ein analoger Verlauf, allerdings liegt ab einer kritischen Schichtdicke $d_{k,LH1} \approx 6$ nm auch Inversion für LH1 mit E1 vor. Hierfür wird eine Reduktion der Hybridisationsbandlücke erwartet (vgl. [24]). Da eine Hybridisierung mit dem Leichtlochzustand somit nicht gewünscht ist, ergibt das ein oberes Limit für die InAs Schichtdicke.



Abbildung 3.6 Simulierter Energieverlauf für $d_{InAs} = 15 nm$ gegen die GaSb Schichtdicke d_{GaSb} **a)** Energie des ersten Schwerlochzustands (HH1), Leichtlochzustands (LH1) und Elektronenzustands (E1). Für $d_{InAs} = 15 nm$ übersteigt erstmalig LH1 das E1 Niveau. **b)** Die Differenz aus der Energie des Lochzustandes minus der Energie des Elektronenzustandes ergibt die Inversion. Für $d_{GaSb} > 3 nm$ liegt eine Inversion des HH1 Zustands und des E1 Zustandes auf. Für das LH1 Niveau liegt ab $d_{k,LH} = 6 nm$ Inversion vor.

Generell gilt, dass die Hybridisationsbandlücke Δ abseits von k=0 ihr Maximum für ähnliche d_k Werte erreicht. Für weiter steigende Schichtdicken fällt auch die Hybridisationsbandlücke.

Für binäre InAs/GaSb Doppelquantenfilme ergibt sich hieraus ein Parameterraum, in dem Heterostrukturen mit einer invertierten Bandstruktur gefertigt werden sollten. Neben der strukturbedingten Inversion bieten GaSb/InAs DQWs die Möglichkeit der elektrischen Verstimmung (s. Kapitel 3.4) sowie der optischen Verstimmung (s. Kapitel 5). Damit kann, bei einer Ausgangslage nahe des Inversionspunktes, in beide Richtungen geschoben werden. Dies ist v. a. im Hinblick auf die Beobachtung des Schaltvorganges von trivialer zu topologischer Lage wünschenswert.

Für die Betrachtung der Bandlücke abseits von k = 0 zeigte sich, dass Δ für Schichtdicken d_{GaSb} deutlich größer d_{krit} wieder abnimmt, bzw. schließt. Diese Limitierung unterstützt die Notwendigkeit, Zielstrukturen nahe des Inversionspunktes zu fertigen. Die InAs Schichtdicke sollte für Strukturen im invertierten Regime zwischen d_{InAs} > 8 und circa 12 nm liegen. Die GaSb Schichtdicke hat nur bis zu einer maximalen Schichtdicke von 8 nm bis 10 nm eine positive Auswirkung auf die Inversion. Zu dicke Schichten sind weiterhin im Hinblick auf trivialen Transport im 2D-Material sowohl für InAs als auch für GaSb zu vermeiden. Da die InAs Schichtdicke deutlich größere Auswirkung auf die Inversion hat, wurde in den Wachstumsserien die GaSb Schichtdicke konstant gehalten und die InAs Schichtdicke variiert (s. Kapitel 3.4).

3.2 Epitaktisches Wachstum

Nach der Definition eines geeigneten Parameterraums zur Herstellung von GaSb/InAs Doppelquantenfilmen durch Liu [17] et al. und Abschnitt 3.1 folgt die Beschreibung des epitaktischen Wachstums sowie dessen iterative Verbesserung. Alle in dieser Arbeit gezeigten GaSb/InAs Heterostrukturen wurden – wie in Abschnitt 2.3 beschrieben – mittels Molekularstrahlepitaxie auf der "Eiko-A"-Anlage gefertigt.

Zu Beginn dieser Arbeit wurden Proben auf GaAs Substrat mit GaSb-Quasi-Substrat hergestellt. Es wird dies und die Begründung, später auf native GaSb-Substrate zu wechseln, diskutiert. Mit dem Ziel, Leckströme zwischen den Quantenfilmen und dem Backgate zu unterbinden, wurden die binären AlSb Barrieren gegen dickere, gitterangepasste AlAsSb Barrieren getauscht. Die Erkenntnisse hierzu werden besprochen und es wird begründet, warum dieser Ansatz nicht weiterverfolgt wurde. Die Gitterkonstante von GaSb beträgt 6,096 Å und GaAs hat eine Gitterkonstante von 5,653 Å. Dies ergibt eine Gitterfehlanpassung von 7,83%, was ein direktes Wachstum der Quantenfilmstruktur in hoher Qualität auf GaAs-Substraten unmöglich macht. Es ist notwendig, ein sogenanntes Quasi-Substrat mit passender Gitterkonstante zu fertigen. Dabei müssen die entstehenden Defekte weit genug von der Oberfläche des Quasi-Substrates entfernt seien. In Anlehnung an Nguyen et al. [124] wurde die in Abbildung 3.7 gezeigte Struktur als Quasi-Substrat gefertigt. Sie besteht aus einer 100 nm GaAs Schicht zur Substratglättung, auf die anschließend eine 10 nm Nukleationsschicht AlAs aufgebracht wird, da sonst kein AlSb



Abbildung 3.7 Schichtaufbau des Quasi-Substrates

Wachstum realisiert werden kann. Darauf folgen 200 nm AlSb, um von einer Gitterkonstante von 5,653 Å auf 6,136 Å (AlSb) zu wechseln. In dieser Schicht sollen die entstehende Verspannung relaxieren und die Defekte lokalisieren. Darauf aufbauend wurden 2 μ m GaSb (6,096 Å) abgeschieden. Innerhalb dieser Schicht sollen alle Gitterdefekte, die sich in den unteren Schichten gebildet haben, relaxieren und ausreichend Abstand zur eigentlichen DQW-Struktur haben. Um verbleibende Verspannungen zu entfernen, wurden anschließend noch jeweils 10 Schichten je 2,5 nm AlSb und 2,5 nm GaSb als Übergitter abgeschieden. Darauf folgte die Doppelquantenfilm-Struktur.

Die meisten so gefertigten Strukturen zeigen in der optischen Analyse eine hohe Defektdichte. Eine reproduzierbare Fertigung hochqualitativer und v. a. vergleichbarer Strukturen war so nicht gewährleistet. Zeitgleich wurde von Nguyen et al. [36] gezeigt, dass Proben auf nativem GaSb Substrat zwei bedeutende Vorteile gegenüber auf GaAs aufbauendem Quasi-Substrat mit sich bringen. Erstens weisen Proben auf nativem GaSb Substrat im Vergleich zu identischen Proben auf GaAs eine höhere Mobilität auf. Zweitens bieten Defekte, die sich vom GaAs Substrat bis zur Struktur durchziehen, einen möglichen Kurzschluss-Kanal zwischen Substrat (Backgate) und Quantenfilm. Mit der Ausnahme von Probe *opt1* (Kapitel 5) wurden alle vorgestellten Proben auf n-GaSb gefertigt.



Abbildung 3.8 Vergleich der XRD-Kurven von Proben auf nativem Substrat und Quasi-Substrat. Proben auf nativem Substrat (schwarz) zeigen geringere Peakbreiten und bessere Kristallqualität als Proben auf GaAs Substrat mit GaSb Quasisubstrat (orange).

Eine Herausforderung bei der Realisation des topologischen Zustandes in GaSb/InAs DQWs ist der Leckstrom-freie elektrostatische Betrieb des Backgates. Als Backgate wurde das n-dotierte Substrat kontaktiert. Als dielektrische Schicht sollte hierfür die untere AlSb Barriere mit hoher Bandlücke dienen. Die isolierende Wirkung ist dabei nur in wenigen Proben gegeben. Mit dieser Herausforderung sahen sich mehrere der im Feld der GaSb/InAs DQWs arbeitende Gruppen konfrontiert [34].

Eine Verbreiterung der unteren Barriere um einige 50-100 nm bot einen vielversprechenden Ansatz zur Verbesserung der Isolationswirkung. In der Vorhersage von Liu et al. [17] wird die binäre AlSb Variante vorgeschlagen. AlSb besitzt eine Gitterfehlanpassung von 0,66 % zu GaSb und somit eine kritische Schichtdicke von ca. 50 nm. AlAs_{0.08}Sb_{0.92} bietet eine exakte Gitteranpassung an GaSb und eine geringfügig höhere Bandlücke als AlSb. Bei der Verwendung von AlAsSb als Barriere-Material wird die Beschränkung der kritischen Schichtdicke umgangen.

Mit Blick auf eine gleichbleibende Qualität des DQWs und auf eine niedrige Defektdichte ist ein möglichst exaktes V-V Mischungsverhältnis As/Sb von 08/92 notwendig. Dies war – unter vertretbarem Aufwand – nicht reproduzierbar zu realisieren. Abweichungen im V-V Mischungsverhältnis von einigen Prozentpunkten wirkten sich negativ auf die Kristallstruktur der darüber liegenden Quantenfilme aus. Weiter konnte auch bei Proben mit dicker, gitterangepasster AlAsSb Barriere kein hochohmiges Verhalten zum Backgate nachgewiesen werden. Hier müssen zwei mögliche Effekte betrachtet werden:

Einerseits kann Strom über – trotz verbesserter Kristallqualität verbliebene – Versetzungen durch die Barriere gelangen. Ein möglicher Ansatz, dies zu unterbinden, ist die Integration eines oder mehrerer GaSb/AlSb Übergitter sowie dickerer epitaktischer GaSb-Schichten in eine auf nativem GaSb-Substrat gefertigte Struktur. Damit könnte zusätzlich zum erhöhten elektrischen Widerstand in Wachstumsrichtung die Defektdichte weiter reduziert werden und eine Erhöhung der Mobilität adressiert werden.

Andererseits ist für GaSb/InAs Strukturen bekannt, dass Leckströme über die seitlichen Oberflächen bzw. die Flanken der Heterostruktur fließen, die so einen Kurzschlusskanal bilden, der die Barriere umgeht. Die Entfernung dieser Kanäle wird in Abschnitt 3.3.5 demonstriert.

3.3 Prozessoptimierung

Die Verarbeitung von GaSb/InAs Strukturen weist Besonderheiten auf, die bisher den zweifelsfreien Nachweis von topologischen Zuständen in GaSb/InAs DQWs verhinderten. Die Ausbildung trivialer Randkanäle [21], [25], [82], die in Abschnitt 2.1 diskutiert wurde, geht vermutlich auf eine Verunreinigung oder Oxidation im Prozess zurück [83], [86]–[89]. Im kommenden Kapitel werden zum weiteren Prozess erarbeitete Lösungen demonstriert und diskutiert. Der Aufbau folgt der Prozessreihenfolge bei der Fertigung einer Probe.

Ausgehend von einer optisch belichteten Probe beschreibt Abschnitt 3.3 die erste untersuchte Ätzvariante. Materialselektives Ätzen wurde für die laterale Strukturierung verworfen. Selektives Entfernen der Sb-haltigen Schichten bietet aber sehr gute Möglichkeiten zur direkten Kontaktierung des InAs Quantenfilms (vgl. Abschnitt 3.3.6).

In Abschnitt 3.3.2 wird die Weiterentwicklung der benutzen Cocktail-Nassätze beschrieben. Die Zusammensetzung wurde untersucht sowie eine Ruhezeit von mindestens zwei Stunden definiert, bis die Mischung fertig ausreagiert hat und ein konstantes Ätzverhalten liefert. Die nasschemischen Verfahren werden in Abschnitt 3.3.3 um einen trockenchemischen ECR-Ätzprozess erweitert. Hierfür werden die Anteile des physikalischen sowie des chemischen Prozesses variiert. Da sowohl das Nass- als auch das Trockenätzen Vor- und Nachteile aufweist, wird in Abschnitt 3.3.4 ein kombinierter Ätzprozess vorgestellt. Damit werden zwei Vorteile vereint: das gute Aspekt-Verhältnisses des ECR Prozesses und die geringe Beschädigung der Struktur des Cocktailätz-Schrittes.

Abschnitt 3.3.5 beschäftigt sich mit den in antimoniden Materialien bekannten Oberflächenoxiden und deren Entfernung. Diese Oxide gilt es zu unterdrücken oder vollständig zu entfernen. Es werden zwei Ansätze sowie deren Eignung zur Oxidentfernung bei unterschiedlichen Prozessschritten diskutiert. Anschließend werden Messungen an Proben mit unterschiedlichen Prozessen – ohne Oxidentfernung bis hin zu mehrfacher Oxidentfernung – untersucht und dabei ein klar positiver Effekt der Oxidentfernungsschritte gefunden.

Der letzte Abschnitt dieses Kapitels beschreibt unterschiedliche Kontaktierungsmöglichkeiten. Es zeigt sich, dass eine direkte Kontaktierung des InAs Quantenfilms nach einem selektiven Tetramethylammoniumhydroxid (TMAH) Ätzschritt die zu favorisierende Alternative darstellt. Verglichen wird dies mit einlegierten sowie nicht einlegierten Kontakten, die auf die vollständige Heterostruktur abgeschieden wurden.

3.3.1 Materialselektives Ätzen

Die Verwendung von materialselektivem Nassätzen für unterschiedliche Materialklassen gibt die Möglichkeit für einen Ätzstopp an bestimmten Stellen in der Heterostruktur. Somit kann die Ätztiefe exakt definiert werden. In der gegebenen Heterostruktur wird zwischen Sb-Materialien und InAs differenziert. TMAH ist dafür bekannt, antimonide III-V Halbleiter zu ätzen, InAs allerdings kaum anzugreifen. Für TMAH-haltige Entwickler wurde eine Materialselektivität gegenüber InAs von über 100:1 festgestellt [125]. In Kombination mit Bernsteinsäure, welche InAs ätzt, die Antimonide aber kaum angreift [126], kann Schicht für Schicht abgetragen und die Ätztiefe exakt geregelt werden. Die Selektivität der einzelnen Ätzen führte allerdings zu einem Unterätzen der darüber liegenden Schichten und zu inhomogenen Ätzflanken. Daher wurde dieses Verfahren im frühen Stadium dieser Arbeit durch die Ätzverfahren in den Abschnitten 3.3.2 bis 3.3.4 ersetzt. Für die in Abschnitt 3.3.6 beschriebene direkte Kontaktierung des InAs Films wurde TMAH weiterhin als selektive Ätze verwendet. Daher wird dieser Schritt genauer beleuchtet.

Es wurde exemplarisch eine Struktur aus GaSb/InAs Doppelquantenfilm, 100 nm AlAsSb Barriere und 5 nm GaSb Deckschicht für unterschiedliche Ätzzeiten mit dem TMAH enthaltenden Entwickler AR300-47 (1:2 in deionisiertem Wasser) behandelt. In Abbildung 3.9 sind die Ergebnisse hierzu gezeigt.

Die Ätztiefe wurde mittels eines *Dektak3030* topographisch untersucht und zusätzlich eine optische Kontrolle mittels Lichtmikroskop durchgeführt. Als Maske wurde das Kontaktlevel von Hall-Barren-Layout 1 verwendet.



Abbildung 3.9 Überblick zu materialselektivem Ätzen mit TMAH Optische Mikroskopaufnahmen der mit TMAH geätzten Hall-Barren Struktur. Gezeigt ist jeweils ein Überblick über die volle Struktur sowie eine Vergrößerung auf die Kontaktpads (**a-c**) oder die Zuleitungen zum Hall-Barren (d). Verbleibendes AlAsSb zeigt sich dunkel in den ansonsten freien Pads (**a-c**). In **d**) sind sowohl die Pads als auch die Zuleitungen frei von AlAsSb. Die jeweils verwendeten Parameter sind im Bild gegeben.

Für längere Ätzzeiten sowie ein Schwenken der Probe zeigt sich eine immer vollständigere Entfernung der AlAsSb Schicht. In den optischen Mikroskopaufnahmen ist am verbleibenden, dunkleren Rückstand der AlAsSb Barriere innerhalb der freizulegenden Kontaktpads und -zuleitungen zu erkennen, dass für Ätzversuche a) und b) zu wenig Material abgetragen wurde und ein Rückstand die InAs Oberfläche bedeckte. Für zu lange Ätzzeiten griff THAM auch die InAs Schicht an, vgl. c). Für Ätzzeiten von 10 Minuten mit minütlichem, manuellem Schwenken konnte die AlAsSb Barriere vollständig entfernt werden (Ansatz d). Abbildung d) zeigt auf den engsten Strukturen, den Zuleitungen zum Hallbarren einen restlosen Abtrag, ohne die InAs Schicht anzugreifen. Dieses Verfahren wurde – angepasst an die jeweilige Barrierendicke – verwendet, um die InAs Schicht zum Kontaktieren freizulegen. Vergleiche hierzu Abschnitt 3.3.6.

3.3.2 Optimierung der Cocktailätze

Neben dem selektiven Ätzen einzelner Schichten ist für das GaSb/InAs Materialsystem in der Literatur eine Mischung unterschiedlicher Nassätzen bekannt [29], [89]. Die sogenannte Cocktail-Ätze besteht aus Zitronensäure (C₆H₈O₇), Wasserstoffperoxid (H₂O₂) und Phosphorsäure (H₃PO₄) in wässriger Lösung. Zu Beginn der Arbeit mit Cocktailätze wurde festgestellt, dass die Ätztiefe ähnlicher Proben, die mit demselben Ansatz der Ätze behandelt wurden, variierte. Mit Blick auf die Notwendigkeit reproduzierbarer Prozesse ist es essenziell, dieses Verhalten zu verstehen und zu unterbinden. Hierzu wurde die Ätztiefe identischer Proben über den Alterungsverlauf eines Ansatzes Cocktailätze untersucht. Dabei wurde eine Ätzdauer von 15 Minuten gewählt und die Ätztiefe über eine Topographiemessung mittels eines *Dektak 3030* bestimmt. Abbildung 3.10 zeigt die Ätztiefe in Abhängigkeit des Alters des Ansatzes der Cocktailätze. Die Ätzgeschwindigkeit nimmt mit dem Alter des Ansatzes der Cocktailätze zu. Innerhalb der ersten beiden Stunden steigt die Ätztiefe auf über 200% des Ausgangswertes, bei gleichbleibender Ätzzeit. Die Veränderung nach 2 Stunden verläuft deutlich langsamer und ist im Rahmen der Messschwankung zu vernachlässigen.

Um eine reproduziere Kontrolle der Ätztiefe über die Ätzzeit gewährleisten zu können, ruhte die Cocktailätze vor Verwendung mindestens zwei Stunden, idealerweise über Nacht.



Abbildung 3.10 Ätztiefe in Abhängigkeit des Alters des Ätzansatzes Innerhalb der ersten zwei Stunden nach dem Ansetzen nimmt die Ätztiefe auf über 200 % zu. Nach etwa zwei Stunden stoppt die Zunahme der Ätzgeschwindigkeit und bleibt im Rahmen der Messfehler konstant.

Zusätzlich zur notwendigen Ruhezeit des Ansatzes der Cocktailätze wurde die ideale Zusammensetzung der Cocktailätze untersucht. Neben der Ätztiefe spielt die Qualität der Ätzflanken eine wichtige Rolle. Unterschiedliche Bestandteile der Cocktailätze tragen unterschiedliche Komponenten der Heterostruktur verschieden schnell ab. Ideale Flanken fallen senkrecht ab, sind nicht unterätzt und besitzen keine Stufen aus nicht abgetragenem Material. In einer Variation des H₂O₂ sowie des H₃PO₄ Gehaltes wurde folgende Zusammensetzung als beste Cocktailätze identifiziert:

$$C_6H_8O_7:H_2O_2:H_3PO_4:H_2O \triangleq 18,0 \text{ g}: 2,0 \text{ ml}: 1,9 \text{ ml}: 39,5 \text{ ml}.$$
 11

Die Ätztiefe wurde wie oben mittels Topographie bestimmt, die Qualität der Flanken anhand von Rasterelektronenmikroskopie-Aufnahmen bewertet. Auch mit den ermittelten best practice Werten für eine Cocktailätze verbleiben zwei Probleme: nicht senkrecht verlaufende Flanken und das Unterätzen, gerade mit Blick auf die Verkleinerung der Probenmaße.

3.3.3 Optimierung ECR-Prozess

Um die bei den Nassätzverfahren auftretenden Probleme zu umgehen, wurde im Folgenden ein ECR Ätzprozess (s. Abschnitt 2.4) für die DQW-Proben optimiert. Hierfür wurden das Chlor sowie das Argon Angebot variiert und die Hochfrequenzleistung (66 W), die ECR-Leistung (500 W) sowie der Druck ($6,2 * 10^{-3}$ mbar) konstant gehalten. Als Maske wurde in diesem Fall eine Bariumfluorid-Chrom Maske verwendet. In Abbildung 3.11 sind die REM Bilder dieser Tests abgebildet. Die Maske ist für einen besseren Kontrast zur Halbleiterstruktur blau eingefärbt. Die Auswertung der Ätztiefen und der Breite ist in Tabelle 3.1 zusammengefasst. In Probe a) ist neben einer zu großen Ätztiefe ein deutliches Unterätzen der Maske erkennbar. Um diesem entgegen zu wirken, wurde für Proben b) und c) die Ätzdauer sowie der Cl-Anteil reduziert. Dadurch konnte das Unterätzen unterbunden werden. In c) ist aber deutlich zu erkennen, dass dabei zu wenig Material abgetragen wird, was in einer Atzbreite resultiert, die die Ätztiefe übersteigt. Dies wurde durch eine Erhöhung des physikalischen Ätzanteils kompensiert. In den Prozessen c) bis f) wurde das Chlor zu Argon Verhältnis entsprechend angepasst.

	Ätzdauer [min:sek]	Clor [sccm]	Argon [sccm]	Ätztiefe [nm]	Ätzbreite [nm]
a)	10:00	1,2	9	698	170
b)	5:00	0,5	9,5	409	47
c)	1:45	1,0	9,5	255	753
d)	1:45	1,2	15	262	49
e)	1:45	1,0	15	207	40
f)	1:45	1,0	12	248	188

Tabelle 3.1 ECR-Optimierung

Übersicht über die Parametervariation und die daraus resultierenden Ätztiefen und -breiten zur Optimierung des ECR-Ätzprozesses. Die REM Schnittbilder zu den Daten sind in Abbildung 3.11 gezeigt.

Zur weiteren Prozessierung wurden die Parameter von Prozess f) verwendet. Hier gilt zu beachten, dass ein hoher physikalischer Anteil am Ätzprozess unweigerlich zu Verunreinigung und Beschädigung der Oberflächen führt. [112] Um diese wieder zu reinigen, wurde ein kombinierter Ätzprozess aus einem ECR- und einem konsekutiven Schritt mit Cocktailätze eingeführt.



Abbildung 3.11 ECR-Optimierung

Optimierung der ECR Parameter für DQW-Strukturen, Variation des chemischen und physikalischen Anteils am Ätzprozess. Die verendeten Parameter sowie die quantitativen Ätztiefen und -breiten sind in Tabelle 3.1 zusammengefasst. Für besseren Kontrast wurde der als Ätzmaske benutzte Lack blau eingefärbt. Probe **a**) weist eine zu große Ätztiefe sowie ein Unterätzen der der Maske auf. Durch die Reduktion des Chlor-Anteils für **b**) und **c**) konnte das Unterätzen der Maske unterbunden werden. In Bild **c**) zeigt sich dadurch allerdings eine stark nicht senkrechte Ätzflanke. Durch eine Erhöhung des physikalischen Ätzanteils konnte die in Proben **d**) bis **f**) verbessert werden.

3.3.4 Kombinierter Ätzprozess

Ziel des kombinierten Ätzprozesses ist, die Vorteile des trockenchemischen und des nasschemischen Verfahrens zu vereinen, während ihre jeweiligen Nachteile vermieden werden. Der trockenchemische Prozess erzeugt steile Flanken ohne die Maske zu unterätzen, der nasschemische Anteil entfernt die eingebrachten Verunreinigungen und Kristalldefekte. Dies schafft gute Voraussetzungen für die Transportmessung nach Abschluss des nasschemischen Schrittes [23]. Zur Optimierung des kombinierten Prozesses wurde der ECR-Prozess f) sowie die oben genannte optimierte Rezeptur der Cocktailätze verwendet. Die überprüften Parameter sind in Tabelle 3.2 zusammengefasst. Hier werden die Ergebnisse für einen reinen ECR-Prozess sowie einen ECR-Prozess in Kombination mit einem 5 bzw. 10 sekündigem Nassätzschritt verglichen.

Für den 5-s Nachätz-Schritt zeigt sich in vertikaler Richtung ein Abtrag des durch den ECR-Prozess angegriffenen Materials, nicht allerdings in lateraler Richtung. Bei 10 Sekunden wird auch in lateraler Richtung Material abgetragen. Die Entfernung des vom Argon Bombardement angegriffenen Materials in vertikaler wie auch in lateraler Richtung ist erstrebenswert. Deshalb wurden alle Proben, soweit nicht anders vermerkt 10 s mit Cocktailätze nachbehandelt.

	Ätztiefe [nm]	Breite der Zulei- tung [μm]	Breite der Ätz- flanke [nm]
ECR	235	10,08	289
ECR + 5 s Cocktailätze	276	10,08	304
ECR + 10 s Cocktailätze	280	9,21	39

Tabelle 3.2 Parameteroptimierung zum Kombinierten Ätzprozess Die deutlich reduzierte Breite der Ätzflanke bei 10 s Nassätz-Zeit verdeutlicht den Abtrag des durch den trockenchemischen Prozess angegriffenen Halbleitermaterials.

3.3.5 Oxidentfernung

Für die Verarbeitung von GaSb basierten Strukturen ist bekannt, dass auf Oxidationsprozesse geachtet werden muss. GaSb oxidiert schneller als beispielsweise GaAs [127]. Weiter wurde gezeigt, dass sowohl GaSb als auch AlSb schneller oxidieren als GaAs, InAs, InP, InAs oder aber Si und Ge. Ein problematischer Effekt dabei ist, dass sich – im Gegensatz zu Arsen-basierten III-V Halbleitern – elementares Sb an der Oberfläche bilden kann [128]. Dieses ist elektrisch leitend und bietet somit einen Verlustkanal bzw. verursacht einen Kurzschluss des zu untersuchenden Bauteils. Da eine Oxidation während des Prozesses nicht vollständig unterbunden werden konnte, beschäftigt sich dieser Abschnitt damit, das entstandene Oxid wieder zu entfernen. Die Arbeitsgruppe um J. Na der Yonsei Universität, Seoul, untersuchte das Verhalten von GaSb und InAs in nasschemischer Umgebung mittels XPS²⁴ [87], [88]. Daraus ergaben sich zwei Rückschlüsse, die für diese Arbeit von Interesse sind. (1) H₂O₂ führt sowohl bei InAs als auch bei GaSb zur Entstehung von Ga- bzw. In-Oxid. Hieraus folgt die Notwendigkeit einer Oxidentfernung nach dem Verwenden der Cocktailätze. (2) Für beide Materialien gilt außerdem, dass mit sinkendem pH-Wert einer Säure die Oxidation langsamer oder nicht stattfindet. Für InAs ist hierfür ein pH-Wert < 4 ausreichend. Für GaSb ist ein pH-Wert < 1 wünschenswert [87], [88].

Eine Entfernung des Oxids wurde an zwei notwendigen Zeitpunkten im Prozess der InAs/GaSb Quantenfilme untersucht. Zu Beginn des Prozesses muss die Oberfläche der GaSb Deckschicht des zu prozessierenden Waferstückes gesäubert werden. Trotz Lagerung im N₂-gespülten Schrank genügt die Luftexposition der Oxidbildung. Zusätzlich mussten die Seitenflanken nach dem Schritt mit Cocktailätze von Oxid befreit werden, bevor eine Passivierung aufgebracht werden konnte. Es wurden jeweils zwei unterschiedliche Säuren auf deren Eignung geprüft.

Als erster Schritt zur Oxidentfernung wurde die Reinigung der GaSb-Probenoberfläche mit Salzsäure und Schwefelsäure untersucht. Die Oxidation der Oberfläche zeigt sich in einer – unter optischem Mikroskop deutlich sichtbaren – chromatischen Veränderung. Ebenso lässt sich die Entfernung des Oxids so überprüfen. Im Blick auf Homogenität und Zuverlässigkeit wird klar, dass bei der Entfernung des Oberflächenoxids Schwefelsäure zu bevorzugen ist.

Nach Verwendung der H₂O₂ haltigen Cocktailätze hat ein zweiter Schritt zur Oxidentfernung zu folgen. Abbildung 3.12 zeigt eine mit dem kombinierten Ätzprozess (vgl. Abschnitt 3.3.4) hergestellte Probe nach einer 2-sekündigen Nachbehandlung mit a) Salzsowie b) und c) Schwefelsäure.



Abbildung 3.12 Oxidentfernung Seitenflanken

REM Bilder der Oxidentfernung mit HCl **a)** und H₂SO₄ **b)** & **c)** im Vergleich. Während eine 2 s Behandlung der Seitenflanken mit HCl die Struktur sowie den Lack auf der Struktur nicht angreift, lässt sich für Schwefelsäure sowohl eine Beeinträchtigung der Seitenflankengeometrie als auch des Lackes beobachten.

²⁴ Röntgenphotoelektronenspektroskopie, von engl. X-ray photoelectron spectroscopy

Bei Salzsäure bleiben die Struktur und der Lack intakt. In Bild b) und c) hingegen fällt auf, dass die Schwefelsäure sowohl die Flanke der Heterostruktur als auch den darauf befindlichen Lack angegriffen hat. Da dies nicht dem angestrebten Effekt entspricht, wurde für diesen zweiten Oxidentfernungsschritt im weiteren Verlauf Salzsäure verwendet.

Zur funktionellen Überprüfung der oben eingeführten Prozessschritte wurde eine Probenreihe mit unterschiedlichem Anteil an Prozessschritten fertiggestellt und einer Magnetotransportuntersuchung unterzogen. Tabelle 3.3 gibt einen Überblick über die jeweils verwendeten Prozessschritte sowie der daraus bei 4,2 K ermittelten Ladungsträgerdichten N und Mobilitäten μ . Die hier gezeigten Proben wurden nach dem Aufbringen der Kontakte nicht passiviert und es wurde kein Frontgate aufgebracht. Bei Betrachtung der Mobilität fällt auf, dass der Nassätzschritt zu einer Abnahme der Mobilität von Probe Ox1 zu Probe Ox2 führt, was aber durch eine Oxidentfernung an den Flanken mittels HCl rückgängig gemacht werden kann und zu einer Verbesserung der Mobilität führt ($Ox2 \rightarrow Ox3$). Eine H2SO4 Behandlung der Oberfläche als erster Prozessschritt führt ebenso zur erwarteten Verbesserung der Mobilität. Die Ladungsträgerdichte steigt von Ox1 zu Ox4 geringfügig an.

	ECR	Cocktail-	Oxidentf. 2	Oxidentf. 1	Ν	μ
		ätze	(HCL)	(H2SO4)	[10 ¹¹ /cm ²]	[10 ³ cm ² /Vs]
0x1	✓	×	×	×	9,6	48
0x2	\checkmark	\checkmark	×	×	10,3	32
0x3	✓	\checkmark	\checkmark	×	10,9	50
0x4	\checkmark	\checkmark	\checkmark	\checkmark	11,0	54

Tabelle 3.3 Überblick der Prozessschritt-Variation, zur funktionellen Überprüfung der Oxidentfernungsschritte

Prinzipiell gilt es den Prozess einfach zu halten. Einerseits leidet mit steigender Schrittanzahl die Reproduzierbarkeit, andererseits greift jeder Schritt die Probe an. Um einer Oxidation der Oberfläche vorzubeugen und somit den Oxidentfernungschritt mit Schwefelsäure zu umgehen, wurde direkt auf den gewachsenen Vollwafer – sofort nach dem Ausbauen aus der MBE – eine $\approx 1 \,\mu$ m dicke Schutzschicht aus Lack (ma-P-1215) aufgeschleudert. Dieser schützt die Oberfläche des Wafers einerseits vor Umgebungsluft und der damit einhergehenden Oxidation, andererseits vor mechanischem Schaden bei der Handhabung, z. B. dem Spalten von Prozessstücken. Direkt vor der Verwendung kann der Lack mit Aceton entfernt (abgekocht) werden. Für kurzeitige Probenlagerung über einige Tage bis Wochen konnten hier gute Ergebnisse erzielt werden; die chromatische Veränderung der Oberfläche, die eine Oxidation andeutet, blieb aus. Über ein Verhalten bei langfristiger Lagerung kann zum aktuellen Zeitpunkt noch keine Aussage getroffen werden. Bei Untersuchungen an der ETH Zürich wurde vor kurzem ein noch nicht vollständig verstandener Effekt der Oberflächenpassivierung mittels "atomic layer deposition ²⁵" gezeigt, der zu einer signifikanten Reduktion der Oberflächenleitfähigkeit von InAs Quantenfilmen führte [129]. Für die weitere Verbesserung der Strukturqualität ist dies ein interessanter Ansatzpunkt.

3.3.6 Optimierung der Kontaktierung

Zur Messung des elektrischen Transportes ist es sowohl für die Strominjektion als auch für den Spannungsabgriff unumgänglich, die zu charakterisierenden Schichten zu kontaktieren. Bei vielen etablierten Bauteilen auf GaSb Basis findet der gewünschte Stromfluss entlang der Wachstumsachse, d. h. senkrecht zu den Lagen der Heterostruktur statt (u. a. ICLs, QCLs, RTDs ²⁶) [95], [96], [130]. Im Gegensatz dazu ist bei den GaSb/InAs QWs ein Transport entlang der Schicht, also senkrecht zur Wachstumsrichtung notwendig. Aus diesem Unterschied ergeben sich Herausforderungen, die im Folgenden zusammen mit Lösungsansätzen erläutert werden.

Zu Beginn dieser Untersuchung waren die Kontaktierungsmöglichkeiten mittels einlegierten Cr-Pt-Au²⁷ Kontaktes sowie die Kontaktierung mittels eines Cr-Au²⁸ Kontaktes bekannt, vgl. Abbildung 3.13 a) und b). Allerdings erfüllten beide die notwendigen Voraussetzungen für eine Charakterisierung der Transporteigenschaften der DQWs nicht. In diesem Abschnitt werden diese beiden Methoden mit ihren Nachteilen beschrieben, sowie eine dritte Variante eingeführt, die besagte Nachteile vermeidet.

Kontaktvariante a), ein einlegierter Cr-Pt-Au Kontakt, wurde dem Herstellungsprozess für GaSb basierte Laser und RTDs entlehnt. Hierbei dient Chrom (Cr) als Haftvermittler an der Metall-Halbleiter Kontaktfläche und Gold (Au) als niederohmiges Kontaktmetall. Platin (Pt) fungiert während des Einlegierens als Diffusionsbarriere für das Kontaktmaterial [131]. Damit soll ein (zu) tiefes Eindringen in die Halbleiterstruktur unterbunden werden. Mehrfache Versuche mit einlegierten Kontakten zeigten, dass zwar ein niederohmiger Kontakt zum Quantenfilm erreicht werden konnte, allerdings auch immer das ndotierte Substrat kontaktiert wurde. Dadurch wurde ein Kurzschluss zum Backgate erzeugt, womit dort Strom parallel zum Quantenfilm floss. Diese beiden Effekte konnten auch durch Variation der Temperatur des Legierungsprozesses nicht unterbunden werden. Möglicherweise wird die Probe beim Aufbringen des Kontaktmaterials bereits aus-

²⁵ Engl. Atomlagenabscheidung, ALD

²⁶ Interbandkaskadenlaser, Quantenkaskadenlaser und resonante Tunneldioden

²⁷ Chrom-Platin-Gold

²⁸ Chrom-Gold

reichend erwärmt, um die zur Bildung eines Kurzschlusskanales ausreichende Legierungstiefe zu erreichen. Um dies zu vermeiden, wurden die Kontaktvarianten b) und c) untersucht.



Abbildung 3.13 Unterschiedliche Kontaktierungsmethoden

Schematische Darstellung der untersuchten Kontaktierungsmöglichkeiten. **a)** Einlegierter Cr-Pt-Au Kontakt. Gelbe Punkte verdeutlichen das in die Halbleiterstruktur migrierte Kontaktmetall. **b)** Cr-Au Kontakt, aufgedampft auf die vollständige Schichtstruktur. **c)** Direkte Kontaktierung des Quantenfilms, über die InAs Schicht nach selektivem Ätzprozess mit TMAH.

Kontaktvariante b), ein Cr-Au Kontakt – nicht einlegiert – auf der kompletten Schichtstruktur aufgebracht (vgl. Abbildung 3.13), ist die einfachste Variante, hat aber den Nachteil, dass Strom auf dem Weg zum InAs/GaSb Film die hochohmige Al(As)Sb Barriere passieren muss. Die so erreichten Kontakt-Widerstände liegen deutlich über dem zu erwartenden Widerstand des Quantenfilms und sind somit für dessen Charakterisierung nicht geeignet.

In der Literatur ist die Kontaktierung von III-V Halbleiterstrukturen über einen InAs Kontaktfilm seit langem bekannt [132]. Dabei wird die Lage des InAs Ferminiveaus am der Metall-Halbleiter Grenzfläche innerhalb des Leitungsbandes [84] ausgenutzt, um die gewünschten geringen Kontaktwiderstände zu erzielen. Für die GaSb/InAs Quantenfilme ergibt sich die Möglichkeit, direkt den InAs Film der DQW Struktur zu kontaktieren. Kontaktvariante c) umgeht die Probleme der Varianten a) und b), indem der InAs Quantenfilm direkt kontaktiert wird (vgl. Abbildung 3.13 c)).

Um dies zu ermöglichen, wurde zuerst das Kontaktlevel belichtet und anschließend der Antimon-selektive Ätzprozess mit TMAH aus Abschnitt 3.3 herangezogen. Das Kontaktmaterial wurde daraufhin direkt auf die freigelegte InAs Schicht aufgedampft. Für den direkten Vergleich zwischen Kontaktvariante b) und c) wurde ein prozessiertes Probenstück vor dem Aufbringen des Kontakts mittig gespalten und dann die Widerstände für Variante b) und c) bei 4,2 K ermittelt. Es zeigte sich ein um mehr als einen Faktor 100 verringerter Widerstand für die direkte Kontaktierung des InAs Quantenfilms. Mit der direkten Kontaktierung des InAs Film konnten zuverlässig geringe Kontaktwiderstände erreicht werden. Im weiteren Verlauf wurden alle Proben – soweit nicht anders vermerkt – auf dem InAs Film kontaktiert.

3.4 Optimierte Probenherstellung

Die erfolgte Anpassung und Erweiterung des ursprünglichen Prozesses verringert die Unwägbarkeiten in unterschiedlichen Schritten der Probenproduktion. Der neue Prozess ermöglicht es, unterschiedliche Proben quantitativ zu vergleichen.

Abschnitt 3.4 gibt einen Überblick über die in Kapitel 3 erarbeiteten Erkenntnisse aus den Simulationsergebnissen, dem MBE Wachstum sowie der Prozessoptimierung. Zusätzlich werden für einige nicht besprochene Parameter best practice Werte und Verfahren genannt. Auch hier folgt die Reihenfolge dem Fabrikationsweg einer Probe. Für eine genauere Betrachtung der besprochenen Parameter sei auf die Kapitel 3.1 bis 3.3 verwiesen.

Aus den Ergebnissen der nextnano Simulationen in Abschnitt 3.1 ergibt sich ein geeigneter Parameterraum, in dem die Schichtdicken von GaSb und InAs Quantenfilm variiert werden können, um Proben im invertierten oder trivialen Regime zu fertigen. Damit wurde für die in Kapitel 4 betrachteten Proben jeweils ein Strukturaufbau bestimmt, bei dem sich die Probe im trivialen Regime befindet und ein Aufbau im invertierten Regime. Dazwischen wurde je eine Struktur gefertigt, die exakt am Inversionspunkt liegt. Für eine in AlSb gebettete GaSb/InAs Struktur liegt dieser Übergang bei Schichtdicken von 8 nm/8,7 nm. Eine Schichtdickenvariation des InAs Films d_{InAs} hat eine deutlich höhere Auswirkung auf die Inversion als eine Variation von d_{GaSb}. Für breite InAs Filme fällt das elektronische Niveau unter das Schwerlochniveau und es liegt Inversion vor. Für die Verwendung von nextnano Simulationen zeigte sich, dass die Bedeutung der Hybridisierung des Leichtlochzustandes weiterer Betrachtung bedarf.

Für das epitaktische Wachstum wurde in Abschnitt 3.2 herausgestellt, dass die Fertigung auf nativem GaSb Substrat gegenüber GaAs Substrat mit GaSb Quasisubstrat zu bevorzugen ist. Die von einer Verwendung gitterangepasster und dickerer AlAs_{0,08}Sb_{0,92} Barriereschichten erwarteten Vorteile konnten nicht gezeigt werden. Für die weitere Verwendung werden Proben auf GaSb Substrat mit AlSb Barrieren empfohlen. Der GaSb/InAs Übergang wurde bei allen Proben als Indiumantimonid Übergang gestaltet. Dieser bietet – gegenüber einem GaAs Übergang – bessere Beweglichkeiten [133]. Hier erfolgte eine Orientierung an den von Tuttle et al. gezeigten Sequenzen [133], allerdings wurden Zeiten ohne Gruppe-V Angebot vermieden. Im Übergang von GaSb auf InAs wurde 15 s lang nur Antimon verdampft, um alle verbliebenen Ga-Atome abzubinden. Anschließend wurden zeitgleich Indium und Arsen angeboten. Der Prozess, ausgehend vom MBE-Wachstum bis hin zur fertigen Hall-Barrenstruktur, ist in Abbildung 3.14 Schritt für Schritt veranschaulicht (s. S. 50). Schritt I in Abbildung 3.14 zeigt einen unbewachsenen n-GaSb Wafer im Probenhalter zum Einbau in die MBE (links) sowie einen mit der beschriebenen DQW-Struktur bewachsenen Wafer (rechts).

Direkt nach dem Ausbau aus der Ladekammer (vgl. Schritt II in Abbildung 3.14) hat sich das Aufbringen einer Lack Schutzschicht auf die Oberfläche des Vollwafers als gute Schutzmaßnahme bewährt. Damit kann – bisher nur für kurze Lagerzeiten von einigen Tagen bis Wochen gezeigt – der erste Oxidentfernungsschritt (Schwefelsäure) vermieden werden. Diese Schutzschicht kann in Aceton rückstandslos abgekocht werden. In der weiteren Verarbeitung hat sich als erster Schritt – noch vor der optischen Belichtung und der Applikation des dafür notwenigen Lacks – das Aufbringen einer 6 nm SiO₂ Schicht auf die Oberfläche des Probestückes etabliert. Die SiO₂ Schicht schützt die GaSb Oberfläche vor den im weiteren Prozess benutzten Chemikalien (z. B. vor optischem Entwickler). Vor dem eigentlichen Ätzprozess wird die SiO₂ Schicht mittels eines RIE-Schritts²⁹ an den ge-wünschten Stellen wieder abgetragen.

Als Ätzprozess zum Strukturübertrag bietet das kombinierte Ätzverfahren aus Abschnitt 3.3.4 gute Aspektverhältnisse sowie die Möglichkeit, entstandene Schäden an der Oberfläche wieder zu entfernen. In Kombination mit der Oxidentfernung an den Seitenflanken mittels Salzsäure stellt das kombinierte Ätzverfahren die besten Funktionen zu Verfügung (Schritt IV in Abbildung 3.14). Für die Kontaktierung wurde in Abschnitt 3.3.6 gezeigt, dass die direkte Kontaktierung des InAs Films geringe Kontaktwiderstände liefert und keinen Kurzschluss zum Substrat herstellt. Zum Abätzen der oberen AlSb Barriere wurde der in 3.3 gezeigte selektive Ätzprozess mit TMAH verwendet (Schritt VI und VII in Abbildung 3.14).

Zur Isolation des Frontgates von der Struktur wurde eine dielektrische Schicht aus einem SiO₂/Si₃N₄ Übergitter aufgebracht (Schritt VIII in Abbildung 3.14). Dabei wechseln sich elf Lagen SiO₂ mit zehn Lagen Si₃N₄ mit jeweils 10 nm Schichtdicke ab. Die Abscheidung der beiden Materialien erfolgte mittels PECVD ³⁰. Um unkontrollierte Bereiche zwischen Kontakt und Messregion zu vermeiden, wurde das Hall-Barren-Layout 2 (vgl. Abschnitt 2.5) so konstruiert, dass das Frontgate auch über der Kontaktregion liegt. Das heißt wiederum, dass das Dielektrikum den Goldkontakt vom Gold-Frontgate isolieren muss. Für die Abscheidung der Gold-Zuleitung zur Hall-Barren Struktur ergibt sich damit die Anforderung

²⁹ Reactive ion etching, engl. reaktives Ionenätzen, hier mir Trifluormethan und Argon

³⁰ Plasmaunterstützte chemische Gasphasenabscheidung von engl. plasma-enhanced chemical vapour deposition

ausreichend glatter Oberflächen, um eine Isolation durch das Dielektrikum gewährleisten zu können. Diese Anforderung konnte sowohl durch thermisches Verdampfen als auch Elektronenstrahlverdampfen mit ausreichend Abstand zur Materialquelle erfüllt werden.

Nach der flächigen Applikation des Dielektrikums wurden die Kontaktpads freigelegt und noch einmal Gold aufgebracht, um anschließend eine gute Haftung beim Ball-Bond Prozess sicherzustellen. Die so gefertigten Proben wurden anschließend vereinzelt, auf Keramik Probenträger aufgeklebt und mit Hilfe eines Ball-Bond-Verfahrens kontaktiert (Schritt IX in Abbildung 3.14).

In Kapitel 4 werden nach diesem Schema produzierte Proben verglichen. Hier wird deutlich, dass eine Reproduzierbarkeit des Prozesses für unterschiedliche Proben gewährleistet ist. Zur weiteren Verbesserung des Prozesses ergeben sich mehrere mögliche Ansatzpunkte. Diese sind in den Kapiteln 3.1 bis 3.3 bereits detailliert ausgeführt.



Abbildung 3.14 Übersichtsbild optimierte Prozessierung

Der optimierte Prozess ist in seinen wichtigsten Schritten vom MBE Wachstum bis zur fertigen Probe veranschaulicht. Die einzelnen Schritte I) bis IX) zeigen die unterschiedlichen Prozessschritte oder verdeutlichen, in welchem Zustand die zu verarbeitende Probe vorliegt.

4 Variation der InAs Schichtdicke und elektrische Manipulation von GaSb/InAs Doppelquantenfilmen

Durch konsequente iterative Verbesserung der Probenqualität und des Herstellungsprozesses (s. Kapitel 3) gelang es, die Vergleichbarkeit der Transporteigenschaften unterschiedlicher Strukturen zu gewährleisten. Weiter konnten damit einzelne Parameter des Wachstums-, Lithographie- und Strukturierungsprozesses variiert und überprüft werden. In diesem Kapitel werden drei Doppelquantenfilmstrukturen mit unterschiedlichem Aufbau verglichen und die quantitative Vergleichbarkeit einer Probenserie gezeigt. Die zu erwartenden Eigenschaften der Strukturen wurden über numerische Simulationen bestimmt und abschließend überprüft.

In Abschnitt 4.1 wird eine Dickenvariation der InAs-Schicht in binären GaSb/InAs Quantenfilmen in AlSb Matrix vorgestellt: Proben *bin1* bis *bin3*. Dann werden in Abschnitt 4.2 die dazu gehörigen Ergebnisse der Tieftemperatur-Magnetotransport-Messungen unter elektrostatischer Kontrolle über ein Frontgate gezeigt. Zum Abschluss werden in Abschnitt 4.3 die Erkenntnisse aus dieser Serie diskutiert, mit der Literatur verglichen und Rückschlüsse für weitere Strukturdesigns sowie die Fertigung von DQW Proben gezogen.

4.1 Variation in binären GaSb/InAs Doppelquantenfilmen

Für die Variation der InAs Schichtdicke wurden über die numerische Simulation – wie in Abschnitt 3.1 beschrieben – drei Schichtstrukturen gewählt: Probe *bin1* befindet sich nominell im trivialen Regime, Probe *bin2* am Inversionspunkt E_k zwischen trivialem und invertiertem Regime und Probe *bin3* im nominell invertierten Regime. Dabei wurden die umliegende Struktur sowie die GaSb Schichtdicke konstant gehalten, einzig die InAs Schichtdicke wurde variiert. In Tabelle 4.1 sind die relevanten Parameter zusammengefasst. Für diese Punkte folgte die Berechnung der Dispersionsrelation [134]. In Abbildung 4.1 sind die relevanten Bereiche, gezeigt.

Probennummer	Struktur GaSb/InAs [nm]	Regime	Bandlücke Γ [meV]
bin1	8 / 7,5	normal	25,5
bin2	8 / 8,7	am Inversionspunkt	0
bin3	8 / 10,5	invertiert	-25,1

Tabelle 4.1 Übersicht über die Probenparameter der binären Probenserie bin1 - bin3

Für *bin1* ist die für einen Halbleiter zu erwartende Form der Dispersionsrelation mit parabelförmigen Zustandsverläufen mit einer Bandlücke von 25,5 meV zu sehen. Für *bin2* liegt bei ca. 0,14 eV bzw. bei k=0 meV ein Berührungspunkt von Elektronen und Schwerlochzustand vor. Daraus ergibt sich folglich die Bandlücke von 0 meV. Für den invertierten Zustand zeigt sich die zu erwartende x⁴-artige Ausbildung einer Inversionsbandlücke (-25,1 meV) am Γ-Punkt und einer Hybridisationsbandlücke Δ abseits vom Γ-Punkt.



Abbildung 4.1 Dispersionsrelationen für Proben *bin*1 – *bin*3.

bin1) Halbleiterartige Ausprägung mit parabelförmigen Zuständen ($E_{gap}=25,5$ meV). **bin2)** Am Inversionspunkt berühren sich Elektronen und Lochniveau am Γ -Punkt ($E_{gap}=0$ meV). **bin3)** Im invertierten Regime bildet sich x⁴-artig die Inversionsbandlücke ($E_{gap}=-25,1$ meV) und eine Hybridisationsbandlücke aus.

Die Proben wurden auf n-GaSb Substraten gefertigt. Darauf folgt 200 nm epitaktisch aufgetragenes GaSb zur Substratglättung. Anschließend folgt die untere Barriere mit 45 nm AlSb und ein 8 nm GaSb Film. Die InAs-Schichtdicke variiert für *bin1 - bin3*. Darauf folgen die obere Barriere mit 45 nm AlSb und eine 5 nm GaSb Deckschicht, welche die aluminiumhaltige Schicht vor Oxidation schützt. Der Schichtaufbau ist in Abbildung 4.2 schematisch gezeigt.



Variation der InAs Schichtdicke und elektrische Manipulation von GaSb/InAs Doppelquantenfilmen

Abbildung 4.2 Schema der Schichtstruktur der Proben bin1 – bin3.

Die Schichtdickenkombination in Probe *bin1* ist so gewählt, dass sie sich im normalen Regime befindet. Für *bin2* ist die Schichtdicke so gewählt, dass sich die Probe am Inversionspunkt befindet und *bin3* so, dass sie invertiert ist.

Zur Kontrolle des Wachstums und der Kristallqualität der Probe wurde jeweils eine HRXRD-Messung durchgeführt. Die Messkurven sind in Abbildung 4.3 aufgetragen. Zur direkten Vergleichbarkeit sind die Messungen jeweils mit ihrem GaSb-Maximum auf 1 normiert und übereinandergelegt. Zur besseren Sichtbarkeit wurden die Daten für bin2 um zwei sowie die Daten für bin3 um vier Größenordnungen verschoben. Zu größeren Winkeln hin, rechts vom GaSb-Maximum, zeigt sich für steigende InAs Schichtdicken ein höheres Grundniveau. Links vom GaSb-Maximum zeigen sich, leicht zueinander verschoben, die jeweiligen AlSb Doppelpeaks. Der Versatz ist durch unterschiedlichen DQW Dicken bedingt. Aus schmalen, definierten Maxima lässt sich auf eine gute kristalline Qualität und damit eine zufriedenstellende Wachstumsqualität schließen.



Abbildung 4.3 Normierte HRXRD Messungen an Proben bin1 – bin 3.

Die normierten Spektren zeigen für höhere Winkel ein mit der InAs Schichtdicke ansteigendes Grundniveau und für niedrigere Winkel einen geringen Versatz der AlSb Maxima. Zur besseren Sichtbarkeit wurden die Daten für bin2 um zwei sowie die Daten für bin3 um vier Größenordnungen verschoben. Im Anschluss an das Wachstum folgt die laterale Strukturierung der Heterostruktur in Hall-Barren. Hierfür wurde das Hall-Barren-Layout 2 aus Abschnitt 2.5 verwendet. Das angewandte Verfahren entspricht dem in Abschnitt 3.4 beschriebenen optimierten Prozess aus kombiniertem Ätzprozess mit Lack-Schutz an der Oberfläche und HCl Oxidentfernung an den Flanken. Nach dem Aufbringen von Kontakten auf die InAs-Schicht wurde ein SiO₂/Si₃N₄ Übergitter (10 x 10 nm/10 nm) mittels PECVD-Verfahren aufgebracht. Anschließend wurden Kontaktfenster geöffnet und ein Frontgate sowie Kontaktpads aufgedampft.

4.2 Elektronische Manipulation der InAs Schichtdickenvariation

Die Untersuchung der so gefertigten Strukturen erfolgte mittels Magnetotransportmessungen bei einer Temperatur von 4,2 K. Hierbei kamen zwei unterschiedliche Varianten zur Anwendung: Einerseits wurden B-Feld Variationen für unterschiedliche Frontgatespannungen gefahren, andererseits wurden Feldvariationen des Frontgates für unterschiedliche B-Feld Positionen durchgeführt.

Abbildung 4.4 zeigt den Verlauf der Hallspannung R_{xy} für positive Magnetfelder von 0 T bis 10 T für ausgewählte Frontgatespannungen der Proben bin1 - bin3. Im Inset ist der Verlauf des Längswiderstandes Rxx in Abhängigkeit von der Frontgatespannung Vtg abgebildet. Der Längswiderstand Rxx zeigt jeweils für eine Frontgatespannung von -2V den maximalen Wert $R_{xx,max}$. Dieser nimmt für dicker werdende InAs Filme ab. So gilt für bin1 $R_{xx,max}$ = 35 k Ω , für *bin2* $R_{xx,max}$ = 28 k Ω und für *bin3* $R_{xx,max}$ = 2,7 k Ω . Das Vorzeichen der Steigung in R_{xy} spiegelt die überwiegende Ladungsträgerart wider. So ergibt elektronisch dominierter Transport eine positive Steigung in R_{xy} und lochdominierter Transport eine negative Steigung. Die Art der am Transport beteiligte Ladungsträger – Elektronen



Abbildung 4.4 Hallspannung *Rxy* in Abhängigkeit vom Magnetfeld B für die Proben *bin1 - bin3*

Im Inset ist R_{xx} für die jeweiligen R_{xy} Messpunkte aufgetragen. Proben *bin1 - bin3* zeigen ein Umschalten von elektronischem Transport (positive Steigung) für positive V_{tg} hin zu lochdominiertem Transport (negative Steigungen) für hohe negative V_{tg}. und/oder Löcher – ist abhängig von der Frontgatespannung. Für stark positive Spannungen ist für alle Proben bin1 - bin3 eine hohe Elektronendichte vorhanden. Für stark negative Spannungen wechseln alle drei Proben in ein lochdominiertes Transportregime. Der Wechsel der Majoritätsladungsträger geht mit dem Maximum in R_{xx} einher.

Abbildung 4.5 bis Abbildung 4.7 zeigen die Ladungsträgerdichte (a) sowie die Beweglichkeit (b) der Probe *bin1 - bin3* für die Variation der Frontgatespannung in 20mV Schritten bei konstantem B-Feld. Die Messung wurde für einen Magnetfeldbereich von 0 T bis 9 T in 250 mT Schritten wiederholt. Aus der Summe dieser Messungen berechnete sich mittels einer linearen Hallnäherung (vgl. Formel (1)) die Ladungsträgerdichte und Beweglichkeit gegenüber der Frontgatespannung. Positive Ladungsträgerdichten geben Elektronen wieder und negative Ladungsträgerdichten Löcher. Nahe des Punktes des maximalen Widerstandes *R_{xx,max}* ergeben diese Anpassungen für die Ladungsträgerdichte *N_s* keine physikalisch sinnvollen Ergebnisse, sondern springen von $-\infty$ auf $+\infty$. Diese Ergebnisse werden daher nicht gezeigt. Zur besseren Orientierung ist der R_{xx} Verlauf für 0 T mit abgebildet (blau). Farblich hinterlegt wird das dominante Regime angezeigt. Weiter wurde die Lochbeweglichkeit sowie für eine Ladungsträgerdichte von N_s = 10 x 10¹¹ cm⁻² sowie $N_s = 20 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ die korrespondierende Elektronenbeweglichkeit $\mu_{e,10}$ sowie $\mu_{e,20}$ bestimmt. Der Längswiderstand im elektronischen Regime sowie im lochdominierten Regime *R_{xx,e}* und *R_{xx,l}* wird für 0 T angegeben. "Loch-" sowie "Elektronen-" Regime geben hier jeweils die Art des Majoritätsladungsträgers an. Der Widerstandsverlauf ist in den jeweiligen Regimes annähernd konstant, daher wurde dieser jeweils für feste V_{tg} Werte von +9,5V bzw. -9,5 V bestimmt. Im Rahmen ihrer Schrittweite und Messgenauigkeit stimmen die Daten der beiden Messvarianten überein. Im folgenden Abschnitt werden die erhobenen Daten grafisch dargestellt und quantitative Beobachtungen wiedergegeben. Eine Diskussion der Ergebnisse erfolgt übergreifend in Abschnitt 4.3.

Probe *bin*1

Für Probe *bin1* nimmt für V_{tg} +10 V bis 0 V die elektronische Ladungsträgerdichte und Mobilität ab, was sich in einer zunehmenden Steigung zeigt (s. Abbildung 4.4) Für positive Frontgatespannungen treten quantisierte Hallplateaus auf. Für eine gute Vergleichbarkeit wird V_{tg} = +8V als Referenz gewählt und hier für alle Proben der Füllfaktor bestimmt. Für Probe *bin1* lassen sich hierfür Plateaus bis zu einem Füllfaktor von v = 5 bestimmen. Für -2 V liegt das Ferminiveau in der Bandlücke, dort ist typischerweise kein Transportregime zu definieren. Für -4 V und kleinere Topgatespannungen war die Probe im Lochregime. Für B-Felder von 6 T und größer ist im Lochregime ein Zwei-Ladungsträgerverhalten zu beobachten, bei dem die Hallgerade zu positiver Steigung abknickt.

Abbildung 4.5 bestätigt diese Einteilung. Von V_{tg} = -10 V bis ca. -4,5 V befindet sich die Probe im Lochregime. Die Lochdichte beträgt annähernd konstant 6,2 × 10¹¹ $\frac{1}{cm^2}$ bei einer

Lochbeweglichkeit von $\mu_l = 0,06 \times 10^5 \frac{cm^2}{Vs}$. Zwischen $V_{tg} = -4,5$ V und -0,5 V liegt das Ferminiveau in der Bandlücke. Für $V_{tg} = -2,2$ V ergibt sich $R_{xx,max(bin1)}=39$ k Ω . Oberhalb von -0,5 V lag Elektronentransport vor. Sowohl für die Ladungsträgerdichte als auch für die Beweglichkeit zeigt sich hier eine lineare Abhängigkeit von V_{tg}. Für eine Ladungsträgerdichte $N_s = 10 \times 10^{11} \frac{1}{cm^2}$ ergibt die Mobilität $\mu_{e,10} = 0,25 \times 10^5 \frac{cm^2}{Vs}$ und für $N_s = 20 \times 10^{11} \frac{1}{cm^2}$ die Mobilität $\mu_{e,20} = 0,61 \times 10^5 \frac{cm^2}{Vs}$. Die maximal gemessene Elektronenbeweglichkeit liegt bei $\mu_{e,max} = 0,88 \times 10^5 \frac{cm^2}{Vs}$.



Abbildung 4.5 Ladungsträgerdichte N_s (a) und Beweglichkeit μ (b) für Probe *bin1*. Zur besseren Orientierung wurde jeweils der Verlauf von R_{xx} abgebildet und die einzelnen Bereiche (Lochregime, Bandlücke und Elektronenregime) farblich markiert. Negative Werte für N_s geben eine Lochdichte und positive Werte eine Elektronendichte wieder. Hierfür wurde die Frontgatespannung in 20mV Schritten bei konstantem B-Feld variiert und diese Messung in einem Magnetfeldbereich von 0 T bis 9 T in 250 mT Schritten wiederholt. Über eine lineare Näherung wurde aus der Summe dieser Daten die Landungsträgerdichte sowie die Beweglichkeit ermittelt.

Probe bin2

Probe *bin2* befindet sich für $V_{tg} = +10$ V bis 0 V ebenfalls im elektronischen Regime, für $V_{tg} = +8$ V ist ein Landauniveau mehr besetzt, was zu einem Füllfaktor von $v_{bin2} = 6$ führt (s. Abbildung 4.4). R_{xx} erreicht für $V_{tg} = -2$ V sein Maximum $R_{xx,max(bin2)} = 28$ k Ω . Der korrespondierende Verlauf für R_{xy} ist stark nichtlinear: Bis ca. 3 T ähnelt die Kennlinie elektronischem Transport und knickt dann zu negativer Steigung ab. Für negative Frontgatespannungen $V_{tg} \leq -4$ V befindet sich die Probe im Lochregime – ohne elektronischen Anteil.

In Abbildung 4.6 sind die Daten für Ladungsträgerdichte und Mobilität gegen die Frontgatespannung aus der V_{tg} -Variation für unterschiedliche B-Felder gezeigt. Von V_{tg} = -10 V bis ca -4,2 V befindet sich die Probe im Lochregime. Die Lochdichte beträgt annähernd konstant 7,8 × 10¹¹ $\frac{1}{cm^2}$ bei einer Lochbeweglichkeit von $\mu_l = 0,04 \times 10^5 \frac{cm^2}{Vs}$. Für V_{tg} = -2,2 V ergibt sich $R_{xx,max(bin2)}$ =29 k Ω . Ab V_{tg} = -0,7V befindet sich die Probe im elektronischen Regime. Sowohl für die Ladungsträgerdichte als auch für die Beweglichkeit zeigt sich hier eine lineare Abhängigkeit von V_{tg} . Für eine Ladungsträgerdichte $N_s = 10 \times 10^{11} \frac{1}{cm^2}$ ergibt die Mobilität $\mu_{e,10} = 0.45 \times 10^5 \frac{cm^2}{V_s}$ und für $N_s = 20 \times 10^{11} \frac{1}{cm^2}$ folgt $\mu_{e,20} = 1.11 \times 10^5 \frac{cm^2}{V_s}$. Die maximal gemessene Elektronenbeweglichkeit liegt bei $\mu_{e,max} = 1.5 \times 10^5 \frac{cm^2}{V_s}$.



Abbildung 4.6 Ladungsträgerdichte **(a)** und Beweglichkeit **(b)** für Probe *bin2*. Zur besseren Orientierung wurde jeweils der Verlauf von R_{xx} abgebildet und die einzelnen Bereiche (Lochregime, Bandlücke und Elektronenregime) farblich markiert. Negative Werte für N_s geben eine Lochdichte und positive Werte eine Elektronendichte wieder. Hierfür wurde die Frontgatespannung in 20mV Schritten bei konstantem B-Feld variiert und diese Messung in einem Magnetfeldbereich von 0 T bis 9 T in 250 mT Schritten wiederholt. Über eine lineare Näherung wurde aus der Summe dieser Daten die Landungsträgerdichte sowie die Beweglichkeit ermittelt.

Probe bin3

Probe *bin3* zeigt einen um ca. Faktor 10 reduzierten Längswiderstand mit $R_{xx,max(bin3)} = 2,7 \text{ k}\Omega$. R_{xy} verhält sich unter Variation der Frontgatespannung ähnlich der Proben *bin1* und *bin2*. Für positive $V_{tg} \gtrsim 2 \text{ V}$ liegt elektronischer Transport vor. Für $V_{tg} = 8 \text{ V}$ beträgt der Füllfaktor von $v_{bin3} = 7$. Für 0 V und – 2 V ließ sich kein eindeutiges Transportregime bestimmen. Für -2 V ergab sich eine annähernd von B unabhängige R_{xy} Kennlinie. Für höher negative Frontgatespannungen liegt überwiegend Lochtransport vor.

Abbildung 4.7 bestätigt diese Einteilung. Von $V_{tg} = -10$ V bis ca -4,5 V befindet sich die Probe im Lochregime. Die Lochdichte beträgt annähernd konstant $12,4 \times 10^{11} \frac{1}{cm^2}$ bei einer Lochbeweglichkeit von $\mu_l = 0,03 \times 10^5 \frac{cm^2}{Vs}$. Zwischen $V_{tg} = -4,5$ V und +1 V liegt das Ferminiveau in der Bandlücke. Für $V_{tg} = -2,4$ V ergibt sich $R_{xx,max(bin3)}=3$ k Ω . Oberhalb von +1 V liegt Elektronentransport vor. Sowohl für die Ladungsträgerdichte als auch für die Beweglichkeit zeigt sich hier ein konstanter Anstieg mit V_{tg}. Für eine Ladungsträgerdichte $N_s = 10,0 \times 10^{11} \frac{1}{cm^2}$ ergibt die Mobilität $\mu_{e,10} = 0,49 \times 10^5 \frac{cm^2}{Vs}$ und für $N_s = 20,0 \times 10^{11} \frac{1}{cm^2}$ $10^{11} \frac{1}{cm^2}$ die Mobilität $\mu_{e,20} = 1,42 \times 10^5 \frac{cm^2}{Vs}$. Die maximal gemessene Elektronenbeweglichkeit liegt bei $\mu_{e,max} = 1,77 \times 10^5 \frac{cm^2}{Vs}$.



Abbildung 4.7 Ladungsträgerdichte **(a)** und Beweglichkeit **(b)** für Probe *bin3*. Im Vergleich zu Abbildung 4.5 und Abbildung 4.6 gilt es den veränderten y-Achsen Maßstab zu beachten. Zur besseren Orientierung wurde jeweils der Verlauf von R_{xx} abgebildet und die einzelnen Bereiche (Lochregime, Bandlücke und Elektronenregime) farblich markiert. Negative Werte für N_s geben eine Lochdichte und positive Werte eine Elektronendichte wieder. Hierfür wurde die Frontgatespannung in 20mV Schritten bei konstantem B-Feld variiert und diese Messung in einem Magnetfeldbereich von 0 T bis 9 T in 250 mT Schritten wiederholt. Über eine lineare Näherung wurde aus der Summe dieser Daten die Landungsträgerdichte sowie die Beweglichkeit ermittelt.

4.3 Fazit InAs Variation und elektrostatische Manipulation

In diesem Abschnitt werden die Ergebnisse aus Abschnitt 4.2 zusammengefasst und diskutiert. In Tabelle 4.2 sind die charakteristischen Größen der Proben bin1 - bin3 gesammelt. Der Längswiderstand ist für drei Bereiche und jeweils ohne angelegtes Magnetfeld angegeben. Rxx,max ist der Wert des maximalen Längswiderstandes, Rxx,e im elektronischen Regime und *R_{xx,l}* im Lochregime. Der Widerstandverlauf im Loch- sowie im Elektronenregime ist annähernd konstant, daher wurde dieser jeweils für feste V_{tq} Werte von +9,5V bzw. -9,5 V bestimmt. Innerhalb der Serie zeigt sich eine Abnahme aller Längswiderstände

		bin1	bin2	bin3
R _{xx,max}	[kΩ]	39	29	3
$R_{xx,l}$	[Ω]	1821	2042	1658
R _{xx,e}	[Ω]	26	16	14
Nı	$\left[\frac{1}{cm^2}\right]$	6,2 × 10 ¹¹	7,8 × 10 ¹¹	$12,4 \times 10^{11}$
μ_l	$\left[\frac{cm^2}{Vs}\right]$	0,06 × 10 ⁵	0,04 × 10 ⁵	0,03 × 10 ⁵
$\mu_{e,10}$	$\left[\frac{cm^2}{Vs}\right]$	0,25 × 10 ⁵	0,45 × 10 ⁵	0,49 × 10 ⁵
$\mu_{e,20}$	$\left[\frac{cm^2}{Vs}\right]$	0,61 × 10 ⁵	$1,11 \times 10^{5}$	1,42 × 10 ⁵

Tabelle 4.2 Überblick über die Kenngrößen der binären Probenserien

mit InAs Schichtdicke. Für das elektronische Regime lässt sich dies mit zunehmender Beweglichkeit unterlegen. Die Werte für $\mu_{e,10}$ – für $N_s = 10 \times 10^{11} \frac{1}{cm^2}$ – bzw. $\mu_{e,20}$ – für $N_s = 20 \times 10^{11} \frac{1}{cm^2}$ – steigen mit zunehmender InAs Schichtdicke. Der Anstieg der Leitfähigkeit im Lochregime geht im Gegensatz dazu nicht mit einer Steigerung der Lochmobilität einher. Allerdings steigt die – im Lochregime innerhalb einer Probe annähernd konstante – Lochdichte N_l mit zunehmender InAs Schichtdicke an, während die Lochmobilität fällt. Dies resultiert in geringen Veränderungen von $R_{xx,l}$.

Der Bereich maximalen Widerstands *R_{xx,max}* ist mit Blick auf die Realisation eines Quanten-Spin-Hall-Effekts in GaSb/InAs DQWs von besonderer Bedeutung, da hier der Anteil von "Volumen"-Leitung im 2D Material stark reduziert wird. Dies verspricht eine Messung der Leitwertsquantisierung. In Abbildung 4.8 ist der Verlauf des maximalen Längswiderstandes *R_{xx,max}* für die Proben *bin1 - bin3* dargestellt (ausgefüllte Dreiecke, cyan). Mit offenen Symbolen ist der theoretisch zu erwartende Verlauf gezeigt.



Abbildung 4.8 Betrachtung R_{xx,max} für Probenserie bin

Theoretisch zu erwartender und gemessener $R_{xx,max}$ für die binäre Probenserie gegen die Probennummer aufgetragen. Die gemessenen Werte fallen mit ansteigender Probennummer ab und entsprechen damit nicht den zu erwartenden Werten aus der Betrachtung der Bandlücke an Γ -Punkt bzw. des gesamten k-Raums.

Hierfür wurde der Widerstand $R_{xx,max}$ als proportional zu den besetzten Zuständen betrachtet und die Fermiverteilung über eine Boltzmann-Verteilung genähert.

$$R_{xx,max} \propto \exp\left(\frac{E_{gap}}{k_B T}\right)$$
 12

Dabei ist k_B die Boltzmannkonstante ³¹ [135] und für E_{gap} wurde in Abbildung 4.8 die Bandlücke am Γ -Punkt (offene Quadrate, schwarz) sowie die Bandlücke Δ bei k_{cross} (offene Kreise, rot) verwendet. Für Probennummer *bin1* wurde über Gleichung 12 ein Proportionalitätsfaktor bestimmt und damit der theoretische Wert für Probennummer 2 sowie 3

 $^{^{31}\,}k_B$ = 8.617303 * 10 $^{-5}\,eV/K$ entnommen aus CODATA Datenbank

berechnet. Für Probennummer *bin*3 wäre, dem Design der Heterostruktur nach, quantisierter Transport zu erwarten. In den Messdaten liegt der Widerstand des Systems aber deutlich unter dem zu messenden quantisierten Widerstand 2e²/h. Der Wert von 2e²/h ist in Abbildung 4.8 eingezeichnet.

Die Messdaten entsprechen nicht den aus der Theorie bzw. den simulierten Werten berechneten Widerständen. Der Vergleich legt nahe, dass für Probe *bin*2 eine Bandlücke größer $E_{gap} = 0$ meV vorliegt. Für Probe *bin*3 liegt der Widerstand deutlich unter dem für $E_{gap}(\Gamma)$ zu erwartenden Wert und nähert sich dem für $E_{gap}(k_{cross}) = \Delta$ an. Für eine Unterdrückung der Volumenleitfähigkeit gilt es folglich die Bandlücke im gesamten k-Raum zu betrachten. Zur Vergrößerung der Hybridisationsbandlücke bietet die Verwendung von verspannten Quantenfilmen einen vielversprechenden Ansatz. Hierfür wurde von Du et al. [22] bereits gezeigt, dass in AlGaSb/InAs/Ga0,68In0,32Sb/AlGaSb Werte $\Delta \approx 20$ meV möglich sind.

Für die Betrachtung der Quantenfilmeigenschaften und damit der Prozessqualität ist die Mobilität der Ladungsträger eine charakteristische Größe. Die Mobilität ist bei tiefen Temperaturen überwiegend von der Streuung an Struktur- und Kristallfehlern abhängig. Hierbei spielen Verunreinigungen, Gitterfehler, Übergangs-Rauigkeit und Legierungs-Streuung eine Rolle [136]–[139]. Da die Proben unter identischen Bedingungen gewachsen sowie prozessiert wurden, sollten diese Parameter vergleichbar sein und keinen signifikanten Einfluss auf die Mobilität haben.

In Abbildung 4.9 ist die Beweglichkeit der Ladungsträger für Proben *bin1* bis *bin3* gegen die variable Größe der Serie dargestellt – gegen die InAs Schichtdicke d_{InAs} . Mit einer Zunahme der InAs Schichtdicke zeigt sich eine Zunahme der Mobilität der dort lokalisierten Elektronen. Mit steigender d_{InAs} nimmt die Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Elektronen Ψ^2 (E1) am GaSb/InAs Übergang und damit die Bedeutung der Übergangs-Rauigkeiten für die Ladungsträgerbeweglichkeit ab. Damit begründet sich ein Anstieg in der Mobilität. Die Lochmobilität sinkt für die Verbreiterung der der InAs Schichtdicke leicht. Damit konnte gezeigt werden, dass der Prozess aus Abschnitt 3.4 untereinander quantitativ vergleichbare Ergebnisse liefert.


Abbildung 4.9 Beweglichkeit der Ladungsträger in Abhängigkeit der InAs Schichtdicke d_{InAs} Die Beweglichkeit der Elektronen steigt mit der InAs Schichtdicke – sowohl $\mu_{e,10}$ für $N_s = 10 \times 10^{11} \frac{1}{cm^2}$ – bzw. $\mu_{e,20}$ für $N_s = 20 \times 10^{11} \frac{1}{cm^2}$. Der Anstieg ist nicht linear, flacht für höhere d_{InAs} ab. Die Lochmobilität (schwarz) fällt für dickere InAs Filme.

GaSb/InAs Quantenfilme weisen prinzipiell geringere Mobilitäten als beispielsweise AlGaAs/GaAs Strukturen [140] auf. Für Strukturen auf GaSb Substrat zeigten Nguyen et al. [36], dass Mobilitäten von bis zu $\mu_e = 5 * 10^5 \ cm^2/Vs$ im elektronischen Regime erreicht werden können. Von Charpentier et al. [91] wurden kurz darauf Werte von $\mu_e = 14 * 10^6 \ cm^2/Vs$ bzw. $\mu_e = 1.5 * 10^6 \ cm^2/Vs$ für zwei unterschiedliche Gallium-Chargen berichtet. Da eine hohe Mobilität mit einer erhöhten Volumenleitfähigkeit einhergeht, ist eine Optimierung der Mobilität nicht zum Selbstzweck erstrebenswert. Eine hohe Mobilität zeigt allerdings auch eine gute Probenqualität. Auch wenn topologisch geschützte Zustände unempfindliche gegen kleine Störungen sind, erfordert die Ausbildung der Randzustände eine hinreichende Probenqualität. Ziel muss folglich eine Struktur mit hoher Probenqualität sein, vor allem mit Blick auf die Kristallqualität und die Oberflächen/Seitenflanken, die im trivialen Regime aber einen hohen Widerstand aufweist.

Hierfür sind unterschiedliche Ansätze bekannt: Die Inkorporation einer Beryllium δ -Dotierung einige nm zurückgesetzt neben der InAs Schicht zielt auf eine Reduktion der intrinsischen Elektronendichte in der InAs Schicht ab [33], [90]. Für den Einbau einer Silizium Dotierschicht am GaSb/InAs Übergang wurde die Unterdrückung der verbliebenen Volumenleitfähigkeit gezeigt [31]. Mit der Verwendung unterschiedlicher Ga-Quellen konnte der maximale Längswiderstand $R_{xx,max}$ am Ladungsträgerneutralitätspunkt um 4 Größenordnungen reduziert werden. Alternativ zu "low-mobility" Gallium wird auch die Verwendung von Al_xGa_{1-x}Sb für x \approx 1 % vorgeschlagen [91].

Davon ausgehend wurde untersucht, ob das Einbringen zweier Al-haltigen Schichten am GaSb/InAs Übergang zu einer Reduktion der Leitfähigkeit führt. Hierfür wurden drei Proben untersucht mit jeweils einer Monolage AlSb und AlAs am GaSb/InAs Übergang untersucht: Die Proben *iML1*³² bis *iML3*. Die Strukturen sind anlog zur binären Probenserie so gestaltet, dass nur die InAs Schichtdicke variiert wurde und je eine Probe nominell im trivialen, am Übergang und im invertierten Regime liegt. In Abbildung 4.10 ist der Schichtaufbau skizziert. Im Vergleich zu den Strukturen ohne eingefügte Monolage sind einige Ångström dickere InAs Schichten notwendig, um ebenfalls eine Inversion von ≈±25 meV zu erreichen. Ein erhöhter Widerstand konnte in ersten Untersuchungen nicht gezeigt werden, bedarf aber weiterer Betrachtung. Da dickere Al-haltige Schichten am Materialübergang mit einer Reduktion des Bandüberlapps und der Hybridisierung einhergehen [141], stellt eine reine Verbreiterung keinen Verbesserungsansatz dar. Das Einbringen einer oder mehrerer Al-haltiger Monolagen im InAs- oder GaSb-Film hingegen könnte einen Ansatzpunkt bieten. Die Auswirkung auf die Mobilität der "2D-Volumen"-Ladungsträger ist maximal, wenn sich die Position der Monolage und des Maximums der Aufenthaltswahrscheinlichkeit Ψ^2 der Ladungsträger decken [142].



Abbildung 4.10 Schichtstrukturaufbau der Proben mit Monolagen am GaSb/InAs Übergang *iML1 - iML3* Die Schichtdickenkombination in Probe *iML1* ist so gewählt, dass sie sich im normalen Regime befindet. *iML2* so, dass sich die Probe am Inversionspunkt befindet und *iML3* so, dass sie invertiert ist.

Probe *bin3* sollte der nominellen Struktur und der numerischen Simulationen nach im topologischen Regime liegen. Eine Messung des quantisierten Transports wäre allerdings von zu hoher "Volumen"-Leitfähigkeit verdeckt. Auch das zu erwartende 2-Ladungsträgerverhalten im hybridisierten Regime ist in den Messungen nicht vorhanden. Hierfür sind sich mehrere Gründe möglich.

Zuerst ist es möglich, dass die Simulation den Einfluss der InAs Verbreiterung auf die Hybridisierung überschätzt oder aber die real gefertigte InAs Schichtdicke hinter der ge-

³² Von engl. interfacial mololayer

wünschten Schichtdicke zurückblieb. Dies würde zu jeweils drei Proben im trivialen Regime führen. Die Betrachtung der $R_{xx,max}$ Werte (s. Abbildung 4.8) unterstützt diese Theorie. Danach läge Probe *bin3* nahe der Zielstruktur von *bin2*. In fortführenden Untersuchungen könnten die Fertigung und Untersuchung einer Struktur, die sich (nominell) deutlich weiter im invertierten Regime befindet, diese Vermutung bestätigen.

Als zweite mögliche Ursache muss betrachtet werden, dass die Proben mit nur einem Gate gesteuert wurden. Damit ist eine Verschiebung im Phasendiagramm nach Liu et al. [17] und Du et al. [81] (vgl. Abbildung 2.5) nur in senkrechter (Frontgate-) Richtung möglich (s. Abbildung 4.11). Ein korrigierendes Eingreifen auf Abweichungen in der Heterostruktur und den Inversionszustand ist aufgrund des fehlenden Backgates nicht möglich. Trotz intensiver Bemühungen war es im Rahmen dieser Arbeit nicht möglich, verlässlich Leckstrom-freie Backgates zu fertigen.



Backgate

Abbildung 4.11 Schematische Darstellung der elektrostatischen Manipulation via Frontgate Ausgehend von drei Proben *bin*1 - *bin*3 zeigen die grauen Pfeile den Vorgang beim Verfahren der Frontgatespannung. (In Anlehnung an Liu et al [17] und L. Du et al. [81])

Ein reines Verstimmen des Ferminiveaus E_F entspricht den von F. Qu et al. [81] bestimmten Linien gleichen Bandüberlapps bzw. -abstandes (schematisch in Gelb in Abbildung 4.11). Hier wird zuerst deutlich, dass nur die dem jeweiligen Gate nahen Quantenfilme effektiv verstimmt werden. Es zeigt sich aber auch, dass eine Kontrolle des Ferminiveaus mit einem Gate zwangsläufig auch die Bandstruktur verändert. Ein Schieben in den Lochbereich durch negative Spannung am Frontgate entspricht somit einer Verschiebung der Struktur weiter ins triviale Regime. Ein Verschieben in die topologische Lücke erfordert folglich ein Backgate.

In Kapitel 5 wird mit der optischen Manipulation eine Alternative geboten, die das Problem umgeht, dass Leckströme zum Backgate auftreten.

5 Optische Manipulation von GaSb/InAs Doppelquantenfilmen

In den vorhergehenden Kapiteln wurde ausschließlich das Frontgate zur Kontrolle des elektrischen Zustandes verwendet. Folgend wird gezeigt, dass über optische Anregung die Art der Majoritätsladungsträger von Elektronen zu Löchern geschoben werden kann. Dabei wird ein Regime durchlaufen, in dem beide Ladungsträger koexistieren. Dies weist stark auf eine Elektron-Loch-Hybridisierung mit nichttrivialer topologischer Phase hin.

Bei der Verschiebung der Ladungsträgerart kommen zwei unterschiedliche Effekte zum Tragen, die ähnlich einem Frontgate bzw. einem Backgate wirken. Wie im kommenden Kapitel dargelegt wird, beruht der Frontgate Effekt auf der negativen persistenten Photoleitfähigkeit (PPC ³³) und der Backgate Effekt auf der Akkumulation von Elektronen im substratseitigen AlSb/GaSb Übergitter (vgl. Kapitel 3.2). Das hier gezeigte, optisch kontrollierte Verschieben der Zustände belegt die Realisation von opto-elektronischem Schalten zwischen unterschiedlichen Phasen und zeigt die Möglichkeit einer optischen Kontrolle des Phasendiagramms der GaSb/InAs TIs (vgl. Abbildung 2.5).

Im kommenden Abschnitt 5.1 wird die optische Verstimmung von GaSb/InAs Quantenfilmen an Probe *opt1* gezeigt und erklärt. Sie wird in Abhängigkeit von der Temperatur, der Anregungswellenlänge sowie der Anregungsintensität untersucht. Zur Kontrolle werden in Abschnitt 5.2 Untersuchungen an Proben mit verändertem Schichtaufbau präsentiert. Abschließend werden in Abschnitt 5.3 die Erkenntnisse aus Kapitel 5 zusammengefasst und deren Möglichkeiten diskutiert.

³³ Vom engl. persistent photoconductivity, s. S. 76 ff

5.1 Optische Manipulation an Probe opt1

Neben elektrischer Kontrolle über Front- und Backgate ist für bestimmte Konfigurationen der Heterostruktur auch eine optische Kontrolle über die Phase möglich. Abbildung 5.1 veranschaulicht den Aufbau der Probe opt1. Teilbild a) zeigt den schematischen Aufbau mit den dazugehörigen Schichtdicken. Auf dem Quasisubstrat aufbauend (vgl. Kapitel 3.2) folgen die gitterangepasste, 100 nm dicke untere Al_{0.89}As_{0.11}Sb Barriere, ein DOW mit 10 nm GaSb und 12 nm InAs, die 50 nm Al_{0.89}As_{0.11}Sb obere Barriere und abschließend eine 5nm GaSb Deckschicht. Abbildung 5.1 b) zeigt eine colorierte REM Aufnahme der Schichtstruktur. Die Struktur wurde so gewählt, dass das Elektronenniveau im InAs unterhalb des Lochniveaus im GaSb liegt. Dies ist in der Vergrößerung des Bandstrukturschemas Abbildung 5.1 c) veranschaulicht (roter Kasten). Die Inversionsbandlücke beträgt nach nextnano Simulation ≈30 meV, die Hybridisationsbandlücke öffnet sich bei ca. 0,1 nm⁻¹ und beträgt 18 meV. Das Wachstum wurde – wie in Kapitel 3.2 beschrieben – auf n-GaAs mit GaSb Quasisubstrat durchgehführt. Anschließend wurden Hall-Barren nach Hall-Barren-Layout 1 (vgl. Abschnitt 2.5) strukturiert. Hierfür wurde ausschließlich mit Cocktailätze geätzt. Es folgte, außer dem Aufdampfen der Kontakte, kein weiterer Prozessschritt.



Abbildung 5.1Probenaufbau opt1.

a) schematischer Aufbau *opt1*. Auf einem n-GaAs Substrat wurde zuerst ein Quasisubstrat aufgewachsen, dem dann die eigentliche DQW-Struktur folgt. **b)** Colorierte REM Aufnahme der vollständigen Schichtstruktur von *opt1*. **c)** Numerische Simulation des Valenz- (VB)- und Leitungsbandprofils (LB) der Heterostruktur, einschließlich des AlSb/GaSb-Übergitters (SL) und der AlAsSb/GaSb/InAs/AlAsSb-Region mit ihrer Typ-II(b)-Bandstruktur am InAs und GaSb Übergang. In der Vergrößerung des aktiven Bereichs werden die lokalisierten Zustände von Elektron (e-) und Löchern (h+) dargestellt.

Alle hier gezeigten Messungen wurden, soweit nicht anders vermerkt, bei 4,2 K durchgeführt. Als Lichtquellen dienten eine LED mit rotem Licht (E = 1,80 eV) sowie eine IR-LED (E = 1,32 eV). Damit liegt die Bandlücke der AlAs_{0,11}Sb_{0,89} Barrieren ($E_{gap} = 2,33 \text{ eV}$) oberhalb der beiden verwendeten Lichtquellen, die Bandlückenenergie von GaSb (0,81 eV) unterhalb. Unter roter Beleuchtung verändern sich der Längs- sowie der Hall-Widerstand der Probe *opt1*. Abbildung 5.2 zeigt den Hall-Widerstand R_{xy} (schwarz) und den Längswiderstand R_{xx} (blau) als Funktion der Beleuchtungszeit, aufgezeichnet für ein konstant angelegtes Magnetfeld von B = 2 T.



Abbildung 5.2 Hall- und Längswiderstand in Abhängigkeit der Beleuchtungsdauer Hall-Widerstand R_{xy} (schwarz) und Längswiderstand R_{xx} (blau) in Abhängigkeit der Beleuchtungszeit mit der roten LED, unter konstantem Magnetfeld von B = 2 T und T = 4,2 K. R_{xx} erreicht seinen maximalen Widerstand $R_{xx,max} = 33,5$ k Ω bei $t \approx 28$ s. Zeitgleich wechselt der Hall-Widerstand R_{xy} von positiven zu negativen Werten. Um die Beleuchtungszeit t ≈ 28 s findet ein Majoritätsladungsträgerwechsel von Elektronen auf Löcher statt. Die senkrechten Linien 1-8 geben farbkodiert die Position der $R_{xy}(B)$ Messungen in Abbildung 5.4 wieder.

Für die dargestellte Messung wurde die rote LED bei Belichtungszeit t = 0 s eingeschaltet und die Probe bei konstanter LED-Lichtleistung permanent beleuchtet. Währenddessen wurden R_{xx} und R_{xy} aufgenommen. Ohne optische Anregung (d. h. bei t = 0 s) liegt der Wert des Längswiderstandes bei R_{xx} = 7,5 k Ω . Der positive Hall-Widerstand zeigt, dass Elektronen die Hauptladungsträger sind.

Unter konstanter optischer Anregung stieg R_{xx} in einer Beleuchtungszeit t ≈ 28 s zu einem maximalen Widerstandswert von $R_{xx,max} = 33,5$ k Ω an und fiel anschießend wieder ab. Längere Beleuchtungszeit führten zu einer Reduzierung des Längswiderstandes, bis R_{xx} bei t = 70 s einen Sättigungswert von etwa $R_{xx} = 14,5$ k Ω erreicht. Die entsprechende Hall-Widerstandsmessung zeigt, dass eine Vorzeichenumkehr des Hall-Widerstandes von t = 0 bis 70 s erfolgt und dass der Majoritätsladungsträgertyp von Elektronen auf Löcher umschaltet. Dieser Übergang mit verschwindendem Hall-Widerstand erfolgt an der Scheitelposition des Längswiderstandes, d. h. bei einer Beleuchtungszeit von $t \approx 28$ s. Der Punkt des maximalen Widerstandes wird auch als Ladungsträgerneutralitätspunkt CNP³⁴ bezeichnet.

³⁴ Von engl. charge neutrality point

Am CNP wurde R_{xx} für verschiedene Temperaturen bestimmt. In Abbildung 5.3 ist $R_{xx,max}$ gegen die inverse Temperatur aufgetragen und mit einer Arrhenius-Funktion 1/ $R_{xx;max} \propto exp(-E_{gap}/2k_BT)$ [18], [21] angepasst. Für Temperaturen größer 10 K leitet sich $E_{gap} = 11,0$ meV und $T_{gap} = 128$ K ab. E_{gap} entspricht damit der Hybridisationsbandlücke Δ von 18 meV.



Abbildung 5.3 Arrhenius Darstellung des R_{xx,max} Wertes

Maximalwert des Längswiderstandes in Abhängigkeit von der inversen Temperatur. $R_{xx,max}$ steigt mit abnehmender Temperatur monoton bis auf 10,7 k Ω (zur besseren Vergleichbarkeit wird (2e²/h)⁻¹ als blaue gestrichelte Linie dargestellt). Vom entsprechenden Arrhenius-Diagramm kann eine Aktivierungsenergie von 11 meV (bis ca. 10 K) abgeleitet werden, die mit der berechneten Hybridisationsbandlücke von ca. 18 meV gut übereinstimmt.

Nach dem Ausschalten des Lichtes war der Wert auch nach ca. 18 Stunden stabil. Um nach der Lichteinwirkung wieder auf den Anfangswert des Längswiderstandes zurückzuschalten, werden zehn μ W elektrische Leistung an den Stromkontakten benötigt (für mindestens 10 Minuten), um den Anfangswert wiederherzustellen. Alternativ setzt ein Erwärmen der Probe auf Raumtemperatur den Effekt zurück.

Für ausgewählte Zeitpunkte der Beleuchtungsdauer wurden Messungen in Abhängigkeit des Magnetfeldes durchgeführt. Die Zeitpunkte der in Abbildung 5.4 gezeigten $R_{xy}(B)$ Messungen sind in Abbildung 5.2 durch senkrechte Linien gekennzeichnet.

Vor jeder Magnetfeldmessung wurde die Probe für eine bestimmte Zeit beleuchtet, z. B. 10 Sekunden für Punkt 2. Anschließend wurde die Beleuchtung abgeschaltet und die Hall-Widerstands Magnetfeldmessung durchgeführt. Für die Dauer der Messung verhielt sich die Probe konstant. Nach der Messung wurde die LED wieder eingeschaltet, z. B. 12 Sekunden für Punkt 3 (insgesamt 22 Sekunden Beleuchtungszeit) und die nächste Hall-Widerstands Magnetfeldmessung wurde durchgeführt. Für kurze Beleuchtungszeiten (Punkte 1 und 2) zeigt der Hall-Widerstand gut ausgeprägte ganzzahlige Quanten-HallPlateaus bei Vielfachen des Widerstandsquants $R_k = h/2e^2$. Obwohl sich die Hall-Widerstandskurven bei niedrigen Magnetfeldern vollkommen linear zu entwickeln scheinen, wird eine schwache nichtlineare Steigung beobachtet, die bereits auf die Existenz von Loch Minoritätsladungsträgern hinweist. Bei den Punkten 3 und 4 – kurz vor Erreichen der $R_{xx,max}$ Position bei $t \approx 28$ s – wird der Hall-Widerstand bei niedrigen Magnetfeldern offensichtlich nichtlinear und ist gegenüber den bei kürzeren Beleuchtungszeiten (Punkte 1 und 2) erzielten Hall-Widerstandswerten deutlich reduziert. Dies deutet darauf hin, dass sich – trotz Elektronen als Majoritätsladungsträger – eine signifikante Loch-Minoritätsladungsträgerdichte ausbildet.



Abbildung 5.4 R_{xy} für unterschiedliche Beleuchtungsdauern in Abhängigkeit des Magnetfeldes Hall-Widerstand R_{xy} in Abhängigkeit des Magnetfeldes, gemessen für die farblich markierten Zeitpunkte und die entsprechenden Zahlen aus Abbildung 5.2. Im Elektronenregime – entsprechend niedriger Beleuchtungszeiten (Kurven 1 und 2) – zeigen die Hall-Widerstandskurven ausgeprägte ganzzahlige Quanten-Hall-Plateaus. Für längere Beleuchtungszeiten zeigt der Hall-Widerstand einen deutlicher werdenden Anteil beider Ladungsträgerarten am Transport, verbunden mit einer Vorzeichenumkehr des Hall-Widerstandes bei etwa B = 0,5 T.

Für Beleuchtungszeiten von ca. 28 Sekunden, rund um den CNP (Punkte 5 und 6), wechselt die Steigung des Hall-Widerstand *Rxy* das Vorzeichen. Diese ist für Werte der Magnetfeldstärke *B* kleiner 1 T (für Punkt 5) sowie 0,5 T (für Punkt 6) und negativ für Werte darüber. Majoritätsladungsträger sind nun Löcher. Bei längeren Belichtungszeiten (Punkt 7 und 8) bleibt der Hall-Widerstand nichtlinear mit negativem und positiv steigendem Hall-Widerstand bei großen bzw. niedrigen Magnetfeldern. Für längere Beleuchtungszeiten (hier nicht dargestellt) bleibt die Nichtlinearität des Hall-Widerstandes erhalten und erreicht nie die lineare Signatur des alleinigen Lochtransports. Die Nichtlinearität des Hall-Widerstandes in der Nähe des CNPs wird durch die Beteiligung von Elektronen und Löchern verursacht. Die Abbildung 5.5 a) und b) zeigen die Ladungsträgerdichten und -mobilitäten beider Ladungsträger, wie sie sich aus einer Zwei-Ladungsträger-Anpassung mit Gleichung 8 (s. Seite 25) für die R_{xy} Daten in Abbildung 5.4 ergeben.

Die Ergebnisse zeigen vor dem CNP hauptsächlich elektronische Leitung mit einer Elektronendichte im Bereich von 10¹¹ cm⁻², während danach die Lochdichte die Elektronendichte übersteigt. Die Ladungsträgerdichten im Loch- und Elektronenregime (weit entfernt vom CNP) sind vergleichbar.

Die im Vergleich zu Löchern deutlich erhöhte Beweglichkeit der Elektronen (etwa Faktor 4) führt zu den beobachtbaren ganzzahligen Quanten-Hall-Plateaus im Elektronenregime (siehe Kurven 1 und 2, Abbildung 5.4). Kombiniert mit den koexistierenden Löchern ergibt sich daraus auch der nichtlineare Hall-Widerstand im Elektronenregime mit Minoritätsladungsträgern (Löchern) und die Vorzeichenumkehrung des Hall-Widerstandes im Lochregime.

Im Vergleich zu den in der Literatur berichteten Mobilitätswerten liegt die hier dargestellte Elektronenmobilität etwa eine Größenordnung unter den Literaturwerten (s. Quellen [36], [81]). Die Lochmobilität hingegen ist gut mit anderen Literaturwerten zu vergleichen [81]. Die Elektronenbeweglichkeit in *opt1* ist reduziert, die Lochmobilität ist vergleichbar. Die in der Literatur berichteten Rekordmobilitäten wurden jedoch, wie die binäre Serie, in Heterostrukturen auf GaSb-Substraten erzielt. Diese weisen – wie in Abschnitt 3.2 gezeigt – eine bessere Kristallqualität auf. Weiter gilt es bei diesem Vergleich zu beachten, dass die Ladungsträgerdichte der für *opt1* gezeigten Mobilitäten gering sind. Das lässt vermuten, dass die optische Verstimmung nur einen relativ kleinen Bereich kontrolliert – verglichen mit ±10 V Frontgatespannung in Kapitel 3.4.

Die Elektronenmobilität im Loch-dominierten Regime beträgt $\approx 35 \cdot 10^3 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ und die Lochmobilität im Elektronen-dominierten Regime $\approx 10 \cdot 10^3 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ (nicht gezeigt in Abbildung 5.5)



Abbildung 5.5 Ladungsträgerdichte und Mobilität in Abhängigkeit der Beleuchtungszeit Ladungsträgerdichten **(a)** und Mobilitäten **(b)** der Elektronen- und Lochgase, berechnet über das Zwei-Ladungsträger-Modell (siehe Gleichung (8)) in Abhängigkeit von der Beleuchtungszeit. Zum Vergleich wird auch R_{xx} (blaue Quadrate) für B = 0 T dargestellt. **a)** Der Majoritätsladungsträgertyp wechselt von Elektronen zu Löchern, während der Längswiderstand R_{xx} sein Maximum durchläuft. Unterhalb und oberhalb der Beleuchtungszeit $t \approx 28$ s beträgt das Verhältnis von Majoritäts- zu Minoritätsladungsträgern etwa 4. **b)** Entsprechende Elektronen- und Lochmobilitäten als Funktion der Beleuchtungszeit. Die Elektronenbeweglichkeit ist etwa um den Faktor vier größer als die Lochbeweglichkeit.

Das Antwortverhalten der Probe *opt1* ist sowohl von der verwendeten Lichtfarbe bzw. - energie als auch von der Beleuchtungsintesität abhängig.

Ein Beleuchten mit rotem Licht ermöglicht einen Wechsel des Majoritätsladungsträgers von Elektronen auf Löcher. Bei einer Beleuchtungszeit von $t \approx 28$ s liegt die Fermi-Energie in der Bandlücke und der Längswiderstand wird maximal, $R_{xx,max}$. Die Zeit, für die unter konstanter Beleuchtung $R_{xx,max}$ erreicht wird, entspricht einer Beleuchtungszeit Δt . Diese ist abhängig von der Lichtintensität und die Geschwindigkeit der optischen Abstimmung kann darüber gesteuert werden. Abbildung 5.6 verdeutlicht, dass die erforderliche Beleuchtungszeit indirekt mit der Beleuchtungsintensität zusammenhängt. Zwischen jeder Messung wurde die Probe erwärmt, um sie in ihren Ausgangszustand zurückzusetzten. Dies wurde für unterschiedliche Lichtleistungen durchgeführt und Δt gegen die LED Leistung aufgetragen. Für niedrige LED Leistungen (0,1 nW) beträgt Δt etwa 100 s und redu-

ziert sich auf 0,6 s für 1 μ W Leistung. Aus der Anpassungs-Funktion lässt sich eine Steigung von - 0,58 ableiten. Die zuvor genannte Zeit von 28 s entspricht einer Lichtleistung von ca. 1 nW. Es gilt zu beachten, dass die Werte der Lichtleistung dabei überschätzt werden. Das Licht der LED wurde nicht auf den untersuchten Hall-Barren fokussiert und nur ein Bruchteil des tatsächlich emittierten Lichts ist für die optische Abstimmbarkeit verantwortlich. Daher sollten effektive Lichtleistungen im pW-Bereich für die Anregung ausreichen.



Abbildung 5.6 Abhängigkeit von Beleuchtungsintesität Beleuchtungszeit (Δt), die benötigt wird, um $R_{xx,max}$ zu erreichen, in Abhängigkeit von der Lichtleistung der roten LED. Bei geringen Lichtleistungen wird der maximale Längswiderstand bei ca. 100 s erreicht. Δt sinkt auf 0,6 s für eine Steigerung der Lichtleistung um vier Größenordnungen. Die Steigung lässt sich auf -0,58 bestimmen.

Die optische Abstimmbarkeit des Transportverhaltens lässt sich mit einem Zusammenspiel zweier physikalischer Effekte erklären, die ähnlich eines Frontgates bzw. eines Backgates wirken. Der Frontgate Effekt beruht auf der negativen persistenten Photoleitfähigkeit (PPC ³⁵), der Backgate Effekt wiederum basiert auf der Akkumulation von Elektronen im substratseitigen AlSb/GaSb Übergitter. Abbildung 5.8 zeigt das Schema dieser beiden Prozesse.

Für Quantenfilme aus 6,1 Ångström Materialien – v. a. für einzelne oder doppelte in Al(As)Sb-Matrizen eingebettete InAs Quantenfilme – sind in der Literatur sowohl positive als auch negative PPC bekannt [143]–[151]. Deren Auftreten sowie Ausprägung ist abhängig von der jeweiligen Heterostruktur und Materialzusammensetzung, aber auch von der Energie des anregenden Lichts. Die Autoren führen den positiven PPC zum Teil auf DX-Zentren zurück. Der positive PPC ist für einfallende Lichtenergien unter ~1,2 eV vorhanden. Oberhalb der Lichtenergien von ~1,55 eV überwiegt der negative PPC, da er auf einem Interband-Absorptionsprozess beruht. Die Absorptionswahrscheinlichkeit ist für Interbandanregung deutlich höher als für einen Defektband-Absorptionsprozess von DX-

³⁵ Vom engl. persistent photoconductivity

Zentren. Mehrere Untersuchungen [144], [147], [148] beschäftigen sich mit der Entwicklung von positiver zu negativer Photoleitfähigkeit von AlSb/InAs/AlSb-Quantentöpfen in Abhängigkeit von der einfallenden Lichtenergie. Für Photonenenergien über \approx 1,55 eV zeigen die Autoren eine negative persistente Photoleitfähigkeit, die sie auf photogenerierte Löcher in der GaSb Deckschicht zurückführen. Bei ausreichender Photonenenergie, d. h. über 1,55 eV, können diese Löcher die GaSb/AlSb-Barriere überwinden und sich im InAs-Quantentopf ansammeln, in dem sie mit Elektronen rekombinieren. Dies führt zum Abbau von Elektronen im InAs QW, analog zur elektrischen Kontrolle über ein negatives Frontgate. Der Prozess ist rechts unten in Abbildung 5.8 schematisch dargestellt. Bei niedrigeren Photonenenergien entfällt dieser Vorgang (siehe [144]]), da die Migrationszeit der Löcher die Rekombinationszeit überschreitet und die fotogenerierten Elektron-Loch-Paare rekombinieren. Da die Breite der GaSb Deckschicht nur 5 nm beträgt (oder 3 nm für die Kontrollversuche, siehe Abbildung 4.2 und Abbildung 4.10), werden weniger als 1% der einfallenden Photonen innerhalb der Deckschicht absorbiert. Referenzen [144], [147], [152] liefern das klare Bild, dass Elektronen-Loch-Paare, die durch Interbandabsorption und anschließende Lochmigration und Rekombination am InAs-Quantenfilm entstehen, zu einer Entvölkerung des InAs-Quantenfilms – dem negativen PPC – führen. Die dabei zurückbleibenden Elektronen sind in der GaSb Deckschicht gebunden [144]. Parallel zu unseren Untersuchungen wurde der negative PPC von der Arbeitsgruppe um Rui Rui Du an GaSb/InAs Doppelquantenfilmen gezeigt [26]. Darüber war eine Manipulation der Ladungsträgerdichte und ein Verschieben in die Bandlücke möglich, aber ein Wechseln der Majoritätsladungsträger sowie Zwei-Ladungsträgerverhalten konnten nicht gezeigt werde.



Abbildung 5.7 Abhängigkeit von der Lichtenergie

Vergleich des R_{xx} Verlaufes über die Beleuchtungszeit für die rote und IR-LED. R_{xx} steigt bei IR Beleuchtung deutlich langsamer an. Während $R_{xx,max}$ vergleichbar ist, fällt für IR Beleuchtung der Widerstand auch für sehr lange Beleuchtungszeiten nicht wieder ab.

Um die Hypothese zu überprüfen, dass Photonen mit Energien über und unter 1,55 eV einen negativen Frontgate-Betrieb aktivieren oder deaktivieren, wurde R_{xx} auch für eine zweite Lichtenergie aufgezeichnet: IR-LED (1,32 eV).

Abbildung 5.7 zeigt und vergleicht die R_{xx} -Zeitspuren für beide LEDs. Unabhängig von der Photonenenergie nimmt R_{xx} über die Beleuchtungszeit zu. Allerdings lassen sich zwei deutliche Unterschiede feststellen. Zunächst wird unter roter Beleuchtung $R_{xx,max}$ in wesentlich kürzer Zeit erreicht (etwa eine Größenordnung). Die Zeitskalendifferenz kann auf Unterschiede in der Lichtleistung sowie unterschiedliche Absorptionskoeffizienten zurückgeführt werden. Darüber hinaus – und von besonderer Bedeutung – verbleibt R_{xx} bei IR Beleuchtung auf $R_{xx,max}$, während bei roter Beleuchtung R_{xx} für längere Beleuchtung wieder abnimmt (für $t > \Delta t$). Während die rote LED nach Durchlaufen der Bandlücke den dominanten Ladungsträgertyp umschaltet, stoppt die Wirkung der IR LED innerhalb der Bandlücke.



Abbildung 5.8 Schematische Darstellung der beteiligten Anregungs- und Akkumulationsprozesse An der Oberfläche, in der GaSb Deckschicht, genügt eine Anregungsenergie von 1,55 eV und mehr (nur für rote LED gültig) für eine Migration der angeregten Löcher bis in den InAs Quantenfilm und eine Rekombination mit den dort vorhandenen Elektronen. Auf der Substratseite werden für beide verwendeten Anregungsenergien Elektron-Loch Paare generiert. Während Löcher ins Substrat abwandern, akkumulieren die Elektronen innerhalb des Übergitters an der Rückseite der DQW-Struktur.

Diese Verschiebung ist analog zu einem Backgate Effekt in der elektrischen Feldabstimmung. Der optisch aktivierte Backgate Effekt ist hier auf die Erzeugung von Elektronen-Loch-Paaren auf der Substratseite des DQW zurückzuführen. Unter Beleuchtung mit Photonen oberhalb der GaSb-Bandlückenenergie $E_{gap} \approx 0,81$ eV (dies gilt für beide LED-Energien) werden auf der Substratseite des DQWs Elektronen-Loch-Paare erzeugt (siehe Abbildung 5.8). Ein kleines strukturbedingtes elektrisches Feld reicht aus, um die generierten Elektronen-Loch-Paare effektiv zu trennen. Elektronen können sich im AlSb/GaSb-Übergitter ansammeln, während Löcher zur Substratseite hin driften, wo sie schließlich rekombinieren. Da Elektronen-Loch-Paare durch Interband-Absorption in GaSb erzeugt werden, kann der Backgate Effekt auch bei IR-Anregung beobachtet werden – aufgrund des reduzierten Absorptionskoeffizienten aber über längere Zeiten. Die im Übergitter angesammelten Elektronen wirken analog einer negativen Spannung am Backgate. Abbildung 5.9 zeigt ein Schema des Phasendiagramms für die Front- und Backgate Kontrolle (vgl. Abschnitt 2.1) mit den für optische Anregung möglichen Pfaden (Pfeile). Für rote Beleuchtung erfolgt sowohl ein Front- als auch ein Backgate Effekt. Für IR Beleuchtung resultiert nur ein Backgate Effekt. Die optische Abstimmbarkeit des dominanten Ladungsträgertyps in der topologischen Phase der InAs/GaSb-Doppelquantentöpfe gibt eine zusätzliche Kontrollmöglichkeit im Phasendiagramm.



Backgate

Abbildung 5.9 Schema des Phasendiagramms für rote und IR Beleuchtung In das Phasendiagramm aus Abschnitt 2.1 ist hier der jeweilige Pfad für rote oder IR Beleuchtung eingezeichnet. IR Anregung bewirkt nur einen Backgate Effekt, während rote Beleuchtung sowohl einen Backals auch einen Frontgate Effekt bewirkt. (In Anlehnung an Liu et al [17])

5.2 Kontrollversuche optische Manipulation

Zur Kontrolle wurden Versuche mit optischer Verstimmung an den Serien *bin1 - bin3* sowie *iML1 - iML3* durchgeführt. Details zur Probenserie *bin* und *iML* finden sich in Abschnitt 4.1 bzw. Abbildung 4.10.

Eine Verstimmung unter optischer Anregung, die dem Frontgate entspricht, ist auch für diese Kontrollexperimente zu erwarten. Abhängig von der Anregungsenergie sollte entweder negativer oder positiver PPC beobachtbar sein. Wie oben bereits ausführlich beschrieben (s. S. 72) tritt negativer persistenter Photoeffekt nur für Photonenenergien über \approx 1,55 eV (rote LED) auf und wirkt analog zur elektrischen Kontrolle über ein negatives Frontgate.

Allerdings ist im Gegensatz zu Probe *opt1* kein Verschieben der Phase in Backgate Richtung zu erwarten. Der Backgate-Betrieb geht auf einen anhaltenden Ladungsträgeraufbau im GaSb/AlSb-Übergitter zurück. Allen Kontrollproben ist gemeinsam, dass sie auf GaSb Substrat gefertigt wurden und kein Übergitter auf der Substratseite (unterhalb der unteren AlSb-Barriere) aufweisen.

Die Abbildung 5.10 bis Abbildung 5.15 zeigen die experimentellen Ergebnisse unter Beleuchtung für die Proben *bin1* bis *bin3* sowie *iML1* bis *iML3*. Für diese Experimente wurden R_{xx} und R_{xy} als Funktion der Beleuchtungszeit für beide LED-Energien gemessen, je einmal mit und ohne ein angelegtes Magnetfeld von B = 2T. Die Abbildung 5.10 a) bis Abbildung 5.15 a) zeigen, dass R_{xx} bei Beleuchtung mit der Rot-LED mit der Zeit zunimmt und nach einer probenabhängigen Beleuchtungszeit einen Sättigungswert $R_{xx,max}$ erreicht. Bei allen Proben wird nach Erreichen von $R_{xx,max}$ kein Abfall von R_{xx} beobachtet. Der Wert von R_{xx} ist von den Quantentopfbreiten und -layouts abhängig. Dies gilt für $R_{xx,max}$ sowie R_{xx} zur Beleuchtungszeit t = 0.

Während Beleuchtung mit der roten LED zu einem signifikanten Anstieg von *R*_{xx} über die Beleuchtungszeit führt, zeigt sich für die Anregung mit IR-Licht eine deutlich reduzierte Erhöhung des Längswiderstandes. Dies begründet sich darin, dass negativer PPC nur für Anregungsenergien oberhalb von ca. 1,55 eV zu einer Elektronen-Depopulation des InAs Films führt. Die deutlich geringere Leitwertsreduktion kann mit IR angeregten NPPC erklärt werden, der auf Anregung von DX-Zentren (oder genauer gesagt von Defekten im Bereich der GaSb-Kappe) zurückgeht.

Für die entsprechenden Hallwiderstände (siehe Teilbilder b) und c)) wird kein Wechsel des Vorzeichens beobachtet. Bei allen Proben der Serien *bin* und *iML* ist keine Vorzeichenumkehr festzustellen und die Ladungsträgerartumschaltung fehlt. Zwischen den beiden Serien besteht ein Unterschied: Für Serie *bin* steigt der Hall-Widerstand unter Beleuchtung, während für die Serie mit Monolagen am Interface *iML* zuerst ein kurzer Anstieg in R_{xx} erfolgt, dann aber R_{xx} für längere Beleuchtungszeiten abnimmt.

Diese Kontrollexperimente stehen mit der zuvor gegebenen Interpretation im Einklang und deuten darauf hin, dass das Übergitter auf der Substratseite für die Beobachtung der Ladungsträgerartumschaltung eine wichtige Rolle spielt. Diese Ergebnisse werden von den Ergebnissen aus [26] unterstützt. Hier wird – analog zu unseren Untersuchungen – für eine Struktur ohne substratseitiges Übergitter berichtet, dass über negativen PPC die Ladungsträgerdichte moduliert, aber die Majoritätsladungsträgerart nicht verändert werden kann.



Abbildung 5.10 Magnetotransportmessungen an Probe *bin1* unter roter und IR Beleuchtung **a)** R_{xx} als Funktion der Beleuchtungszeit für rote und IR Beleuchtung ohne Magnetfeld. Der Längswiderstand nimmt mit zunehmender Beleuchtungszeit zu und sättigt sich bei einem Wert von etwa 9 k Ω bzw. 1,5 k Ω für rote und IR Beleuchtung. In **b)** und **c)** ist der Hall-Widerstand R_{xy} für B = 2 T unter roter bzw. IR Beleuchtung dargestellt (schwarz). Zum Vergleich ist der Längswiderstand R_{xx} in Farbe gezeigt. Die Hall-Widerstandsmessung zeigt, dass keine Vorzeichenumkehr und keine Ladungsträgerumschaltung stattfinden.



Abbildung 5.11 Magnetotransportmessungen an Probe *bin2* unter roter und IR Beleuchtung **a)** R_{xx} als Funktion der Beleuchtungszeit für rote und IR Beleuchtung ohne Magnetfeld. Der Längswiderstand nimmt mit zunehmender Beleuchtungszeit zu und sättigt sich bei einem Wert von etwa 8 k Ω bzw. 1,2 k Ω für rote und IR Beleuchtung. In **b)** und **c)** ist der Hall-Widerstand R_{xy} für B = 2 T unter roter bzw. IR Beleuchtung dargestellt (schwarz). Zum Vergleich ist der Längswiderstand R_{xx} in Farbe gezeigt. Die Hall-Widerstandsmessung zeigt, dass keine Vorzeichenumkehr und keine Ladungsträgerumschaltung stattfinden.



Abbildung 5.12 Magnetotransportmessungen an Probe *bin3* unter roter und IR Beleuchtung **a)** R_{xx} als Funktion der Beleuchtungszeit für rote und IR Beleuchtung ohne Magnetfeld. Der Längswiderstand nimmt mit zunehmender Beleuchtungszeit zu und sättigt sich bei einem Wert von etwa 2,25 k Ω bzw. 1 k Ω . für rote und IR Beleuchtung. In **b)** und **c)** ist der Hall-Widerstand R_{xy} für B = 2 T unter roter bzw. IR Beleuchtung dargestellt (schwarz). Zum Vergleich ist der Längswiderstand R_{xx} in Farbe gezeigt. Die Hall-Widerstandsmessung zeigt, dass keine Vorzeichenumkehr und keine Ladungsträgerumschaltung stattfinden.



Abbildung 5.13 Magnetotransportmessungen an Probe *iML1* unter roter und IR Beleuchtung **a)** R_{xx} als Funktion der Beleuchtungszeit für rote und IR Beleuchtung ohne Magnetfeld. Der Längswiderstand nimmt mit zunehmender Beleuchtungszeit zu und sättigt sich bei einem Wert von etwa 2,6 k Ω bzw. 1,2 k Ω für rote und IR Beleuchtung. In **b)** ist der Hall-Widerstand R_{xy} für B = 2 T unter roter Beleuchtung gezeigt (schwarz). Zum Vergleich ist der Längswiderstand R_{xx} in Blau gezeigt. Die Hall-Widerstandsmessung zeigt, dass keine Vorzeichenumkehr und keine Ladungsträgerumschaltung stattfinden.



Abbildung 5.14 Magnetotransportmessungen an Probe *iML2* unter roter und IR Beleuchtung **a)** R_{xx} als Funktion der Beleuchtungszeit für rote und IR Beleuchtung ohne Magnetfeld. Der Längswiderstand nimmt mit zunehmender Beleuchtungszeit zu und sättigt sich bei einem Wert von etwa 1,5 k Ω bzw. 0,5 k Ω für rote und IR Beleuchtung. In **b)** ist der Hall-Widerstand R_{xy} für B = 2 T unter roter Beleuchtung dargestellt (schwarz). Zum Vergleich ist der Längswiderstand R_{xx} in Blau gezeigt. Die Hall-Widerstandsmessung zeigt, dass keine Vorzeichenumkehr und keine Ladungsträgerumschaltung stattfinden.



Abbildung 5.15 Magnetotransportmessungen an Probe *iML3* unter roter und IR Beleuchtung **a)** R_{xx} als Funktion der Beleuchtungszeit für rote und IR Beleuchtung ohne Magnetfeld. Der Längswiderstand nimmt mit zunehmender Beleuchtungszeit zu und sättigt sich bei einem Wert von etwa 0,4 k Ω bzw. 0,7 k Ω für rote und IR Beleuchtung. In **b)** und **c)** ist der Hall-Widerstand R_{xy} für B = 2 T unter roter Beleuchtung dargestellt (schwarz). Zum Vergleich ist der Längswiderstand R_{xx} in Blau gezeigt. Die Hall-Widerstandsmessung zeigt, dass keine Vorzeichenumkehr und keine Ladungsträgerumschaltung stattfinden.

Tabelle 5.1 vergleicht den Wert des Längswiderstandes $R_{xx,max}$ unter optischer Verstimmung mit rotem Licht mit dem Wert unter elektrostatischer Kontrolle via Frontgate. Es zeigt sich, dass die Maximalwerte des Längswiderstandes $R_{xx,max}$ geringer sind. Der über elektrostatische Kontrolle erreichbare Bereich ist größer als der über negativ persistenten Photoeffekt erreichbare Bereich.

Probe/Wert		bin1	bin2	bin3
R _{xx,max} unter Frontgate	[kΩ]	39	29	3
R _{xx,max} rote Beleuchtung	[kΩ]	9	8	2,25

Tabelle 5.1 Vergleich von R_{xx,max} für optische und elektrische Verstimmung

5.3 Fazit optische Manipulation

Die optische Abstimmbarkeit des dominanten Ladungsträgertyps in der topologischen Phase der InAs/GaSb-Doppelquantentöpfe gibt eine zusätzliche Kontrollmöglichkeit im Phasendiagramm. Bei niedrigen bzw. großen Beleuchtungsstärken ist die Majoritätsladungsträgerdichte entweder elektronen- oder lochartig. Dazwischen erfolgt eine Elektronen-Loch-Hybridisierung und das System geht in eine nicht-triviale topologisch isolierende Phase mit einer Hybridisationsbandlücke über. Während persistente Photoeffekte in Heterostrukturen aus 6,1 Ångström-Materialien schon lange bekannt sind [143]–[151] und kürzlich gezeigt wurde, dass dieser zur Verstimmung von GaSb/InAs Doppelquantenfilmen benutzt werden kann [26], bringt die Ergänzung der Struktur um ein Übergitter auf der Rückseite des DQWs optische Kontrolle über beide Gates.

Kontrollversuche an Proben mit unterschiedlichem Schichtaufbau (siehe Abschnitt 5.2) bestätigen, dass das Übergitter auf der Substratseite für die Beobachtung der Ladungsträgerumschaltung eine wichtige Rolle spielt. Ohne das Übergitter können die generierten Elektronen abfließen und rekombinieren, somit fehlt die rückseitige Gatewirkung. Aus diesen Kontrollexperimenten lässt sich schließen, dass DX-Zentren [151] oder Ladungsträger, die im InAs oder GaSb-Quantenfilm erzeugt werden, nicht zum optischen Schalten beitragen.

Das Zusammenspiel von negativer Photoleitfähigkeit und dem Aufbau von photogenerierten Ladungsträgern ermöglicht eine gleichzeitige Steuerung der Fermi-Energie und des elektrischen Feldes. Der optisch induzierte Zwei-Gate-Betrieb von InAs/GaSb-DQWs ergibt eine Möglichkeit, Leckströme in diesen Materialien zu umgehen und ebnet den Weg zu elektro-optischen Bauelementen auf Basis topologischer Materialien.

Für die Anwendung und die Realisation von schaltbaren TI-basierten Bauteilen sind räumlich definierte, variierbare Übergänge zwischen trivialen und topologischen Phasen von Interesse. Einerseits könnten mit diesen "künstlichen Oberflächen" Probleme mit Leckströmen an der realen GaSb sowie InAs Oberfläche geschickt umgangen werden. Andererseits können aus dem Schaltvorgang neue Erkenntnisse gezogen werden, z. B. über das Ausbilden eines topologischen Randzustandes. Da das Umschalten zwischen normalen (NI) und topologischen isolierenden (TI) Phasen eine Variation beider Gatespannungen erfordert, würden seitliche NI-TI-NI-Schnittstellen räumlich definierte Front- und Backgate-Elektroden erfordern. Definierte Frontgates sind technologisch etabliert. Definierte Backgates hingegen erfordern selektive Ätztechniken sowie ein Abdünnen bzw. Entfernen des Substrates. Dies ist technisch vermutlich möglich, aber keineswegs etabliert. Mit der oben vorgestellten optischen Abstimmung können räumlich definierte Backgate-Elektroden über Schattenmasken abgebildet werden und erfordern keine selektive Ätztechnik oder Ausdünnung des Substrats.

6 Bi₂Se₃ Nanoflocken und -drähte

Bi₂Se₃ ist ein vielversprechender Kandidat aus der Gruppe der Chalkogenide für die Realisation sowie die Anwendung von 3-dimensionalen topologischen Isolatoren. Vor allem die – im Vergleich zu 2-D Systemen – hohe (topologische) Bandlücke lässt stabile Oberflächenzustände erwarten – theoretisch auch bei Raumtemperatur.

Ein Ansatz, Problemen mit leitenden Zuständen im Bi₂Se₃ Volumenmaterial zu begegnen, ist die Reduktion des notwendigen Volumens. Hierfür kommt ein viel genutzter Vorteil in der Nanotechnologie zur Anwendung: die Vergrößerung des Oberflächen-zu-Volumen Verhältnisses bei immer stärkerer Reduktion der Größe. Während das Volumen in der dritten Potenz der Größe eines Körpers abnimmt, fällt die Oberfläche nur quadratisch. Mit dem Ziel, diesen Effekt für die Realisation des topologischen Isolators in Bi₂Se₃ auszunutzen, wurde im Rahmen dieser Arbeit erstmalig das Wachstum von Nanostrukturen mit Molekularstrahlepitaxie realisiert [39].

In Abschnitt 6.1 werden für das kommende Kapitel ausgewählte technische und physikalische Grundlagen gezeigt. Die Eigenschaften von dreidimensionalen topologischen Isolatoren werden erläutert, direkt gefolgt von den spezifischen Eigenschaften von Bi₂Se₃ als toplogischer Isolator. Daran schließen sich die Materialeigenschaften des Bi₂Se₃ Kristalles an. Abschließend wird die epitaktische Herstellung von Nanostrukturen mittels Molekularstrahlepitaxie beschrieben. Hier werden der vapour-liquid-solid-Wachstumsmodus sowie das wurzelbasierte Wachstum eingeführt.

In Abschnitt 6.2 werden die best practice Parameter zum MBE Wachstum von Nanodrähten und Nanoflocken gezeigt und anschließend die erhaltenen Strukturen charakterisiert. Die Ergebnisse von HRXRD und TEM Messungen zeigen, dass die Nanodrähten in der gewünschten Bi₂Se₃ Kristallstruktur vorliegen. Die Auswertung der REM Aufnahmen zeigt das Fehlen von Goldtröpfchen an der Drahtspitze. Darauf aufbauend wird der Wachstums- und Nukleationsmechanismus diskutiert.

6.1 Grundlagen und Technologie Bi₂Se₃

Bi₂Se₃ unterscheidet sich in vielen Eigenschaften von den Materialien der 6,1 Ångström-Familie. Daher werden die Grundlagen für dieses Kapitel separat eingeführt. Auf eine Einführung in die Eigenschaften des dreidimensionalen topologischen Isolators Bi₂Se₃ folgt die Beschreibung der Kristalleigenschaften sowie die Erklärung der Wachstumsmechanismen für die epitaktische Herstellung von Nanostrukturen.

3-dimensionale topologische Isolatoren

Nach Entdeckung der 2D topologischen Isolatoren wurde das Konzept des Quanten-Spin-Hall-Effektes auf dreidimensionale Köper erweitert. Hier bilden sich auf einem isolierenden 3D Material topologisch geschützte Oberflächen aus. Angestoßen wurde dies durch eine Arbeit von Fu, Kane und Mele [38]. Dieser folgten weitere grundlegende Arbeiten von Moore und Balents sowie Roy [153], [154].

Die erste experimentelle Bestätigung eines 3D TIs wurde über ARPES³⁶ an Bi_{1-x}Sb_x erbracht [155]. ARPES liefert im Blick auf 3D topologische Isolatoren ein mächtiges Werkzeug, da die sich direkt an der Oberfläche befindliche abzubildende elektrische Struktur der geringen Eindringtiefe der ARPES Anregung entgegenkommt.

Bismut-basierte Materialien (Bi₂Se₃, Bi₂Te₃, Bi₂Sb₃) wurden als vielversprechende 3D TIs Kandidaten mit vergleichsweise hohen Bandlücken identifiziert [62] und mittels ARPES Messungen bestätigt [63], [156].

Topologischer Isolator Bi₂Se₃

Bi₂Se₃ war in seiner Verwendung als thermoelektrisches Material seit langem bekannt [157], [158] und wurde kurz vor Beginn dieser Arbeit als 3-dimensionaler topologischer Isolator identifiziert [62]. Zhang et al. [62] errechneten für Bi₂Se₃ eine Bandlücke von 300 meV sowie das Vorhandensein eines einzelnen Dirac-Kegels am Γ -Punkt. Der topologische Schutz geht auf die Inversion der Bismut und Selen p_z-Orbitale beim Übergang in Bi₂Se₃ zurück. Hierzu tragen drei Effekte bei: die chemische Bindung, die Kristallfeldtheorie und die starke Spin-Bahn Wechselwirkung (SOC ³⁷). Früh wies ARPES einen einzelnen Dirac Kegel am Γ -Punkt sowie seine 0,3 eV Bandlücke [63] nach.

³⁶ Winkelaufgelöste Photoelektronen Spektroskopie, vom engl. angle resolved photo electron spectroscopy

³⁷ Vom engl. spin orbit coupling

Abbildung 6.1 zeigt die ursprüngliche Berechnung der lokalen Zustandsdichte (LDOS³⁸) von Zhang et al. [62] sowie die experimentelle Bestätigung mittels ARPES Messung von Xi et al. [63]. Sowohl in der Berechnung als auch für den experimentellen Nachweis lassen sich um den Γ -Punkt die Dirac-Kegel-artigen Zustände in der eigentlichen Bandlücke erkennen.

Die – im Vergleich zu anderen TI-Kandidaten – hohe Bandlücke macht Bi₂Se₃ zu einem interessanten Kandidaten für spintronische Anwendungen bei Raumtemperatur und topologische Ansätze des Quantencomputings mit Hilfe von Majorana Fermionen [159]– [161]. Transportmessungen an ultradünnen Bi₂Se₃ Schichten zeigten die Existenz von topologisch geschützten Oberflächenzuständen [40]. Allerdings kaschierten zum Zeitpunkt der Arbeit Zustände im Volumenmaterial die eindeutigen Signaturen der Oberflächenzustände und erschwerten einen Nachweis über Transportmessung sowie deren Verwendung für weitere Experimente.



Abbildung 6.1 Originale Berechnung und ARPES Messungen für Bi2Se3

a) "Energie- und Impulsabhängigkeit der LDOS für Bi₂Se₃ [...] auf der [111] Oberfläche. Hier stellen die wärmeren Farben eine höhere LDOS dar. Die roten Bereiche weisen auf Energiebänder und die blauen Bereiche auf Energielücken hin. Die Oberflächenzustände sind um den Γ Punkt herum deutlich als rote Linien zu erkennen, die sich in der Bulk-Lücke [...] verteilen." [62] ³⁹

b) & **c)** "Hochauflösende ARPES-Messungen der elektronischen Oberflächenband-Dispersion auf Bi₂Se₃(111). Elektronendispersionsdaten gemessen mit einer einfallenden Photonenenergie von 22 eV in der Nähe des Γ -Punktes entlang der Γ -M **(b)** und Γ -K **(c)** Impuls-Raumschnitte." [63] ⁴⁰ Man beachte in der gesamten Grafik die englische Notation.

Hier bieten Nanostrukturen ideale geometrische Voraussetzungen. Je kleiner die Struktur wird, desto größer wird das Verhältnis von Oberfläche zu Volumenmaterial. Somit wird für kleiner werdende Strukturen der Anteil des Volumenmaterials am Transport unterdrückt und die Eigenschaften der Oberflächenzustände treten in den Vordergrund. Kombiniert mit der Möglichkeit, Nanostrukturen "buttom up"⁴¹ mit Molekularstrahlepitaxie

³⁸ Vom engl. local desity of states

³⁹ Genehmigung freundlicherweise erteilt durch Springer Nature

⁴⁰ Genehmigung freundlicherweise erteilt durch Springer Nature

⁴¹ Aus dem engl. "von unten nach oben"; bedeutet hier direkt strukturiertes Wachstum, gegenüber einer späteren "top down" (von oben nach unten) Strukturierung durch z. B. Ätzprozesse.

herzustellen, stellt dies einen Schritt auf dem Weg zum Nachweis von Majorana Fermionen dar. Deren Auftreten wird für den Übergang zwischen topologischem und trivialem Regime in Nähe-induzierten topologisch supraleitenden Nanodrähten erwartet [159]. Parallel zu diesen Arbeiten mit Molekularstrahlepitaxie wurde gezeigt, dass aus Bi₂Se₃ Nanodrähten Feldeffekttransistoren gebaut werden können [51]. Explizite Eigenschaften für Bi₂Se₃-Nanodrähte wurden von Lou et al. berechnet [55].

Bi₂Se₃ Material-System

V₂VI₃ Materialien bestehen stöchiometrisch betrachtet aus zwei Atomen der fünften und drei Atomen der sechsten Hauptgruppe des Periodensystems. Ein typischer Vertreter dieser Gruppe ist Bi₂Se₃. Bis vor kurzem war Bi₂Se₃ hauptsächlich als thermoelektrisches

Material bekannt [157], [158] und wurde für diese Anwendung synthetisiert. Mit der relativ neuen Anwendung als 3D topologischer Isolator wuchs das Interesse an hochreinen Proben mit höchster Kristallqualität.

Der Bi₂Se₃ Kristall gehört zur rhomboedrischen Raumgruppe $R\bar{3}m$ (D_{3d}^5) und zeigt Gitterkonstanten von a=b=4.143 Å. In c-Richtung bildet der Kristall Quintuple-Schichten und hat eine Gitterkonstante von c = 28.636 Å [162]. Innerhalb dieser fünf Lagen ist die Bildung kovalent, die Bindung zwischen den Lagen beruht auf Van-der-Waals-Wechselwirkung [163]. In Abbildung 6.2 ist der schematische Aufbau von Bi₂Se₃ als Kugelmodell gezeigt. Die Stapelreihenfolge innerhalb der Quintuple Schicht ist Se-Bi-Se-Bi-Se. Hier gilt zu beachten, dass die kovalente Bindung innerhalb der Quintuple deutlich stärker ist als die Van-der-Waals-Bindung dazwischen. Bismut



Abbildung 6.2 Bi_2Se_3 Kristallstruktur Bi_2Se_3 Kristallstruktur als Kugelmodell goldene Kugeln stehen für Selen, blaue für Bismut. Innerhalb der Quintuple Schichten sind die Atome durch kovalente Kräfte gebunden. Quintuple Schichten haften durch van-der Waals Anziehung aneinander.

und Selen können in unterschiedlichen stöchiometrischen Verhältnissen vorkommen [164]. Für die Analyse bedeutet dies, sowohl die Raumgruppe als auch die Gitterkonstanten zu überprüfen, um sicherzustellen, dass Bi₂Se₃ mit der passenden stöchiometrischen Zusammensetzung und in der korrekten Kristallstruktur vorliegt.

Frühe Versuche an Bi₂Se₃ zeigten, dass eine n-Dotierung der Oberfläche das Ferminiveau im Leitungsband bindet. Folglich war eine Verwendung als topologischer Isolator nicht möglich. Dies geht meist auf Substitutions-Gitterfehler⁴² oder Se-Fehlstellen zurück, die

⁴² Engl. antisite defects

entweder aus dem Herstellungsprozess stammen, oder aber durch Se-Desorption entstehen [53], [54]. Mit dem Ziel dies zu unterbinden, arbeiteten unterschiedliche Gruppen daran, Bi₂Se₃ mittels Molekularstrahlepitaxie herzustellen [41]–[44], [56]–[61]. Eine weitere Möglichkeit zur Fertigung von Nanostrukturen aus Bi₂Se₃ wurde kurz dem Abschluss der hier gezeigten Arbeiten an Bi₂Se₃ gezeigt. Mit der selektiven epitaktischen Herstellung von Schichten auf vorstrukturiertem Substrat [165] konnten Messungen an unterschiedlichen Nanostruktur-Geometrien realisiert werden [166]. Zum Schutz der Oberfläche wurde hierbei in-situ Aluminium aufgebracht [166], [167]. Cha et al. [168] geben eine Zusammenfassung über weitere Versuche an Bi₂Se₃ Nanostrukturen.

Molekularstrahlepitaxie von Nanostrukturen

Bi₂Se₃ Schichten wurden erfolgreich mit unterschiedlichen Herstellungsmethoden realisiert: pulsed laser depositon PLD⁴³ [45], hot wall epitaxy [46] und Molekularstrahlepitaxie [40], [47], [48]. Bi₂Se₃ Nanodrähte und -flocken wurden bisher vor allem im Hinblick auf thermoelektrische Anwendungen gefertigt. Seitdem die Anwendung als TIs in das allgemeine Interesse gerückt ist, wurde gezeigt, dass Nanodrähte und -flocken mittels MOCVD⁴⁴ [49] sowie in horizontalen Röhrenöfen⁴⁵ [50], [52] hergestellt werden können. Die Herstellung von Bi₂Se₃ Nanostrukturen mittels MBE wurde bisher nicht gezeigt.

Für Nanodrahtwachstum sind unterschiedliche Wachstums- bzw. Nukleationsmechanismen bekannt. Der bekannteste ist wohl der schon 1964 von Wagner und Ellis beschriebene VLS⁴⁶-Wachstumsmodus [169]. Kleine Goldtropfen auf der Oberfläche des Substrates dienen als Sammelpunkte und bilden mit dem evaporierten Material (vapour) eine eutektische Legierung auf der Oberfläche des Wafers (liquid). Sobald diese Legierung übersättigt ist, kristallisiert das Material an der flüssig-festen Grenzfläche aus (solid). Somit entsteht unter dem Tropfen ein Türmchen und es wächst mit nach oben.

Dieser Wachstumsmodus ist für viele unterschiedliche Materialsysteme und Effusionsmethoden neben MBE etabliert [52], [170]–[175]. Es gilt zu erwähnen, dass Gold nur ein mögliches Nukleationsmaterial darstellt. Neben anderen Materialien ist auch das selbstoder homokatalysierte Wachstum bekannt, bei diesem wird ein Material aus dem eigentlichen Zielkristall als Nukleationstropfen angeboten [176]–[183]. Für Bi₂Se₃ würde dies einen Nukleationstropfen aus Bismut oder Selen bedeuten. Abbildung 6.3 stellt schematisch die Funktionsweise des VLS Wachstums mit Gold-Nuklation dar. Abbildung 6.3 a) zeigt die Ausbildung des Eutektikums aus den vorliegenden Goldtröpfchen und dem angebotenen Material. Abbildung 6.3 b) verdeutlicht, dass die Nanodrähte unterhalb der

⁴³ gepulste Laserdeposition, von engl. pulsed laser deposition

⁴⁴ Metallorganische chemische Gasphasenabscheidung, von engl. metalorganic chemical vapour deposition

⁴⁵ Engl.: horizontal tube furnace

⁴⁶ Von engl. vapour-liquid-solid, gasförmig-flüssig-fest



Goldtröpfchen wachsen. Die Größe des Eutektikum-Tröpfchens steht in direktem Zusammenhang mit dem Durchmesser der entstehenden Nanodrähte.

Abbildung 6.3 Schematische Darstellung VLS Wachstumsmodus **a)** zeigt einen Silizium(Si-)wafer mit Goldtröpfchen. In den Tröpfchen sammelt sich ein Eutektikum aus Gold und mindestens einem der evaporierten Materialien. In **b)** sind die ausgebildeten Nanodrähte unter den Nukleationströpfchen gezeigt. Die Drahtdicke korreliert mit dem Durchmesser des Tröpfchens.

Neben VLS Wachstum sind noch andere Wachstumsmodi bekannt, die die Ausbildung von 1D-Strukturen begünstigen [184]. Für ZnO und Carbon Nanodrähte wurde z. B. gezeigt, dass sich Katalysatorteilchen sowohl an der Spitze, aber auch an der Wurzel des Nanodrahtes befinden können (vgl. [185]–[188]). Für ZnO haben Kim et al. dieses Verhalten genauer untersucht [189]. Abbildung 6.4 zeigt schematisch die Funktionsweise eines wurzelbasierten ⁴⁷-Wachstums. Die Goldtröpfchen dienen hier als Sammelpunkte für auf der Oberfläche migrierendes Material. Wie gezeigt bildet sich zuerst Bi₂Se₃ an den Goldtröpfchen aus. Darauf aufbauend bilden sich dann die Nanodrähte, das Goldtröpfchen verbleibt am Wafer, an der Wurzel des Nanodrahtes. Im Gegensatz zum VLS Wachstumsmodus findet das Wachstum hierbei am Wafer statt und der Draht wir dadurch quasi nach oben geschoben.



Abbildung 6.4 Schematische Darstellung wurzelbasiertes Wachstum In **a**) ist veranschaulicht, wie sich evaporiertes Material an den Gold-Nukleationskeimen sammelt. **b**) zeigt, dass der Keim am Wafer zurückbleibt und der Draht hiervon nach oben wächst.

⁴⁷ Engl. root nukleated

In der Literatur wird für Bi₂Se₃ Nanodrähte sowohl VLS-Wachstum [52] berichtet als auch ein wurzelbasierter Wachstumsmodus vermutet [49].

Anlagenaufbau "Varian MBE-360"

Zur Herstellung der Bi₂Se₃ Nanostrukturen wurde eine modifizierte Varian "MBE-360" verwendet. Sie setzt sich aus der eigentlichen Wachstumskammer (MC, main chamber), einer Zwischenkammer mit Ausheizstation (BC, buffer chamber) und einer Ladekammer (LL, load lock) zusammen. Abbildung 6.5 zeigt eine schematische Zeichnung. Die Kammern sind voneinander jeweils durch ein Handventil (V1 & V2) getrennt.



Abbildung 6.5 Schematische Darstellung der modifizierten Varian MBE-360. Ansicht in Vogelperspektive, v. l. n. r: Hauptkammer (MC), Zwischenkammer (BC) und Ladekammer (LL).

Im laufenden Betrieb wurde nur die Ladekammer geöffnet und maximal drei Probenhalter ein- oder ausgebaut. Zum Belüften wurde die LL mit Reinststickstoff geflutet, das Abpumpen erfolgte über eine Turbomolekularpumpe. Die Zwischenkammer diente zum Ausheizen der Probenhalter inkl. Probe, um Verunreinigungen vor dem Wachstumsprozess zu entfernen sowie das Vakuum der MC zu schützen. Die Zwischenkammer wurde über eine Sekundärionengetterpumpe (SIP) evakuiert.

Das eigentliche Kristallwachstum fand in der Hauptkammer statt. In der Rückseite der Hauptkammer waren je eine Knutsen-Effusionszelle mit elementarem Bismut (Alfa Aesar, 99.9997%) und eine mit elementarem Selen (Alfa Aesar, 99.999+%) verbaut. Die Materialmenge und somit die Wachstumsgeschwindigkeit bzw. das Bi/Se Verhältnis wurden direkt über die Temperatur der Effussionszellen geregelt. Eine schnelle Kontrolle über den Materialfluss war über individuell steuerbare Verschlussblenden ("Shutter") gewährleistet. Mittig, mit direktem Blick auf die Probe in Wachstumsposition, war ein Pyrometerfenster eingelassen. So konnte die Temperatur der Probe – zusätzlich zur Messung über ein Thermopaar – mit einem externen Pyrometer kontrolliert werden. Die Hauptkammer wurde über eine SIP evakuiert. Der Manipulator der Hauptkammer war in horizontaler Richtung rotierbar. Damit konnte die Probe von der Transferposition in die Wachstumsposition sowie die der Probe gegenüberliegende Druckmessröhre (BFM) in Richtung der Zellen gedreht werden, um Materialflüsse zu bestimmen. Alle hier vorgestellten Proben wurden ohne zusätzliche Substratrotation hergestellt. Im Betrieb wurde überschüssiges Material auf einem LN₂ gespülten Kühlschild ausgefroren.

6.2 MBE Wachstum Bi₂Se₃ Nanoflocken und -drähte

Wie in Abschnitt 6.1 gezeigt, wurde Bi₂Se₃ mit unterschiedlichen Herstellungsmethoden produziert. In dieser Arbeit wurde zum ersten Mal demonstriert, dass Bi₂Se₃ Nanostrukturen mit Molekularstrahlepitaxie gefertigt werden können [39].

Vor Beginn dieser Untersuchungen und nachdem die Anwendung als TIs in das allgemeine Interesse gerückt ist, wurde gezeigt, dass Bi₂Se₃ Nanodrähte und -flocken mittels MOCVD⁴⁸ [49] sowie in horizontalen Röhrenöfen⁴⁹ [50], [52] hergestellt werden können. Für Bi₂Se₃ Nanodrähte, die in einer "sealed quarz tube" hergestellt wurden, konnten bei tiefen Temperaturen (T < 2,5 K) Quantentransport-Signaturen für Oberflächenzustände beobachtet werden [190]. Für weitere Fortschritte waren sowohl eine bessere Kontrolle über die Wachstumsparameter – u. a. das Bi/Se Verhältnis – als auch ultrareine Produktionsbedingungen wünschenswert.

Das Wachstum der Bi₂Se₃ Strukturen fand auf Si(100) Wafern statt. Diese wurden – vor Einbau in die MBE – 10 s mit Flusssäure (HF) geätzt und anschließend mit 2 nm Gold bedampft. Direkt vor dem Einbau wurde die Oberfläche des Wafers mit einer Metallpinzette zerkratzt. Vor dem Wachstum wurde die Probe für 10 min auf 600°C erhitzt, um die Goldschicht zu Tröpfchen zerlaufen zu lassen. Zu Beginn des Wachstums wurde die Probe auf 450 °C ± 10 °C abgekühlt. Die Temperatur liegt damit ausreichend über der für die Ausbildung einer Legierung notwendigen 240°C [191]. Als Wachstumstemperatur wird immer die mittels Pyrometer bestimmte Temperatur des Wafers angegeben. Die Wachstumsdauer betrug jeweils 15 Minuten. Die besten Ergebnisse wurden mit einem flussäquivalenten Druckverhältnis (BEP⁵⁰) $r(p_{Se}/p_{Bi}) = 23$ erzielt. Die Proben wurden in der Hauptkammer unter 200°C abgekühlt und anschließend in die Ladekammer transferiert.

Charakterisierung von Bi2Se3 Nanoflocken und -drähten

Die wie oben beschrieben hergestellten Bi₂Se₃ Nanostrukturen wurden mit unterschiedlichen Methoden untersucht und charakterisiert. Die Untersuchung der geometrischen

⁴⁸ metallorganisch chemischer Dampfphasenabscheidung

⁴⁹ "horizontal tube furnace"

⁵⁰ Von engl. beam equivalent pressure

Morphologie erfolge mit Hilfe von Rasterelektronenmikroskopie (REM, s. Kapitel 2.5). Die kristallographische Untersuchung erfolgte mit Hilfe von hochauflösender Röntgendiffraktometrie (XRD, s. Kapitel 2.5) sowie Transmissionselektronenmikroskopie (TEM, s. Kapitel 2.5).

Die Abbildung 6.6 und Abbildung 6.7 zeigen REM Aufnahmen von Bi₂Se₃ bewachsenen Wafern. Wafer, die mit Gold vorbehandelt wurden, weisen in direkter Nähe zu den Kratzern Nanodraht Wachstum auf. Auf Wafern ohne Gold-Vorbehandlung wuchsen keine Nanodrähte, sondern Nanoflocken.



Abbildung 6.6 Übersichtsaufnahmen: a) Nanodraht- und b) Nanoflocken-Probe. **a)** Nanodrähte: Der linke Teil wurde angekratzt. Der grüne Bereich markiert den Kratzer. Im gekratzten Bereich und in direkter Nähe dazu sind Nanodrähte sichtbar, während auf der rechten Seite kein Draht zu finden ist. **b)** Nanoflocken-Probe: Proben ohne Gold zeigen keine Nanodrähte, sondern Bi₂Se₃-Flocken, mit einer Abmessung bis zu mehr als 1µm.

Abbildung 6.6 a) zeigt die Oberfläche eines mit Gold vorbehandelten Wafers. Links oben – innerhalb der grünen Markierung – befindet sich ein Kratzer. Auf Gold vorbehandelten Wafern finden sich in direkter Nähe zu Kratzern Nanodrähte, während sich in einiger Entfernung zu den Kratzern keine Drähte mehr finden lassen. Auf Proben ohne Gold hingegen finden sich nur Nanoflocken und keine Drähte. Es konnten Nanoflocken mit einem Durchmesser deutlich größer 1µm gezeigt werden. Nanodrahtwachstum konnte nur in der Kombination von Gold-Vorbehandlung und dem Kratz-Schritt in der Wafer-Präparation realisiert werden. In Abbildung 6.6 b) ist ein Wafer ohne Gold Vorbehandlung abgebildet. Hier finden sich Nanoflocken mit einem Durchmesser von bis zu etwas über einem µm.

Abbildung 6.7 zeigt vergrößerte Darstellungen von Nanodrähten. Abbildung 6.7 a) gibt einen Überblick über einen mit Flocken und Drähten bewachsenen Bereich in Nähe zu einem Kratzer. Bild b) und c) zeigen die Vergrößerung eines einzelnen Drahtes, der sich von der mit Flocken bedeckten Oberfläche abhebt. Die Nanodrähte haben einen Durchmesser von ca. 20 nm-100 nm und erreiche eine Länge von maximal 2µm. Auffällig ist, dass an der Spitze der Drähte keine – wie bei VLS Wachstum zu erwarten wäre – Gold-Eutektikum Tröpfchen zu erkennen sind. Zur Verdeutlichung wurden hiervon hochauflösendes STEM Bilder angefertigt, vgl. Abbildung 6.10.



Abbildung 6.7 Vergrößerungen Nanodrähte

REM Bilder: **a)** Bi₂Se₃ Nanodrähte und Nanoflocken auf der Wafer-Oberfläche in direkter Nähe zu einem Kratzer auf mit Gold vorbehandelter Probe. **b)** Einzelner Nanodraht, der aus der mit Flocken bedeckten Oberfläche ragt. **c)** Vergrößerung der Spitzenregion des Drahtes aus **b)** An der Spitze des Drahtes ist kein Goldtropfen zu erkennen, wie er für VLS-Wachstum zu erwarten wäre.

Die bewachsenen Wafer wurden direkt mit Röntgenbeugung untersucht, um einen Rückschluss auf die Kristallographie der erhaltenen Strukturen ziehen zu können. In Abbildung 6.8 ist eine HRXRD Messung gezeigt. Bedingt durch die geringe Menge an Material auf dem Wafer sowie die nicht uniforme Orientierung der einzelnen Nanostrukturen, ist das XRD Signal schwach und besitzt ein unruhiges Untergrundsignal. Die 003 (ω 2- Θ =4,6) und 006 (ω 2- Θ =9,2) Reflexe für Bi₂Se₃ sind aber trotzdem deutlich zu erkennen.



Abbildung 6.8 XRD Messung an des unbehandelten Bi₂Se₃ Wafers. Die Maxima bei ω 2- Θ =4,6 und ω 2- Θ =9,2 entsprechen den 003 und respektive 006 Reflexen von Bi₂Se₃. Das Hintergrundsignal stammt von den nicht uniform orientierten Flocken auf der Oberfläche des Wafers.

Für weitergehende kristallographische und morphologische Betrachtungen wurden Bilder mit einem FEI Titan 800-30 Transmissionselektronenmikroskop angefertigt. Hierfür wurden die erhaltenen Nanostrukturen auf einen Probenhalter mit Carbon-Gitter transferiert. Alle hier gezeigten TEM Daten sind für Nanodrähte erhoben worden.



Abbildung 6.9 SADP Beugungsmuster eines Bi₂Se₃ Nanodrahtes mit dem zu erwartenden hexagonal Muster eines Stoffes der rhomboedrischen Raumgruppe $D_{3d}^5(R\overline{3}m)$.

Das dabei erhaltene Beugungsmuster (SADP ⁵¹) ist in Abbildung 6.9 gezeigt, in Abbildung 6.10 findet sich ein hochauflösendes STEM Bild eine Nanodrahtes (a) sowie einzelne Vergrößerungen der Kante (b) und der Spitze (c) des Drahtes. Das SADP zeigt das Beugungsmuster eines Kristalls der Raumgruppe $D_{3d}^5(R\overline{3}m)$. So lässt sich, in Übereinstimmung mit dem Röntgenbeugungsergebnis, feststellen, dass der untersuchte Nanodraht aus Bi₂Se₃ in passender stöchiometrischer Zusammensetzung und erwünschter Kristallstruktur vorliegt. Die TEM Bilder zeigen die kristalline Struktur des Nanodrahtes. In Abbildung 6.10 wird – in Übereinstimmung mit den REM Auf-

nahmen – noch einmal verdeutlicht, dass sich kein Goldtröpfchen auf der Spitze befand.

Vergleicht man diesen Befund mit der Literatur, stellt man fest, dass Alegria et al. auch berichten, dass die Herstellung von Bi₂Se₃-Nanodrähten mittels MOCVD auf Gold angewiesen ist, aber keine Tröpfchen an der Spitze ihrer Drähte zu finden sind [49], [192]. Hingegen beobachteten Kong et al. VLS-Wachstum von Bi₂Se₃-Nanodrähten durch Verdampfen von Bi₂Se₃-Pulver in einem Röhrenofen [52]. Einerseits ist Gold ein essentieller Bestandteil des Nukleationsmechanimus, andererseits liegt eindeutig kein VLS-Wachstum vor. Eine weitere Möglichkeit ist das wurzelbasierte Wachstum⁵² (vgl Abschnitt 6.1).

Grundlage für das VLS-Wachstum ist die Ausbildung eines eutektischen Tröpfchens, welches den Übergang vom atomaren (gasförmigen) Zustand über die Ansammlung im (flüssigen) Tropfen sowie einer Kristallisation (fest) an der Unterseite des Tröpfchens katalysiert und mit dem Nanodraht nach oben wächst. Die Mischung von Gold und Bismut ist in der Literatur nicht abschließend untersucht und v. a. die Existenz einer einphasigen Legierung ist nicht zweifelsfrei gezeigt. Die peritektische Ausbildung von Au₂Bi ist beispielsweise für 373°C demonstriert worden [191].

Weiterhin kristallisierten Drähte nur in absoluter Nähe zu Kratzern aus, während in deren Abwesenheit kein nennenswertes Nanodrahtwachstum festgestellt werden konnte. Bezieht man dieses Wissen mit ein, erscheint ein wurzelbasiertes Wachstum wahrschein-

⁵¹ von engl. selective area diffraction pattern

⁵² engl. root catalyzed growth

lich. Einerseits öffnen Kratzer Defekte auf der Wafer-Oberfläche, die als Nukleationszentren wirken können. Andererseits kann Material, das von der Pinzette abgekratzt wurde oder dabei aufgebrachtes extrinsisches Material die Keimbildung begünstigen. An diesen Keimen sammeln sich Bismut sowie Selen und begünstigen die Nukleation eines Nanodrahtes, während der Keim an der Wurzel verbleibt. Für die Keimbildung stehen dreierlei Materialien zur Verfügung - Gold, Bismut sowie Silizium aus dem Wafer. Für Gold und Silizium liegt der eutektische Punkt zur Ausbildung einer Legierung bei 370°C [193]. Für ein genaueres Verständnis des Nukleationsprozesses müssen die Prozesse an der Waferoberfläche weiter untersucht werden.



Abbildung 6.10 HRSTEM Bild eines Nanodrahtes Dieses hochauflösende TEM Bild zeigt die kristalline Struktur eines Nanodrahtes **a**), eine Vergrößerung der Kante **b**) sowie der Spitze **c**). In allen drei Bereichen ist die saubere kristalline Struktur zu erkennen, an der Spitze fällt auf, dass ein für VLS-Wachstum zu erwar-

6.3 Fazit Bi₂Se₃ Nanoflocken und -drähte

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass Molekularstrahlepitaxie ein vielversprechender Ansatz für die Herstellung hochwertiger Bi₂Se₃ Nanostrukturen auf Si (100)-Substraten ist. Die gezeigten Nanostrukturen haben eine monokristalline Struktur und eignen sich damit für weitere Charakterisierungen und Transportmessungen. Die Anwesenheit von Gold auf der Waferoberfläche begünstigt die Ausbildung von Nanodrähten, ohne Gold bilden sich Nanoflocken.

Ein tiefergehendes Verständnis des Nanodraht-Nukleationsprozesses ist erforderlich, um die Drahtdichte und die Ausbildung von Nanoflocken zu kontrollieren sowie die Oberflächenbedeckung zu unterdrücken. Da einzelne stehende Nanodrähte auf einem sauberen Substrat die Weiterverarbeitung vereinfachen, verspricht das gezielte Wachstum auf vorstrukturierten Oberflächen ideale Voraussetzungen. In zukünftigen Experimenten können dann weitere Materialien in die Nanodrähte eingebaut werden. So wird z. B. Cu_xBi₂Se₃ als topologischer Supraleiter gehandelt [194] und mit magnetischer Dotierung (z. B. Cr) ein anormaler QSHE erwartet [67], [195].

Literaturverzeichnis

- [1] W. Heisenberg, "Der unanschauliche Quantensprung," *Phys. J.*, vol. 2, no. 1, pp. 4–6, 1946.
- [2] A. Aspect, "John Bell und die zweite Quantenrevolution," in *Quantenmechanik Sechs mögliche Welten und weitere Artikel*, 2. Auflage., J. S. Bell, Ed. Berlin, Boston: de Gruyter, 2015.
- [3] "Microsoft Quantum." [Online]. Available: https://www.microsoft.com/enus/research/lab/quantum/#!projects. [Accessed: 23-Jul-2018].
- [4] "European Commission will launch €1 billion quantum technologies flagship." [Online]. Available: https://ec.europa.eu/digital-single-market/en/news/european-commissionwill-launch-eu1-billion-quantum-technologies-flagship. [Accessed: 18-Jul-2018].
- [5] "TOPIC: FET Flagship on Quantum Technologies." [Online]. Available: http://ec.europa.eu/research/participants/portal/desktop/en/opportunities/h2020/to pics/fetflag-03-2018.html. [Accessed: 18-Jul-2018].
- [6] "Quantum Manifesto," 2016. [Online]. Available: http://qurope.eu/system/files/u7/93056_Quantum Manifesto_WEB.pdf. [Accessed: 05-Aug-2018].
- [7] M. Hasan and C. Kane, "Colloquium: Topological insulators," *Rev. Mod. Phys.*, vol. 82, no. 4, pp. 3045–3067, Nov. 2010.
- [8] B. A. Bernevig, *Topological Insulators and Topological Superconductors*. University Press Group Ltd, 2013.
- [9] M. Franz and L. Molenkamp, *Topological Insulators (Contemporary Concepts of Condensed Matter Science)*. Elsevier Ltd, Oxford, 2013.
- [10] Kosterlitz J. M.; Thouless D. J., "Ordering, metastability and phase transitions in twodimensional systems," *J. Phys.*, vol. 6, 1973.
- [11] Nobelprize.org., "The Nobel Prize in Physics 2016." [Online]. Available: https://www.nobelprize.org/nobel_prizes/physics/laureates/2016/. [Accessed: 19-Jul-2018].
- [12] D. J. Thouless, M. Kohmoto, M. P. Nightingale, and M. den Nijs, "Quantized Hall Conductance in a Two-Dimensional Periodic Potential," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 49, no. 6, pp. 405–408, Aug. 1982.
- [13] C. L. Kane and E. J. Mele, "Z2 Topological Order and the Quantum Spin Hall Effect," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 95, no. 14, p. 146802, Sep. 2005.
- [14] B. A. Bernevig and S.-C. Zhang, "Quantum Spin Hall Effect," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 96, no. 10, p. 106802, Mar. 2006.
- [15] B. A. Bernevig, T. L. Hughes, and S.-C. Zhang, "Quantum Spin Hall Effect and Topological Phase Transition in HgTe Quantum Wells," *Science*, vol. 314, no. 5806, pp. 1757–1761, Dec. 2006.
- [16] M. Konig *et al.*, "Quantum Spin Hall Insulator State in HgTe Quantum Wells," *Science*, vol. 318, no. 5851, pp. 766–770, Nov. 2007.
- [17] C. Liu, T. L. Hughes, X.-L. Qi, K. Wang, and S.-C. Zhang, "Quantum Spin Hall Effect in Inverted Type-II Semiconductors," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 100, no. 23, p. 236601, Jun. 2008.
- [18] F. Nichele *et al.*, "Insulating State and Giant Nonlocal Response in an InAs/GaSb Quantum Well in the Quantum Hall Regime," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 112, no. 3, p. 036802, Jan. 2014.
- [19] I. Knez, R. R. Du, and G. Sullivan, "Finite conductivity in mesoscopic Hall bars of inverted InAs/GaSb quantum wells," *Phys. Rev. B*, vol. 81, no. 20, p. 201301, May 2010.
- [20] E. M. Spanton, K. C. Nowack, L. Du, G. Sullivan, R.-R. Du, and K. A. Moler, "Images of Edge Current in InAs / GaSb Quantum Wells," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 113, no. 2, p. 026804, Jul. 2014.
- [21] B.-M. Nguyen *et al.*, "Decoupling Edge Versus Bulk Conductance in the Trivial Regime of an InAs/GaSb Double Quantum Well Using Corbino Ring Geometry Binh-Minh," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 117, no. 7, p. 077701, 2016.
- [22] L. Du *et al.*, "Tuning Edge States in Strained-Layer InAs/GaInSb Quantum Spin Hall Insulators," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 119, no. 5, p. 056803, Aug. 2017.

- [23] A. N. Pal *et al.*, "Influence of etching processes on electronic transport in mesoscopic InAs/GaSb quantum well devices," *AIP Adv.*, vol. 5, no. 7, p. 077106, Jul. 2015.
- [24] L. Hu, C. Liu, D. Xu, F. Zhang, and Y. Zhou, "Electric control of inverted gap and hybridization gap in type-II InAs/GaSb quantum wells," *Phys. Rev. B*, vol. 045317, pp. 1–7, 2016.
- [25] S. Mueller *et al.*, "Edge transport in InAs and InAs/GaSb quantum wells," *Phys. Rev. B*, vol. 96, no. 7, p. 075406, Aug. 2017.
- [26] B. Tong, Z. Han, T. Li, C. Zhang, G. Sullivan, and R. R. Du, "Tuning the charge states in InAs/GaSb or InAs/GaInSb composite quantum wells by persistent photoconductivity," *AIP Adv.*, vol. 7, no. 7, p. 075211, 2017.
- [27] I. Knez, R.-R. Du, and G. Sullivan, "Evidence for Helical Edge Modes in Inverted InAs/GaSb Quantum Wells," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 107, no. 13, p. 136603, Sep. 2011.
- [28] I. Knez *et al.*, "Observation of Edge Transport in the Disordered Regime of Topologically Insulating InAs/GaSb Quantum Wells," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 112, no. 2, p. 026602, Jan. 2014.
- [29] I. Knez, "Transport Properties of Topological Phases in Broken Gap InAs/GaSb Based Quantum Wells," Rice University, 2012.
- [30] I. Knez, R.-R. Du, and G. Sullivan, "Andreev Reflection of Helical Edge Modes in InAs/GaSb Quantum Spin Hall Insulator," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 109, no. 18, p. 186603, Oct. 2012.
- [31] L. Du, I. Knez, G. Sullivan, and R.-R. Du, "Robust Helical Edge Transport in Gated InAs / GaSb Bilayers," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 114, no. 9, p. 096802, Mar. 2015.
- [32] S. Mueller *et al.*, "Nonlocal transport via edge states in InAs/GaSb coupled quantum wells," *Phys. Rev. B*, vol. 92, no. 8, p. 081303, Aug. 2015.
- [33] K. Suzuki, Y. Harada, K. Onomitsu, and K. Muraki, "Edge channel transport in the InAs/GaSb topological insulating phase," *Phys. Rev. B*, vol. 87, no. 23, p. 235311, Jun. 2013.
- [34] V. S. Pribiag *et al.*, "Edge-mode superconductivity in a two-dimensional topological insulator," *Nat. Nanotechnol.*, vol. 10, no. 7, pp. 593–597, Jul. 2015.
- [35] F. Nichele *et al.*, "Giant spin-orbit splitting in inverted InAs/GaSb double quantum wells," vol. 1, no. January, pp. 1–10, 2016.
- [36] B. Nguyen, W. Yi, R. Noah, J. Thorp, and M. Sokolich, "High mobility back-gated InAs/GaSb double quantum well grown on GaSb substrate," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 106, no. 3, p. 032107, Jan. 2015.
- [37] G. Knebl *et al.*, "Optical tuning of the charge carrier type in the topological regime of InAs/GaSb quantum wells," *Phys. Rev. B*, vol. 98, no. 4, p. 041301, Jul. 2018.
- [38] L. Fu, C. Kane, and E. Mele, "Topological Insulators in Three Dimensions," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 98, no. 10, pp. 1–4, Mar. 2007.
- [39] G. M. Knebl, J. R. Gessler, M. Kamp, and S. Höfling, "Molecular beam epitaxial growth of Bi2Se3 nanowires and nanoflakes," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 133109, 2014.
- [40] N. Bansal, Y. S. Kim, M. Brahlek, E. Edrey, and S. Oh, "Thickness-Independent Transport Channels in Topological Insulator Bi2Se3 Thin Films," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 109, no. 11, p. 116804, Sep. 2012.
- [41] X. Liu *et al.*, "Structural properties of Bi2Te3 and Bi2Se3 topological insulators grown by molecular beam epitaxy on GaAs(001) substrates," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 99, no. 17, p. 171903, 2011.
- [42] J. H. Jeon, W. J. Jang, J. K. Yoon, and S. J. Kahng, "Metal-supported high crystalline Bi2Se3 quintuple layers," *Nanotechnology*, vol. 22, no. 46, pp. 20–24, 2011.
- [43] Y. S. Kim *et al.*, "Thickness-dependent bulk properties and weak antilocalization effect in topological insulator Bi2Se3," *Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys.*, vol. 84, no. 7, pp. 1–5, 2011.
- [44] S. Kim, S. Lee, J. Woo, and G. Lee, "Growth of Bi2Se3topological insulator thin film on Ge(111) substrate," *Appl. Surf. Sci.*, vol. 432, pp. 152–155, 2018.
- [45] P. H. Le, K. H. Wu, C. W. Luo, and J. Leu, "Growth and Characterization of Topological Insulator Bi2Se3 Thin Films on SrTiO3 using Pulsed Laser Deposition," *Thin Solid Films*, Feb. 2013.
- [46] Y. Takagaki and B. Jenichen, "Epitaxial growth of Bi 2 Se 3 layers on InP substrates by hot wall epitaxy," *Semicond. Sci. Technol.*, vol. 27, no. 3, p. 035015, Mar. 2012.
- [47] S. Schreyeck et al., "Molecular beam epitaxy of high structural quality Bi2Se3 on lattice

matched InP(111) substrates," Appl. Phys. Lett., vol. 102, no. 4, p. 041914, 2013.

- [48] X. Guo *et al.*, "Single domain Bi2Se3 films grown on InP(111)A by molecular-beam epitaxy," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 102, no. 15, p. 151604, 2013.
- [49] L. D. Alegria *et al.*, "Structural and electrical characterization of Bi₂Se₃ nanostructures grown by metal-organic chemical vapor deposition.," *Nano Lett.*, vol. 12, no. 9, pp. 4711–4, Sep. 2012.
- [50] D. Kong *et al.*, "Few-Layer Nanoplates of Bi2Se3 and Bi2Te3 with Highly Tunable Chemical Potential," *Nano Lett.*, vol. 10, no. 6, pp. 2245–2250, Jun. 2010.
- [51] H. Zhu *et al.*, "Topological Insulator Bi2Se3 Nanowire High Performance Field-Effect Transistors.," *Sci. Rep.*, vol. 3, p. 1757, Apr. 2013.
- [52] D. Kong *et al.*, "Topological insulator nanowires and nanoribbons.," *Nano Lett.*, vol. 10, no. 1, pp. 329–33, Jan. 2010.
- [53] D. O. Scanlon *et al.*, "Controlling bulk conductivity in topological insulators: Key role of antisite defects," *Adv. Mater.*, vol. 24, no. 16, pp. 2154–2158, 2012.
- [54] X. Chen, X.-C. Ma, K. He, J.-F. Jia, and Q.-K. Xue, "Molecular Beam Epitaxial Growth of Topological Insulators," *Adv. Mater.*, pp. 1162–1165, 2011.
- [55] W.-K. Lou, F. Cheng, and J. Li, "The persistent charge and spin currents in topological insulator Bi2Se3 nanowires," *J. Appl. Phys.*, vol. 110, no. 9, p. 093714, 2011.
- [56] H. D. Li *et al.*, "The van der Waals epitaxy of Bi2Se3on the vicinal Si(111) surface: An approach for preparing high-quality thin films of a topological insulator," *New J. Phys.*, vol. 12, no. 111, 2010.
- [57] G. Zhang *et al.*, "Quintuple-layer epitaxy of thin films of topological insulator Bi2Se3," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 95, no. 5, pp. 98–101, 2009.
- [58] A. Richardella *et al.*, "Coherent heteroepitaxy of Bi2Se3 on GaAs (111)B," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 97, no. 26, 2010.
- [59] J. Hellerstedt, M. T. Edmonds, J. H. Chen, W. G. Cullen, C. X. Zheng, and M. S. Fuhrer, "Thickness and growth-condition dependence of in-situ mobility and carrier density of epitaxial thin-film Bi2Se3," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 105, no. 17, 2014.
- [60] S. Schreyeck *et al.*, "Molecular beam epitaxy of high structural quality Bi2Se 3 on lattice matched InP(111) substrates," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 102, no. 111, pp. 1–5, 2013.
- [61] P. Tabor, C. Keenan, S. Urazhdin, and D. Lederman, "Molecular beam epitaxy and characterization of thin Bi2 Se3 films on Al2 O3(110)," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 99, no. 1, p. 013111, 2011.
- [62] H. Zhang, C.-X. Liu, X.-L. Qi, X. Dai, Z. Fang, and S.-C. Zhang, "Topological insulators in Bi2Se3, Bi2Te3 and Sb2Te3 with a single Dirac cone on the surface," *Nat. Phys.*, vol. 5, no. 6, pp. 438–442, May 2009.
- [63] Y. Xia *et al.*, "Observation of a large-gap topological-insulator class with a single Dirac cone on the surface," *Nat. Phys.*, vol. 5, no. 6, pp. 398–402, May 2009.
- [64] H. Kroemer, "The 6.1 A family (InAs, GaSb, AlSb) and its heterostructures: A selective review," *Phys. E Low-Dimensional Syst. Nanostructures*, vol. 20, pp. 196–203, 2004.
- [65] A. Kitaev, "Periodic table for topological insulators and superconductors," *AIP Conf. Proc.*, vol. 1134, no. 1, pp. 22–30, 2009.
- [66] E. H. Hall, "On a New Action of the Magnet on Electric Currents," *Am. J. Math.*, vol. 2, no. 3, p. 287, Sep. 1879.
- [67] C.-Z. Chang *et al.*, "Experimental Observation of the Quantum Anomalous Hall Effect in a Magnetic Topological Insulator," *Science*, vol. 340, no. 6129, pp. 167–170, Apr. 2013.
- [68] N. Nagaosa, J. Sinova, S. Onoda, A. H. MacDonald, and N. P. Ong, "Anomalous Hall effect," *Rev. Mod. Phys.*, vol. 82, no. 2, pp. 1539–1592, 2010.
- [69] V. I. Dyakonov, M. I. & Perel, "Possibilty of Orienting Electron Spins with Current," *Sov. Phys. JETP Lett.*, vol. 13. p. 467, 1971.
- [70] Y. K. Kato, "Observation of the Spin Hall Effect in Semiconductors," *Science*, vol. 306, no. 5703, pp. 1910–1913, Dec. 2004.
- [71] K. V. Klitzing, G. Dorda, and M. Pepper, "New method for high-accuracy determination of the fine-structure constant based on quantized hall resistance," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 45, no. 6, pp. 494–497, 1980.

- [72] "Rk," *CODATA Werte nach Stand 31.12.2014*. [Online]. Available: https://physics.nist.gov/cgi-bin/cuu/Value?rk. [Accessed: 15-Mar-2018].
- [73] C. L. Kane and E. J. Mele, "Quantum Spin Hall Effect in Graphene," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 95, no. 22, p. 226801, Nov. 2005.
- [74] R. Yu, W. Zhang, H.-J. Zhang, S.-C. Zhang, X. Dai, and Z. Fang, "Quantized Anomalous Hall Effect in Magnetic Topological Insulators," *Science*, vol. 329, no. 5987, pp. 61–64, Jul. 2010.
- [75] F. Reis *et al.*, "Bismuthene on a SiC substrate: A candidate for a high-temperature quantum spin Hall material," *Science*, vol. 357, no. 6348, pp. 287–290, Jul. 2017.
- [76] L. L. Chang and L. Esaki, "Electronic properties of InAs/GaSb superlattices," *Surf. Sci.*, vol. 98, no. 1–3, pp. 70–89, Aug. 1980.
- [77] M. Altarelli, "Electronic structure and semiconductor-semimetal transition in InAs-GaSb superlattices," *Phys. Rev. B*, vol. 28, no. 2, pp. 842–845, Jul. 1983.
- [78] M. Lakrimi *et al.*, "Minigaps and Novel Giant Negative Magnetoresistance in InAs/GaSb Semimetallic Superlattices," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 79, no. 16, pp. 3034–3037, Oct. 1997.
- [79] M. J. Yang, C. H. Yang, B. R. Bennett, and B. V Shanabrook, "Evidence of a Hybridization Gap in 'Semimetallic' InAs/GaSb Systems," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 78, no. 24, pp. 4613–4616, Jun. 1997.
- [80] R. Winkler, *Spin--Orbit Coupling Effects in Two-Dimensional Electron and Hole Systems*, vol. 191. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 2003.
- [81] F. Qu *et al.*, "Electric and Magnetic Tuning Between the Trivial and Topological Phases in InAs/GaSb Double Quantum Wells," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 115, no. 3, p. 036803, Jul. 2015.
- [82] F. Nichele *et al.*, "Edge transport in the trivial phase of InAs/GaSb," *New J. Phys.*, vol. 18, no. 8, p. 083005, Jul. 2016.
- [83] E. A. Plis, M. N. Kutty, and S. Krishna, "Passivation techniques for InAs/GaSb strained layer superlattice detectors," *Laser Photon. Rev.*, vol. 7, no. 1, pp. 45–59, Jan. 2013.
- [84] C. A. Mead and W. G. Spitzer, "Fermi Level Position at Metal-Semiconductor Interfaces," *Phys. Rev.*, vol. 134, no. 3A, pp. A713–A716, May 1964.
- [85] M. Noguchi, K. Hirakawa, and T. Ikoma, "Intrinsic electron accumulation layers on reconstructed clean InAs(100) surfaces," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 66, no. 17, pp. 2243–2246, Apr. 1991.
- [86] C. Gatzke, S. J. Webb, K. Fobelets, and R. A. Stradling, "In situ Raman spectroscopy of the selective etching of antimonides in GaSb / AlSb / InAs heterostructures," *Semicond. Sci. Technol.*, vol. 13, pp. 399–403, 1998.
- [87] J. Na, S. Lee, and S. Lim, "Oxidation and etching behaviors of the InAs surface in various acidic and basic chemical solutions," *Surf. Sci.*, vol. 658, no. October 2016, pp. 22–30, Apr. 2017.
- [88] D. Seo, J. Lee, J. Na, and S. Lim, "Study on the Gallium Antimonide (GaSb) Semiconductor Surface in Wet Chemical Solutions," in *ECS Meeting Abstracts*, 2016, vol. MA2016-01, p. 1196.
- [89] R. Chaghi, C. Cervera, H. Aït-Kaci, P. Grech, J. B. Rodriguez, and P. Christol, "Wet etching and chemical polishing of InAs/GaSb superlattice photodiodes," *Semicond. Sci. Technol.*, vol. 24, no. 6, p. 065010, Jun. 2009.
- [90] C. Kadow *et al.*, "Reduction of the unintentional background electron density in AlSb/InAs/AlSb quantum wells," *J. Cryst. Growth*, vol. 251, no. 1–4, pp. 543–546, Apr. 2003.
- [91] C. Charpentier *et al.*, "Suppression of bulk conductivity in InAs/GaSb broken gap composite quantum wells," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 103, no. 11, p. 112102, Sep. 2013.
- [92] L. Vegard, "Yon Lo Vegard.," *Zeitschrift für Phys.*, vol. 5, no. 1, pp. 17–26, 1921.
- [93] J. A. Van Vechten and T. K. Bergstresser, "Electronic Structures of Semiconductor Alloys," *Phys. Rev. B*, vol. 1, no. 8, pp. 3351–3358, Apr. 1970.
- [94] 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, p. 5815, 2001.
- [95] M. Dallner *et al.*, "InAs-based distributed feedback interband cascade lasers," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 107, no. 18, p. 181105, Nov. 2015.
- [96] R. Weih, L. Nähle, S. Höfling, J. Koeth, and M. Kamp, "Single mode interband cascade lasers based on lateral metal gratings," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 105, no. 7, pp. 7–10, 2014.

- [97] C. Schneider *et al.*, "AlGaInAs quantum dot solar cells: Tailoring quantum dots for intermediate band formation," *Semicond. Sci. Technol.*, vol. 27, no. 3, 2012.
- [98] F. Rothmayr *et al.*, "Mid-infrared GaSb-based resonant tunneling diode photodetectors for gas sensing applications," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 112, no. 16, p. 161107, 2018.
- [99] Y.-M. He *et al.*, "Deterministic implementation of a bright, on-demand single photon source with near-unity indistinguishability via quantum dot imaging," vol. 4, no. 7, 2016.
- [100] B. R. Bennett, R. Magno, J. B. Boos, W. Kruppa, and M. G. Ancona, "Antimonide-based compound semiconductors for electronic devices: A review," *Solid. State. Electron.*, vol. 49, no. 12, pp. 1875–1895, 2005.
- [101] M. A. Herman and H. Sitter, *Molecular Beam Epitaxy*, 2nd ed. Springer, 1996.
- [102] M. Henini, Molecular beam epitaxy : from research to mass production. Elsevier, 2012.
- [103] S. Schreyeck, "Molecular Beam Epitaxy and Characterization of Bi-Based V2 VI3 Topological Insulators," Universität Würzburg, 2016.
- [104] J. W. Matthews and A. E. Blakeslee, "Defects in epitaxial multilayers II. Dislocation pile-ups, threading dislocations, slip lines and cracks," *J. Cryst. Growth*, vol. 29, no. 3, pp. 273–280, Jul. 1975.
- [105] R. People and J. C. Bean, "Calculation of critical layer thickness versus lattice mismatch for Ge x Si 1- x /Si strained-layer heterostructures," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 47, no. 3, pp. 322– 324, Aug. 1985.
- [106] R. P. Campion, C. T. Foxon, and R. C. Bresnahan, "Modulated beam mass spectrometer studies of a Mark V Veeco cracker," *J. Vac. Sci. Technol. B*, vol. 28, no. 3, p. C3F1-C3F4, 2010.
- [107] E. Abbe, "Beiträge zur Theorie des Mikroskops und der mikroskopischen Wahrnehmung," *Arch. für Mikroskopische Anat.*, vol. 9, no. 1, pp. 413–418, Dec. 1873.
- [108] E. Abbe, "Beiträge zur Theorie des Mikroskops und der mikroskopischen Wahrnehmung," *Arch. für Mikroskopische Anat.*, vol. 9, no. 1, pp. 418–440, Dec. 1873.
- [109] E. Abbe, "Beiträge zur Theorie des Mikroskops und der mikroskopischen Wahrnehmung," *Arch. für Mikroskopische Anat.*, vol. 9, no. 1, pp. 440–456, Dec. 1873.
- [110] E. Abbe, "Beiträge zur Theorie des Mikroskops und der mikroskopischen Wahrnehmung," *Arch. für Mikroskopische Anat.*, vol. 9, no. 1, pp. 456–468, Dec. 1873.
- [111] L. Nähle, "Monomodige und weit abstimmbare Halbleiterlaser im GaSb-Materialsystem im Wellenlängenbereich von 3,0 3,4 μm," Universität Würzburg, 2011.
- [112] A. R. Giehl, M. Gumbel, M. Kessler, N. Herhammer, G. Hoffmann, and H. Fouckhardt, "Deep dry etching of GaAs and GaSb using Cl2/Ar plasma discharges," J. Vac. Sci. Technol. B Microelectron. Nanom. Struct., vol. 21, no. 6, p. 2393, 2003.
- [113] J. Gessler *et al.*, "Electro optical tuning of Tamm-plasmon exciton-polaritons," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 105, no. 18, 2014.
- [114] A. Clawson, "Guide to references on III–V semiconductor chemical etching," *Mater. Sci. Eng. R Reports*, vol. 31, no. 1–6, pp. 1–438, Jan. 2001.
- [115] M. von Ardenne, "Das Elektronen-Rastermikroskop," *Zeitschrift für Phys.*, vol. 109, no. 9–10, pp. 553–572, Sep. 1938.
- [116] L. Reimer and G. Pfefferkorn, *Raster-Elektronenmikroskopie*. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 1977.
- [117] W. H. Bragg and W. L. Bragg, "The Reflection of X-rays by Crystals," *Proc. R. Soc. A Math. Phys. Eng. Sci.*, vol. 88, no. 605, pp. 428–438, Jul. 1913.
- [118] L. Spieß, G. Teichert, R. Schwarzer, H. Behnken, and C. Genzel, *Moderne Röntgenbeugung*. Wiesbaden: Vieweg+Teubner, 2009.
- [119] M. Knoll and E. Ruska, "Das Elektronenmikroskop," *Zeitschrift für Phys.*, vol. 78, no. 5–6, pp. 318–339, May 1932.
- [120] L. Reimer and H. Kohl, *Transmission Electron Microscopy*, vol. 36. New York, NY: Springer New York, 2008.
- [121] R. A. Smith, "Semiconductors." Cambridge University Press, 1978.
- [122] A. Pfenning *et al.*, "GaSb/AlAsSb resonant tunneling diodes with GaAsSb emitter prewells," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 111, no. 17, p. 171104, Oct. 2017.
- [123] A. Pfenning *et al.*, "Room temperature operation of GaSb-based resonant tunneling diodes by prewell injection," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 110, no. 3, 2017.
- [124] C. Nguyen, B. Brar, C. R. Bolognesi, J. J. Pekarik, and H. Kroemer, "Growth of InAs-AISb Quantum Wells Having Both High Mobilities and High Concentrations," *J. Electron. Mater.*, vol. 22, no. 2, p. 255, 1993.
- [125] K. Yoh, K. Kiyomi, A. Nishida, and M. Inoue, "Indium Arsenide Quantum Wires Fabricated by Electron Beam Lithography and Wet-Chemical Etching," *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 31, no. Part 1, No. 12B, pp. 4515–4519, Dec. 1992.
- [126] G. Richter, "Nachweis der elektrischen Spin-Injektion in II-VI Halbleiter mittels Messung des elektrischen Widerstandes," JMU Würzburg, 2003.
- [127] E. Papis-Polakowska, "Surface Treatments of GaSb and Related Materials for the Processing of Mid-Infrared Semiconductor Devices," *Electron Technol. - Internet J.*, vol. 38, no. 4, pp. 1– 34, 2006.
- [128] E. A. Plis *et al.*, "Performance improvement of long-wave infrared InAs/GaSb strained-layer superlattice detectors through sulfur-based passivation," *Infrared Phys. Technol.*, vol. 55, no. 2–3, pp. 216–219, 2012.
- [129] C. Mittag *et al.*, "Passivation of edge states in etched InAs sidewalls," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 111, no. 8, p. 082101, Aug. 2017.
- [130] A. Pfenning *et al.*, "GaSb/AlAsSb resonant tunneling diodes with GaAsSb emitter prewells," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 111, no. 17, p. 171104, 2017.
- [131] A. Vogt, "Electrical and microstructure analysis of ohmic contacts to p- and n-type GaSb, grown by molecular beam epitaxy," J. Vac. Sci. Technol. B Microelectron. Nanom. Struct., vol. 14, no. 6, p. 3514, 1996.
- [132] C. K. Peng, J. Chen, J. Chyi, and H. Morkoç, "Extremely low nonalloyed and alloyed contact resistance using an InAs cap layer on InGaAs by molecular-beam epitaxy," *J. Appl. Phys.*, vol. 64, no. 1, pp. 429–431, Jul. 1988.
- [133] G. Tuttle, H. Kroemer, and J. H. English, "Effects of interface layer sequencing on the transport properties of InAs/AlSb quantum wells: Evidence for antisite donors at the InAs/AlSb interface," J. Appl. Phys., vol. 67, no. 6, p. 3032, 1990.
- [134] S. Birner, "Nextnano++, http://www.nextnano.com/."
- [135] "kb," *CODATA Werte nach Stand 31.12.2014*. [Online]. Available: https://physics.nist.gov/cgi-bin/cuu/Value?tkev. [Accessed: 10-Jul-2018].
- [136] D. Jena, A. C. Gossard, and U. K. Mishra, "Dislocation scattering in a two-dimensional electron gas," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 76, no. 13, pp. 1707–1709, 2000.
- [137] A. Gold, "Electronic transport properties of a two-dimensional electron gas in a silicon quantum-well structure at low temperature," *Phys. Rev. B*, vol. 35, no. 2, pp. 723–733, Jan. 1987.
- [138] G. Bastard, "Energy levels and alloy scattering in InP-In (Ga)As heterojunctions," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 43, no. 6, pp. 591–593, Sep. 1983.
- [139] R. K. Jana and D. Jena, "Stark-effect scattering in rough quantum wells," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 99, no. 1, p. 012104, Jul. 2011.
- [140] G. C. Gardner, S. Fallahi, J. D. Watson, and M. J. Manfra, "Modified MBE hardware and techniques and role of gallium purity for attainment of two dimensional electron gas mobility 35×10⁶cm²/V s in AlGaAs/GaAs quantum wells grown by MBE," *J. Cryst. Growth*, vol. 441, pp. 71–77, May 2016.
- [141] W. Xu, L. Li, H. M. Dong, G. Gumbs, and P. A. Folkes, "Band hybridization and spin-splitting in InAs/AlSb/GaSb type II and broken-gap quantum wells," *J. Appl. Phys.*, vol. 108, no. 5, 2010.
- [142] C. Reichl, W. Dietsche, T. Tschirky, T. Hyart, and W. Wegscheider, "Mapping an electron wave function by a local electron scattering probe," *New J. Phys.*, vol. 17, no. 11, 2015.
- [143] I. Lo, W. C. Mitchel, R. Kaspi, S. Elhamri, and R. S. Newrock, "Observation of a negative persistent photoconductivity effect in In0.25Ga0.75Sb/InAs quantum wells," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 65, no. 8, p. 1024, 1994.
- [144] C. Gauer *et al.*, "Photoconductivity in AlSb/InAs quantum wells," *Semimnd. Sci. Technol.*, vol. 8, pp. 137–140, 1993.
- [145] H. Schets, P. Janssen, J. Witters, and S. Borghs, "Negative persistent photoconductivity in an InAs/GaSb quantum well," *Solid State Commun.*, vol. 110, no. 3, pp. 169–171, 1999.

- [146] W. C. Wang, L. C. Tsai, J. C. Fan, Y. F. Chen, and I. Lo, "Positive and negative persistent photoconductivities in semimetallic AlxGa1-xSb/InAs quantum wells," *J. Appl. Phys.*, vol. 86, no. 6, pp. 3152–3158, 1999.
- [147] V. Y. Aleshkin *et al.*, "Spectra of Persistent Photoconductivity in InAs/AlSb Quantum-Well Heterostructures," *Semiconductors*, vol. 39, no. 1, p. 22, 2005.
- [148] V. I. Gavrilenko *et al.*, "Persistent photoconductivity in InAs/AlSb heterostructures with double quantum wells," *Semiconductors*, vol. 44, no. 5, pp. 616–622, 2010.
- [149] G. Tuttle, H. Kroemer, and J. H. English, "Electron concentrations and mobilities in AlSb/InAs/AlSb quantum wells," *J. Appl. Phys.*, vol. 65, no. 12, pp. 5239–5242, 1989.
- [150] G. Tuttle, H. Kroemer, and J. H. English, "Effects of interface layer sequencing on the transport properties of InAs/AlSb quantum wells: Evidence for antisite donors at the InAs/AlSb interface," J. Appl. Phys., vol. 67, no. 6, pp. 3032–3037, 1990.
- [151] P. M. Mooney, "Deep donor levels (DX centers) in III-V semiconductors," J. Appl. Phys., vol. 67, no. 3, pp. R1–R26, Feb. 1990.
- [152] V. I. Gavrilenko *et al.*, "Persistent photoconductivity in InAs/AlSb heterostructures with double quantum wells," *Semiconductors*, vol. 44, no. 5, pp. 616–622, May 2010.
- [153] R. Roy, "Topological phases and the quantum spin Hall effect in three dimensions," *Phys. Rev. B Condens. Matter Mater. Phys.*, vol. 79, no. 19, pp. 1–5, 2009.
- [154] J. E. Moore and L. Balents, "Topological invariants of time-reversal-invariant band structures," *Phys. Rev. B Condens. Matter Mater. Phys.*, vol. 75, no. 12, pp. 3–6, 2007.
- [155] D. Hsieh *et al.*, "A topological Dirac insulator in a quantum spin Hall phase.," *Nature*, vol. 452, no. 7190, pp. 970–4, Apr. 2008.
- [156] Y. L. Chen *et al.*, "Experimental realization of a three-dimensional topological insulator, Bi2Te3.," *Science*, vol. 325, no. 5937, pp. 178–81, Jul. 2009.
- [157] J. Black, E. M. Conwell, J. Seigle, and C. W. Spencer, "Electrical and optical properties of some M2 N3 semiconductors," J. Phys. Chem. Solids, vol. 2, pp. 240–251, 1957.
- [158] F. D. Rosi, B. Abeles, and R. V Jensen, "Materials for thermoelectric refrigeration," *J. Phys. Chem. Solids*, vol. 10, no. 2, pp. 191–200, 1959.
- [159] M. Franz, "Majorana's wires.," Nat. Nanotechnol., vol. 8, no. 3, pp. 149–52, Mar. 2013.
- [160] C. Nayak, A. Stern, M. Freedman, and S. Das Sarma, "Non-Abelian anyons and topological quantum computation," *Rev. Mod. Phys.*, vol. 80, no. 3, pp. 1083–1159, Sep. 2008.
- [161] R. Hützen, A. Zazunov, B. Braunecker, A. L. Yeyati, and R. Egger, "Majorana Single-Charge Transistor," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 109, no. 16, p. 166403, Oct. 2012.
- [162] S. Nakajima, "The crystal structure of Bi2Te3–xSex," *J. Phys. Chem. Solids*, vol. 24, no. 3, pp. 479–485, 1963.
- [163] J. R. Wiese and L. Muldawer, "Lattice constants of Bi2Te3-Bi2Se3 solid solution alloys," vol. 15, pp. 13–16, 1960.
- [164] H. Okamoto, "The Bi-Se (Bismuth-Selenium) System," *J. Phase Equilibria*, vol. 15, no. 2, pp. 195–201, 1994.
- [165] J. Kampmeier *et al.*, "Selective area growth of Bi2Te3and Sb2Te3topological insulator thin films," *J. Cryst. Growth*, vol. 443, pp. 38–42, 2016.
- [166] K. Moors, P. Schüffelgen, D. Rosenbach, T. Schmitt, T. Schäpers, and T. L. Schmidt, "Magnetotransport signatures of 3D topological insulator nanowire structures," vol. 245429, pp. 1–10, 2018.
- [167] M. Lang *et al.*, "Revelation of Topological Surface States in Bi ₂ Se ₃ Thin Films by *In Situ* Al Passivation," *ACS Nano*, vol. 6, no. 1, pp. 295–302, 2012.
- [168] J. J. Cha, K. J. Koski, and Y. Cui, "Topological insulator nanostructures," *Phys. status solidi Rapid Res. Lett.*, vol. 7, no. 1–2, pp. 15–25, Feb. 2013.
- [169] R. S. Wagner and W. C. Ellis, "Vapor-Liquid-Solid Mechanism of Single Crystal Growth," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 4, no. 5, p. 89, 1964.
- [170] Y. Cui, L. J. Lauhon, M. S. Gudiksen, J. Wang, and C. M. Lieber, "Diameter-controlled synthesis of single-crystal silicon nanowires," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 78, no. 15, p. 2214, 2001.
- [171] J. H. Paek, T. Nishiwaki, M. Yamaguchi, and N. Sawaki, "MBE-VLS growth of GaAs nanowires on (111)Si substrate," *Phys. Status Solidi*, vol. 5, no. 6, pp. 1436–1440, Jun. 2008.
- [172] Z. H. Wu, X. Y. Mei, D. Kim, M. Blumin, and H. E. Ruda, "Growth of Au-catalyzed ordered GaAs

nanowire arrays by molecular-beam epitaxy," Appl. Phys. Lett., vol. 81, no. 27, p. 5177, 2002.

- [173] C. Chèze *et al.*, "Direct comparison of catalyst-free and catalyst-induced GaN nanowires," *Nano Res.*, vol. 3, no. 7, pp. 528–536, Jul. 2010.
- [174] Z. H. Wu, M. Sun, X. Y. Mei, and H. E. Ruda, "Growth and photoluminescence characteristics of AlGaAs nanowires," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 85, no. 4, p. 657, Jul. 2004.
- [175] J. S. Lee, S. Brittman, D. Yu, and H. Park, "Vapor-liquid-solid and vapor-solid growth of phase-change Sb2Te3 nanowires and Sb2Te3/GeTe nanowire heterostructures.," J. Am. Chem. Soc., vol. 130, no. 19, pp. 6252–8, May 2008.
- [176] M. Mattila, T. Hakkarainen, H. Lipsanen, H. Jiang, and E. I. Kauppinen, "Catalyst-free growth of In(As)P nanowires on silicon," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 89, no. 6, p. 063119, 2006.
- [177] S. Ambrosini, M. Fanetti, V. Grillo, A. Franciosi, and S. Rubini, "Self-catalyzed GaAs nanowire growth on Si-treated GaAs(100) substrates," *J. Appl. Phys.*, vol. 109, no. 9, p. 094306, May 2011.
- [178] B. Bauer *et al.*, "Position controlled self-catalyzed growth of GaAs nanowires by molecular beam epitaxy.," *Nanotechnology*, vol. 21, no. 43, p. 435601, Oct. 2010.
- [179] C. Colombo, D. Spirkoska, M. Frimmer, G. Abstreiter, and A. Fontcuberta i Morral, "Gaassisted catalyst-free growth mechanism of GaAs nanowires by molecular beam epitaxy," *Phys. Rev. B*, vol. 77, no. 15, p. 155326, Apr. 2008.
- [180] A. Fontcuberta i Morral, C. Colombo, G. Abstreiter, J. Arbiol, and J. R. Morante, "Nucleation mechanism of gallium-assisted molecular beam epitaxy growth of gallium arsenide nanowires," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 92, no. 6, p. 063112, Feb. 2008.
- [181] S. Plissard *et al.*, "Gold-free growth of GaAs nanowires on silicon: arrays and polytypism.," *Nanotechnology*, vol. 21, no. 38, p. 385602, Sep. 2010.
- [182] L. Gao, R. Woo, B. Liang, and M. Pozuelo, "Self-Catalyzed Epitaxial Growth of Vertical Indium Phosphide Nanowires on Silicon," *Nano Lett.*, no. 111, 2009.
- [183] B. Mandl *et al.*, "Au-free epitaxial growth of InAs nanowires.," *Nano Lett.*, vol. 6, no. 8, pp. 1817–21, Aug. 2006.
- [184] K. Kolasinski, "Catalytic growth of nanowires: Vapor–liquid–solid, vapor–solid–solid, solution–liquid–solid and solid–liquid–solid growth," *Curr. Opin. Solid State Mater. Sci.*, vol. 10, no. 3–4, pp. 182–191, Jun. 2006.
- [185] I. Levin, A. Davydov, B. Nikoobakht, N. Sanford, and P. Mogilevsky, "Growth habits and defects in ZnO nanowires grown on GaN/sapphire substrates," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 87, no. 10, pp. 1–4, 2005.
- [186] J. Sehested *et al.*, "Atomic-scale imaging of carbon nano bre growth '," *Nature*, vol. 427, no. January, pp. 5–8, 2004.
- [187] Y. Li, W. Kim, Y. Zhang, M. Rolandi, D. Wang, and H. Dai, "Growth of single-walled carbon nanotubes from discrete catalytic nanoparticles of various sizes," *J. Phys. Chem. B*, vol. 105, no. 46, pp. 11424–11431, 2001.
- [188] D. S. Kim *et al.*, "Laser-interference lithography tailored for highly symmetrically arranged ZnO nanowire arrays," *Small*, vol. 3, no. 1, pp. 76–80, 2007.
- [189] D. S. Kim, R. Scholz, U. Göxele, and M. Zacharias, "Gold at the root or at the tip of ZnO nanowires: A model," *Small*, vol. 4, no. 10, pp. 1615–1619, 2008.
- [190] J. Dufouleur *et al.*, "Quasiballistic Transport of Dirac Fermions in a Bi2Se3 Nanowire," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 110, no. 18, p. 186806, Apr. 2013.
- [191] M. Hansen, *Der Aufbau der Zweistofflegierungen*. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 1936.
- [192] L. D. Alegria and J. R. Petta, "Controlled MOCVD growth of Bi 2Se 3 topological insulator nanoribbons," *Nanotechnology*, vol. 23, no. 43, 2012.
- [193] W. Gerlach and B. Goel, "Gold silicon phase diagram," *Solid. State. Electron.*, vol. 10, no. 6, pp. 589–592, 1967.
- [194] S. Sasaki *et al.*, "Topological Superconductivity in Cu(x)Bi(2)Se(3)," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 107, no. 21, pp. 3–7, Nov. 2011.
- [195] Y. Zeng, C. Lei, G. Chaudhary, and A. H. Macdonald, "Quantum anomalous Hall Majorana platform," *Phys. Rev. B*, vol. 97, no. 8, pp. 1–5, 2018.

Veröffentlichungen des Autors

Artikel in wissenschaftlichen Fachjournalen

- **G. Knebl**, P. Pfeffer, S. Schmid, M. Kamp, G. Bastard, E. Batke, L. Worschech, F. Hartmann, and S. Höfling, "Optical tuning of the charge carrier type in the topological regime of InAs/GaSb quantum wells," Phys. Rev. B, vol. 98, no. 4, p. 041301, 2018.
- **G. M. Kneb**l, J. R. Gessler, M. Kamp, and S. Höfling, "Molecular beam epitaxial growth of Bi₂Se₃ nanowires and nanoflakes," Appl. Phys. Lett., vol. 133109, 2014.
- F. Rothmayr, A. Pfenning, C. Kistner, J. Koeth, **G. Knebl**, A. Schade, S. Krueger, L. Worschech, F. Hartmann, and S. Höfling, "Mid-infrared GaSb-based resonant tunneling diode photode-tectors for gas sensing applications," Appl. Phys. Lett., vol. 112, no. 16, p. 161107, 2018.
- A. Pfenning, **G. Knebl**, F. Hartmann, R. Weih, M. Meyer, A. Bader, L. Worschech, S. Höfling, "GaSb / AlAsSb resonant tunneling diodes with GaAsSb emitter prewells," Appl. Phys. Lett., vol. 171104, no. 17, pp. 1–5, 2017.
- H. Plank, S. A. Tarasenko, T. Hummel, **G. Knebl**, P. Pfeffer, M. Kamp, S. Höfling, and S. D. Ganichev, "Circular and linear photogalvanic effects in type-II GaSb/InAs quantum well structures in the inverted regime," Phys. E Low-Dimensional Syst. Nanostructures, vol. 85, 2017.
- A. Pfenning, **G. Knebl**, F. Hartmann, R. Weih, A. Bader, M. Emmerling, M. Kamp, S. Höfling, and L. Worschech, "Room temperature operation of GaSb-based resonant tunneling diodes by prewell injection," Appl. Phys. Lett., vol. 110, no. 3, p. 033507, Jan. 2017.
- A. Ewald, K. Helmschrott, **G. Knebl**, N. Mehrban, L. M. Grover, and U. Gbureck, "Effect of cold-setting calcium- and magnesium phosphate matrices on protein expression in osteoblastic cells.," J. Biomed. Mater. Res. B. Appl. Biomater., vol. 96, no. 2, pp. 326–32, Feb. 2011.

Konferenz- & Tagungsbeiträge

- G. Knebl, P. Pfeffer, F. Keller, S. Schmid M. Schwarz, M. Kamp, S. Höfling, "III-V semiconductor compound quantum wells for topological insulator application," Vortrag, PhD spring meeting des IDK ToIs, Pilsen 2017
- G. Knebl, P. Pfeffer, M. Schwarz, M. Kamp, S. Höfling, "GaSb/InAs compound quantum wells for topological insulator application," Vortrag, Deutscher MBE Workshop, Garching b. München 2016
- G. Knebl, P. Pfeffer, M. Schwarz, S. Höfling, M. Kamp, "GaSb/InAs compound quantum wells for tunable topologlical insulator devices," Poster, Begehung IDK ToIs, 2016
- G. Knebl, P. Pfeffer, M. Schwarz, S. Höfling, M. Kamp, "GaSb/InAs compound quantum wells for tunable topologlical insulator devices," Poster, NTTI & NGS, Würzburg 2016
- G. Knebl, P. Pfeffer, M. Schwarz, S. Höfling, M. Kamp, "GaSb/InAs compound quantum wells for tunable topologlical insulator devices," Poster, meeting des IDK ToIs, Regensburg 2016
- G. Knebl, P. Pfeffer, M. Schwarz, S. Höfling, M. Kamp, "GaSb/InAs compound quantum wells for topological insulator application," Vortrag, PhD spring meeting des IDK ToIs, Leuven 2016
- G. Knebl, P. Pfeffer, S. Höfling, M. Kamp, "GaSb/InAs double quantum wells for tunable topologlical insulator devices," Poster, NTTI, San Sebastian 2015
- G. Knebl, P. Pfeffer, S. Höfling, M. Kamp, "GaSb/InAs compound quantum wells for topologlical insulator application," Vortrag, PhD spring meeting des IDK ToIs, Mauterndorf 2015

- G. Knebl, P. Pfeffer, S. Höfling, M. Kamp, "GaSb/InAs compound quantum wells for electrically tunable topological insulator devices," Poster, DPG Frühjahrestagung, Berlin 2015
- G. Knebl, J. Gessler, M. Kamp, and S. Höfling, "Bi₂Se₃ nanowires grown by molecular beam epitaxy,"Poster, Kick-off meeting Doktorandenkolleg Topologische Isolatoren, Würzburg 2014
- G. Knebl, P. Pfeffer, M. Kamp, "InAs/GaSb compound quantum wells for electrically tunable topological insulator devices, "Poster, NTTI, Berlin 2014
- G. Knebl, S. Höfling, M. Kamp "InAs/GaSb/AlSb QWs for topological insulating systems," Vortrag, DPG Frühjahrestagung, Dresden 2014
- G. Knebl, J. Gessler, M. Kamp, and S. Höfling, "Bi₂Se₃ nanowires grown by molecular beam epitaxy," Vortrag, Deutscher MBE Workshop, Dresden 2013
- G. Knebl, J. Gessler, M. Kamp, and S. Höfling, "Bi₂Se₃ nanowires grown by molecular beam epitaxy," Poster, 1st Sino-German Solid State Quantum Information Symposium, Würzburg 2013
- G. Knebl, M. Kamp, and S. Höfling, "Bi₂Se₃ nanowires grown by molecular beam epitaxy," Poster, Quantum Hall Effects and Related Topics, Poster, Stuttgart 2013

Danksagungen

An dieser Stelle möchte ich all jenen danken, die mich bei dieser Arbeit unterstützt und die zu deren Gelingen beigetragen haben.

Bevor ich die wichtigsten Personen persönlich nenne, soll gesagt sein, dass diese Arbeit ohne die kleinteilige Hilfe vieler hier nicht zwingend namentlich erwähnter Personen unmöglich gewesen wäre. Die Arbeit am Lehrstuhl und im IDK ToIs war stets durch ein freundliches Klima geprägt, persönliche Gespräche führten zu so manchem Geistesblitz.

Namentlich möchte ich mich bedanken

- bei Prof. Dr. Sven Höfling für die Übernahme der Betreuung des Promotionsvorhabens, die Aufnahme am Lehrstuhl, die interessante Themenstellung, die zum Gelingen dieser Arbeit notwendigen experimentellen Ausstattungen, die unermüdliche Unterstützung und die Möglichkeit zahlreiche Konferenzen zu besuchen.
- bei Prof. Dr. Martin Kamp für die Aufnahme am Lehrstuhl der Technischen Physik und die Betreuung des ersten Teils meines Promotionsvorhabens die interessante Themenstellung, die zum Gelingen dieser Arbeit notwendigen experimentellen Ausstattungen und die unermüdliche Unterstützung.
- bei Prof. Dr. Batke für das Bereitstellen seines Labors und Kryostaten.
- bei Dr. Fabian Hartmann für die Unterstützung der Nanoelektronikgruppe bei Messungen, Kryostaten und Interpretation der Messergebnisse.
- bei Vasilij Baumann und der restlichen Wachstums-Gruppe für die selbstverständliche Hilfsbereitschaft in allen Bereichen rund um die Epitaxie. Vasilij im Speziellen für seine unentwegte Motivation, die Varian instand zu setzen.
- bei Pierre Pfeffer für den steinigen Weg, den er mit mir bei einem neuen Thema gegangen ist, bis sinnvolle Ergebnisse zustande gekommen sind.
- beim A-Team für die gute Zusammenarbeit an der Eiko-A. Ganz nach dem Motto: "If you have a problem, if no one else can help, and if you can find them, maybe you can hire the A-Team."

Merci Matze, Robert, Albert, Anne und Sebastian.

• bei den Masteranden, die mit mir an diesem Thema gearbeitet haben: Max, Flo und Sebastian. Vielen Dank für die Unterstützung im Labor und für eure angenehme Mitarbeit.

- bei Adriana Wolf für die Prozessierung vieler, vieler Proben. Für deine Ideen und die Geduld, eine um die andere Variation im Prozess zu versuchen.
- bei Monika Emmerling für die Belichtung und Prozessierung vieler Proben, für ihren Rat und ihre Erfahrung bei der Probenpräparation.
- bei Theresa Steinl für die Prozessierung der ersten TI Probenchargen.
- bei Margit Wagenbrenner für die Unterstützung an den Anlagen früh morgens und bei zahlreichen Öffnungen.
- bei meinen Bürokollegen Vasilij Baumann und Matthias Dallner für die angenehme Atmosphäre und Unterstützung bei vielen Problemen und Problemchen. Für interessante Gespräche über allerlei.
- beim Team des technischen Supports der TEP: Gerhard und Tobi, die in mühevoller Kleinarbeit so manche Anlage am Leben erhalten haben und bei technischen Fragen jederzeit zur Verfügung standen.
- bei den Mitgliedern des Doktorandenkollegs ToIs im Elitenetzwerk Bayern für gewinnbringende Diskussionen und schöne Workshops.
- beim Orga-Team, mit dem ich zahlreiche Konferenzen und Workshops am Lehrstuhl realisieren durfte. Neben all der Arbeit und der stressigen Stimmung hat es mit euch immer Spaß gemacht.
- bei Verena, der guten Seele unseres Lehrstuhls, für die Unterstützung in jedweder Art von Papierkram.

Bei den Freunden in und um Würzburg, aus Studium, Sport oder Gerbrunn.

Weiter bedanke ich mich herzlichst bei meinen Eltern und meinem Bruder, ohne deren Unterstützung, dieser Weg so nicht möglich gewesen wäre. Für Zeit und Geduld, für Motivation und Ablenkung, für Fragen und gute Gespräche.

Und – abschließend bei meiner Freundin Julia. Für Alles!