

# Transportspektroskopie von selbstorganisierten InAs-Quantenpunkten

Diplomarbeit  
zur Erlangung des Grades eines  
Diplomphysikers

vorgelegt von  
Oliver S. Wibbelhoff

an der  
Fakultät für Naturwissenschaften  
der  
Gerhard-Mercator-Universität Duisburg  
am Lehrstuhl von  
Prof. Dr. A. Lorke

Duisburg, im September 2002



## Zusammenfassung

Selbstorganisierten Quantenpunkten gilt seit einigen Jahren sowohl grundlagen- als auch anwendungsorientiertes Interesse. Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich mit der Untersuchung dieser nulldimensionalen Elektronensysteme in Form von InAs-Quantenpunkten, die im Stranski-Krastanov-Modus aufwachsen.

Zur Analyse der Eigenschaften wie Form, Größe, Dichte und Symmetrie der Quantenpunkte werden die beiden Messmethoden der Kapazitäts- und Impedanzspektroskopie verwendet. Die Kontaktierung der Quantenpunkte erfolgt dabei durch Einbettung in eine Kondensatorstruktur mittels Reinraumpräparation. Durch rasterkraftmikroskopische Messungen werden Bilder von zusätzlich an der Probenoberfläche gewachsenen Quantenpunkten erstellt.

Insbesondere wird die Tunneldynamik von Elektronen untersucht, mit denen die Quantenpunkte durch Anlegen einer Spannung kontrolliert geladen werden können. Dazu dient die frequenzabhängige Kapazitätsspektroskopie, mit der der Einfluss hoher Frequenzen auf die Tunnelmechanismen analysiert wird. Als Messgrößen werden sowohl Phase als auch Amplitude des resultierenden Stromsignals herangezogen, um Aussagen über Größen wie Tunnelzeiten, Tunnelwiderstände und Quantenkapazitäten zu machen. Die Tunnelzeiten der Elektronen in Quantenpunktproben mit einer Barrierenbreite von 40nm werden zu einer Größenordnung von einigen hundert  $\mu\text{s}$  bestimmt.

Die Impedanzspektroskopie wird verwendet, um Vergleichsmessungen an den Quantenpunkten mit einer zur Kapazitätsspektroskopie komplementären Methode anzustellen. Dabei wird durch weitergehende Untersuchung der Tunneldynamik die Anwendbarkeit dieser Methode für die Quantenpunktssysteme analysiert, mit dem Ergebnis, dass es zwar möglich ist, das Verhalten der Quantenpunkte in Form eines Ersatzschaltbilds zu charakterisieren, der quantitativen Modellierung aber enge Grenzen gesetzt sind.

Durch Kapazitätssmessungen in Magnetfeldern bis 11T werden elektronische Eigenschaften der Quantenpunkte ermittelt. So kann durch Anlegen eines zur Tunnelrichtung parallelen Magnetfelds die Zeeman-Aufspaltung der elektronischen Zustände mit Drehimpuls quantitativ zur Messung der effektiven Masse der Elektronen verwendet werden. Es ergibt sich ein Wert für die InAs-Quantenpunkte von  $m_e^* = (0,063 \pm 0,003)m_e$ .

Ein bezüglich der Tunnelrichtung senkrecht angelegtes Magnetfeld hat Auswirkung auf die Dynamik der Elektronen durch eine effektive Verbreiterung der Tunnelbarriere. Durch Variation der Magnetfeldrichtung in der Ebene senkrecht zur Tunnelrichtung wird ein Symmetriebruch durch eine ovale Form der Quantenpunkte bestätigt. Mit dieser Methode ist ein „Austasten“ der elektronischen Wellenfunktion möglich.

## Abstract

For some years now, self-assembled quantum dots are in the center of interest of both fundamental and applied research. This work analyzes the properties of such zero dimensional electron systems by investigating InAs quantum dots, grown in the Stranski-Krastanov mode.

Both capacitance and impedance spectroscopy are applied as two complementary measuring methods for studying properties like form, size, density and symmetry of quantum dots. Clean room processing is applied to electrically contact the dots in the heterostructure. Atomic force microscopy provides images of similarly grown dots on the sample surface.

In particular, the tunneling dynamics of electrons which are trapped by the dots in a controlled way by applying a gate voltage is investigated. Frequency dependent capacitance spectroscopy is used as a means to study those tunneling dynamics by analyzing the corresponding current signal in both amplitude and phase. This technique gives information about properties like tunneling resistance, quantum capacitance and tunneling time which is determined as several hundred microseconds for the samples with a tunneling barrier of 40nm.

The technique of impedance spectroscopy is utilized in comparison to the capacitance measurements. The thorough investigation of the tunneling mechanisms examines the applicability of impedance spectroscopy for the quantum dot samples. It is shown that this technique can characterize the sample structure with equivalent circuits but has clear limits in modelling the system quantitatively.

Capacitance measurements in magnetic fields up to 11T are further used to investigate the electronic properties of self-assembled dots. The application of a magnetic field parallel to the tunneling direction induces a Zeeman splitting of electronic states with angular momentum which is used to calculate the electrons' effective mass to  $m_e^* = (0,063 \pm 0,003)m_e$ .

Magnetic fields perpendicular to the tunneling direction influence the tunneling dynamics by increasing the effective barrier width. By rotating the samples in the magnetic field we observe a break of symmetry which is explained by an elliptical form of the dots. Magnetic field dependent tunneling spectroscopy can therefore be used for a spatial mapping of the electron wave functions.

# Inhaltsverzeichnis

<b>1 Einleitung</b>	<b>3</b>
<b>2 Physikalische Grundlagen</b>	<b>6</b>
2.1 Niedrigdimensionale Elektronensysteme . . . . .	6
2.1.1 Quantenpunkte . . . . .	6
2.1.2 Quantisierung der Energieniveaus . . . . .	7
2.1.3 Zweidimensionaler harmonischer Oszillator . . . . .	7
2.1.4 Coulombblockade . . . . .	11
2.1.5 Das Constant Interaction Model und seine Erweiterung . .	13
2.1.6 Berechnung der effektiven Masse . . . . .	17
2.1.7 Die Quantenkapazität $C_q$ . . . . .	18
2.1.8 Ersatzschaltbild für die Probenstruktur . . . . .	21
2.2 Impedanzspektroskopie . . . . .	23
2.2.1 Modellierung in der Impedanzspektroskopie . . . . .	23
2.2.2 Frequency Domain Methode . . . . .	25
2.2.3 Äquivalentschaltkreise . . . . .	30
<b>3 Probenpräparation und Messmethoden</b>	<b>34</b>
3.1 Wachstumsmodi . . . . .	34
3.2 Probenwachstum . . . . .	36
3.3 Heterostruktur der Quantenpunktproben . . . . .	38
3.4 AFM-Untersuchungen . . . . .	40
3.5 Probenpräparation . . . . .	42
3.6 Leckströme . . . . .	46
3.7 Messmethoden . . . . .	47
3.8 Messaufbau . . . . .	49
3.8.1 Kapazitätsmessung . . . . .	49
3.8.2 Kapazitätsmessung im Magnetfeld . . . . .	50
3.8.3 Impedanzmessung . . . . .	51

<b>4 Experimentelle Ergebnisse und Diskussion</b>	<b>53</b>
4.1 Kapazitätsmessungen . . . . .	53
4.1.1 Kapazitätsspektren . . . . .	54
4.1.2 Auflösen der P-Niveaus . . . . .	56
4.1.3 Quantenpunktdichte . . . . .	57
4.2 Tunneldynamik. . . . .	60
4.2.1 Kapazitätsmessungen . . . . .	60
4.2.2 Bestimmung der Tunnelzeiten . . . . .	64
4.3 Auswertung der Phaseninformation . . . . .	68
4.4 Untersuchung der Tunneldynamik mittels Impedanzspektroskopie	70
4.5 Kapazitätsmessungen im Magnetfeld . . . . .	79
4.5.1 Senkrechtes Magnetfeld . . . . .	79
4.5.2 Paralleles Magnetfeld. . . . .	91
<b>5 Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>97</b>
<b>Anhang</b>	<b>99</b>
<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>109</b>

# Kapitel 1

## Einleitung

Die enorme Bedeutung der Halbleiter- und Informationstechnologie auf unser Alltagsleben ergab sich aus der stetigen Miniaturisierung der integrierten Schaltungen in den letzten 50 Jahren. Damit hat diese Technologie Einzug in fast alle heutigen Lebensbereiche gehalten und ist aus dem täglichen Gebrauch nicht mehr wegzudenken.

Der Trend der Miniaturisierung äußert sich zur Zeit im Übergang der Mikroelektronik zur Nanoelektronik mit Strukturgrößen kleiner als 100nm. Obwohl sich im Laufe dieser Entwicklung bei jeder Verkleinerungsstufe enorme technische Probleme ergeben haben, konnten diese bisher noch immer gelöst werden. Es ist jedoch ebenfalls seit vielen Jahren bekannt, dass die Miniaturisierung in absehbarer Zeit an ihre Grenzen stoßen wird, weil ab einer Strukturgröße von etwa 10nm die grundlegenden Prinzipien der Elektronik nicht mehr funktionieren.

So beginnen im Nanometerbereich wegen der in der Größenordnung von 10nm liegenden de Broglie-Wellenlänge der Elektronen Quanteneffekte das Verhalten der Elektronensysteme zu bestimmen. Untersuchungen an niedrigdimensionalen Elektronensystemen, wie sie in der vorliegenden Arbeit gezeigt werden, geben Aufschluss über die zu erwartenden physikalischen Effekte bei weiter gehender Miniaturisierung. Ein solches niedrigdimensionales Elektronensystem ist beispielsweise das zweidimensionale Elektronengas (2DEG), bei dem die Elektronenbewegung in einer Raumrichtung stark eingeschränkt ist. Führt man die Einschränkung weiter, so dass die Elektronenbewegung in allen drei Raumrichtungen eingeschränkt ist, ergeben sich die nulldimensionalen Systeme der so genannten Quantenpunkte. Diese Systeme weisen ein diskretes Energiespektrum auf und zeigen in mancher Hinsicht ein den Atomen ähnliches Verhalten. Im Gegensatz zu den Atomen ist man jedoch bei den Quantenpunkten in der Lage, auf einfache Weise Einfluss auf die Größe und elektronische Struktur zu nehmen.

Einige Zeit galt die Nanolithografie als vielversprechendste Methode zur Herstellung von Quantenpunkten. Bei dieser Methode ist es möglich, nulldimensiona-

le Elektronensysteme herzustellen, indem die vorhandene Heterostruktur aus Halbleitermaterialien durch Ätzen strukturiert wird oder indem Gateelektroden aufgebracht werden, welche einen kleinen Bereich einer nicht Ladungsträger entleerten Zone definieren. Die Elektroden werden dabei in der Regel per Elektronenstrahllithografie erzeugt. Da die so hergestellten Quantenpunkte relativ groß sind, ist die Energie zum Hinzufügen eines Elektrons zum Elektronensystem bestimmt durch die Coulombwechselwirkung zwischen den Elektronen. Einschränkungen ergeben sich bei dieser Herstellungsmethode durch lange „Schreibzeiten“ und abnehmender Genauigkeit mit sinkender Strukturgröße.

Heutzutage scheint selbstorganisiertes Wachstum die geeignetste Methode zur Herstellung einer großen Anzahl gleichförmiger Quantenpunkte zu sein. Im so genannten Stranski-Krastanov-Wachstum bilden sich aus dem Materialsystem InAs/GaAs Inselstrukturen, die sich durch ihre geringe Größe von einigen 10nm und durch exzellente Monodispersität auszeichnen. Die charakteristische Länge für diese nulldimensionalen Elektronensysteme liegt in einer Größenordnung, in der sich der Einfluss der räumlichen Quantisierung der Elektronenenergien bemerkbar macht. Die mit dieser Methode erzeugten Inseldichten betragen etwa  $10^{10}$  pro cm<sup>2</sup>, eine Anzahl wie sie mit der Methode der Nanolithografie nur mit inpraktikabel langen Schreibzeiten herzustellen wäre.

Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich mit der grundlagenphysikalischen Untersuchung von selbstorganisierten Quantenpunkten. Die experimentellen Messungen erfolgen in einem Modellsystem, bei dem die Quantenpunkte durch Einbau in eine Kondensatorstruktur der Messung zugänglich gemacht werden. Um die Energieniveaus geeignet auflösen zu können, sind Temperaturen von 4,2K nötig, was den modellhaften Charakter der Untersuchungen verdeutlicht.

Dennoch existieren auch bei Raumtemperatur schon viele wichtige Anwendungsgebiete von niedrigdimensionalen Elektronensystemen in der Informations-technologie, wie beispielsweise der HEMT (High Electron Mobility Transistor), bei dem ein leitfähiger Kanal durch ein zweidimensionales Elektronengas an der Grenzfläche in einer Halbleiter-Heterostruktur gebildet wird oder auch der Quantenpunkt-laser, bei dem sich neue Möglichkeiten in der Einflussnahme auf die Lichtemission durch teilweiser Entkopplung von den Materialeigenschaften ergeben. Die emittierte Farbe kann dabei durch Variation der Quantenpunktgröße eingestellt werden.

Als Untersuchungsmethoden wurden in dieser Arbeit die Kapazitäts- und Impedanzspektroskopie verwendet, bei denen das System der Quantenpunkte jeweils durch Anlegen einer Gleich- und einer Wechselspannung angeregt und die Grundzustandsenergieniveaus spektroskopiert werden. Die Kapazitätsspektroskopie ist dabei eine probate Messmethode, die bereits zu einer Reihe von modellhaften Anschauungen für diese Systeme geführt hat. So konnten, wenn auch mit Einschränkung, die Elektronen der Quantenpunkte in Analogie zur Atomphysik in

Energieschalen klassifiziert und die modellhafte Charakterisierung der Quantenpunktsysteme in Form von Ersatzschaltbildern vorgenommen werden.

Besonderes Interesse gilt in dieser Arbeit der Tunneldynamik der Elektronen, mit denen die Quantenpunkte definiert geladen werden können. Dabei werden die Tunnelzeiten bei unterschiedlichen Probenparametern bestimmt und die Frequenz- und Magnetfeldabhängigkeit der Tunnelmechanismen untersucht. Besondere Bedeutung haben dabei das Probensystem charakterisierende Größen, wie die „Quantenkapazität“ und der „Tunnelwiderstand“. Aus diesen Messungen werden Rückschlüsse gezogen auf die Eigenschaften der Quantenpunkte, wie Größe, Form, Homogenität, sowie elektronische Zustände und Quantisierungsenergien.

Des Weiteren werden die in früheren Arbeiten ermittelten Ersatzschaltbilder für die Probensysteme überprüft, wofür insbesondere die Methode der Impedanzspektroskopie eingesetzt wird. Diese hat sich in den letzten Jahren sowohl in der Industrie als auch in den Hochschulen als eine wichtige Methode zur experimentellen Messung von Grenz- und Oberflächenprozessen in der Materialforschung etabliert. Dabei wird der Umstand genutzt, dass mit dieser Messmethode trotz des Gesamtcharakters der Messsignale durch geeignete Auswertung auf mikroskopische Ladungsmechanismen geschlossen werden kann.

Die vorliegende Arbeit ist folgendermaßen gegliedert:

- Das **2. Kapitel** stellt die physikalischen Grundlagen über nulldimensionale Elektronensysteme unter Einwirkung eines Magnetfeldes vor.
- Im **3. Kapitel** werden der Probenaufbau, die Probenpräparation und der Messaufbau dargestellt.
- Das **4. Kapitel** zeigt die experimentellen Messergebnisse der Kapazitäts- und Impedanzspektroskopie an selbstorganisierten Quantenpunkten. Es werden die Auswirkungen der Probenparameter auf die Tunnelmechanismen beschrieben und modellhafte Ersatzschaltbilder für das Probensystem überprüft.
- Das **5. Kapitel** fasst die Ergebnisse noch einmal zusammen und gibt einen Ausblick auf weitere Untersuchungsmöglichkeiten.

# Kapitel 2

## Physikalische Grundlagen

### 2.1 Niedrigdimensionale Elektronensysteme

Durch moderne epitaktische Verfahren ist es heutzutage möglich, Potenzialstrukturen zu realisieren, mit denen die Freiheitsgrade von Elektronensystemen stark eingeschränkt sind. Dies führt bekanntermaßen zur Quantelung der Energieeigenwerte dieser Systeme und somit zu neuen physikalischen Eigenschaften.

Ein System, dessen Bewegungsfreiheit in einer Raumrichtung stark eingeschränkt ist, bezeichnet man als **zweidimensionales Elektronensystem** (2DEG). Geht man einen Schritt weiter und schränkt das System in einer weiteren Raumrichtung ein, so spricht man von einem eindimensionalen System, einem **Quantendraht**, und schließlich bei Einschränkung aller drei Raumrichtungen von nulldimensionalen Elektronensystemen. Da letztere von besonderem Interesse für diese Arbeit sind, sollen sie im Folgenden ausführlich dargestellt werden.

#### 2.1.1 Quantenpunkte

Eine nulldimensionale Nanostruktur aus Halbleitermaterialien bezeichnet man auch als **Quantenpunkt**. Die Nulldimensionalität entsteht durch die geeignete Definition eines künstlichen Potenzials mit epitaktischen oder lithografischen Verfahren, wodurch eine starke Einschränkung der Bewegungsfreiheit der Elektronen in allen drei Raumrichtungen entsteht. Diese Lokalisierung der elektronischen Zustände führt bei Abmessungen der Quantenpunkte in der Größenordnung der de Broglie-Wellenlänge der Elektronen zur Quantisierung der Energie des Elektronensystems.

Größe und Form der Quantenpunkte hängen vom Herstellungsverfahren und den verwendeten Materialien ab. In dieser Arbeit werden InAs-Quantenpunkte untersucht, die selbstorganisiert durch Stranski-Krastanov-Wachstum entstanden sind (siehe Kapitel 3.1). Typischerweise werden diese Quantenpunkte als linsen-

förmig angenommen; sie haben Durchmesser in der Größenordnung von 20 – 30nm und Höhen um 7 – 9nm. Diese Form ist gleichbedeutend mit einer höheren Quantisierung in Wachstumsrichtung (z) als in lateraler Richtung (x, y). InAs-Quantenpunkte haben dabei den Vorteil, dass sie Inselstrukturen ausbilden, die sich durch starke Homogenität auszeichnen und sich somit gut für Tunnelpektroskopische Untersuchungen eignen, wie sich weiter unten in der Darstellung der Zustandsdichte zeigen wird.

### 2.1.2 Quantisierung der Energieniveaus

Quantenpunkte besitzen wie Atome diskrete Energiespektren, und die in ihnen befindlichen Elektronen können analog der Atomphysik als in Schalen aufgeteilt betrachtet werden. Deswegen bezeichnet man Quantenpunkte oft auch als „künstliche Atome“.

Bei den Atomen ist es die sphärische Symmetrie des nuklearen Potenzials, die zur Schalenstruktur der Elektronen und damit zum Periodensystem der Elemente führt. Bei den Quantenpunkten ist es die zweidimensionale Symmetrie des harmonischen Potenzials (siehe Kap. 2.1.3) die dazu führt, dass man auch hier ein Periodensystem von „künstlichen Atomen“ erhält. Die unterschiedlichen „Elemente“ dieses neuen Periodensystems können durch einfaches Laden der Quantenpunkte mit Elektronen über eine angelegte Spannung realisiert werden. Die erste Schale, genannt *s*-Schale, kann dabei zwei Elektronen mit entgegengesetztem Spin aufnehmen, die nächste, die *p*-Schale, vier. Die dritte Schale, die so genannte *d*-Schale dann sechs Elektronen, usw. Die *s*-Elektronen entsprechen dem niedrigsten Energieniveau.

Interessant macht diese künstlichen Elemente vor allem die Tatsache, dass an ihnen Experimente in Messbereichen durchgeführt werden können, die sonst nicht zugänglich sind. Ein äußeres Magnetfeld hat auf die Quantenpunkte eine wesentlich stärkere Wirkung als auf normale Atome. Ein Tesla bei einem Quantenpunkt entsprechen 10<sup>6</sup> Tesla für ein Atom, was für letztere im Labor nicht erreichbar ist.

Zusammenfassend kann man also sagen, Quantenpunkte sind zweidimensionale Analoga von echten Atomen. Aufgrund ihrer größeren Abmessungen gegenüber den Atomen haben Quantenpunkte als künstliche Atome jedoch den Vorteil der besseren experimentellen Zugänglichkeit.

### 2.1.3 Zweidimensionaler harmonischer Oszillator

Wie bereits erwähnt, ist die Einschränkung der Elektronen im Quantenpunkt stärker in Wachstumsrichtung, so dass sie praktisch nur zweidimensionale Bewegungsfreiheit besitzen. Aus diesem Grund wird im Folgenden das zweidimensionale Potenzial betrachtet, in welchem sich die Elektronen bewegen. Dieses wird in einfachster Näherung als parabolisch angenommen, was auch durch theoretische Berechnungen bestätigt wird [Wojs96], obwohl Abweichungen von dieser Ideali-

sierung bekannt sind und gemessen wurden [Fricke95] [Fricke96a]. Fazit dieser Untersuchungen ist jedoch, dass das parabolische Potenzial als gut geeigneter Ausgangspunkt dienen kann, die auftretenden physikalischen Effekte zu beschreiben.

Die Vorgehensweise besteht im vorliegenden Teilkapitel in einer Darstellung der Quanteneffekte in nulldimensionalen Systemen ohne Betrachtung der Coulomb-Wechselwirkung. Kapitel 2.1.4 behandelt dann die Coulomb-Effekte der Ladungsträger in einem klassischen Modell ohne Einbeziehung von Quanteneffekten. Beide Beiträge werden dann in Kap. 2.1.5 zusammengeführt im dort vorgestellten Constant-Interaction-Model.

Die Energieeigenwerte eines zweidimensionalen harmonischen Oszillators im Potenzial  $V(x,y) = \frac{1}{2}m^*\omega_0(x^2+y^2)$  wurden von Fock und Darwin berechnet [Fock28] [Darwin30] und ergeben sich in Zylinderkoordinaten zu

$$E_{n,l} = \hbar\omega_0(2n + |l| + 1), \quad (2.1)$$

mit der radialen Quantenzahl  $n$ , der Drehimpulsquantenzahl  $l$  und der Kreisfrequenz  $\omega_0$ , und  $n, |l| = 0, 1, 2, \dots$ .

Die Entartung des Eigenzustandes  $(m+1)\hbar\omega_0$  ist  $2(m+1)$ fach, wobei der Faktor 2 von den möglichen Spinzuständen  $s = \pm \frac{1}{2}$  herrührt und  $m = 2n + |l|$  gilt. Tabelle 2.1 listet für den jeweiligen Zustand die Quantenzahlen  $n, l, m$ , sowie die Entartung und die Einteilchenenergien auf:

**Tabelle 2.1:** Eigenschaften der Zustände für den zweidimensionalen harmonischen Oszillator

Zustand	$n$	$l$	$m$	Entartung $2(m+1)$	Einteilchen- energien
$s$	0	0	0	2fach	$\hbar\omega_0$
$p$	0	$\pm 1$	1	4fach	$2\hbar\omega_0$
$d$	0	$\pm 2$	2	6fach	$3\hbar\omega_0$

Die Nomenklatur ist im Folgenden so gewählt, dass an die Bezeichnung des Zustands die Drehimpulsquantenzahl  $l$  als Index angefügt wird, beispielsweise kennzeichnet  $d_{-2}$  den  $d$ -Zustand mit  $l = -2$ .

Bereits für den  $d$ -Zustand zeigen sich allerdings die Grenzen der Vergleichbarkeit von Quantenpunkten mit Atomen, da in der „d-Schale“ der Quantenpunkte mit  $n = 1$  und  $l = 0$  ein Zustand existiert, der nicht  $d$ -artig im Sinne der Atomphysik ist.

Bei zusätzlich angelegtem Magnetfeld  $B$  ergibt sich die Schrödingergleichung im zweidimensionalen harmonischen Potenzial zu

$$\left( \frac{1}{2m^*} (p - eA)^2 + \frac{1}{2} m^* \omega_0^2 (x^2 + y^2) \right) \Psi = E \Psi, \quad (2.2)$$

mit dem Impulsoperator  $p$  und dem Vektorpotenzial  $A$ , wobei  $\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A}$ . Die Zeeman-Aufspaltung auf Grund des Elektronenspins ist hier vernachlässigt<sup>1</sup>.

Die zugehörigen Energieniveaus ergeben sich zu:

$$E_{n,l} = \hbar \omega_{\text{eff}} (2n + |l| + 1) + \frac{1}{2} l \hbar \omega_c. \quad (2.3)$$

Dabei ist  $\omega_c = eB/m^*$  die magnetfeldabhängige Zyklotronfrequenz und  $\omega_{\text{eff}}$  das durch das Magnetfeld erhöhte Einschlusspotenzial:

$$\hbar \omega_{\text{eff}} = \hbar \sqrt{\omega_0^2 + \frac{1}{4} \omega_c^2}. \quad (2.4)$$

Die Einteilchenzustände haben im Magnetfeld die in Tabelle 2.2 aufgeführten Energien:

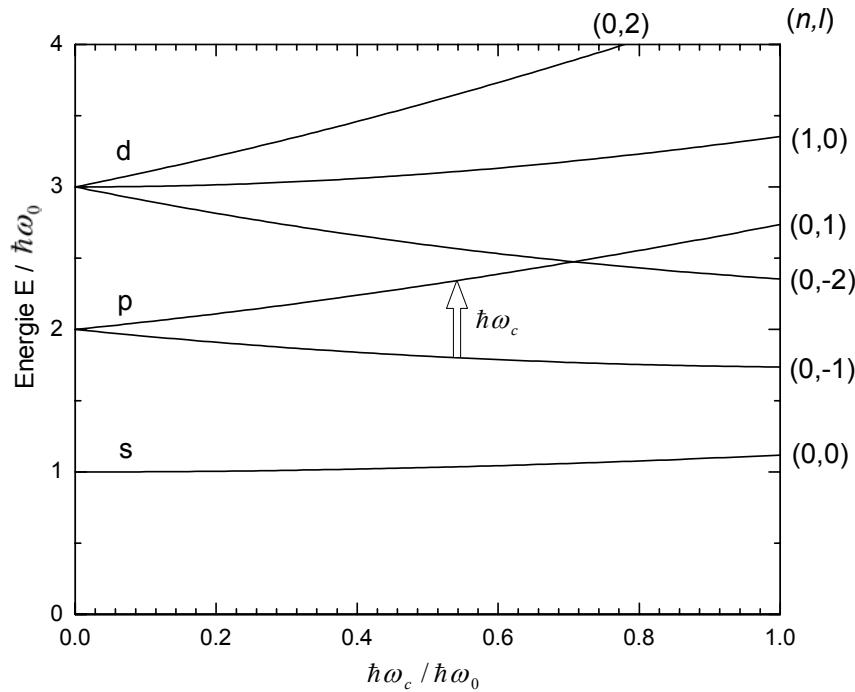
**Tabelle 2.2:** Energieniveaus der Einteilchenzustände im Magnetfeld

Zustand	Energie
$s$	$\hbar \omega_{\text{eff}}$
$p_-$	$2\hbar \omega_{\text{eff}} - \frac{1}{2} \hbar \omega_c$
$p_+$	$2\hbar \omega_{\text{eff}} + \frac{1}{2} \hbar \omega_c$
$d_{-2}$	$3\hbar \omega_{\text{eff}} - \hbar \omega_c$
$d_0$	$3\hbar \omega_{\text{eff}}$
$d_{+2}$	$3\hbar \omega_{\text{eff}} + \hbar \omega_c$

Abb. 2.1 zeigt den Verlauf der Fock-Darwin-Energieniveaus in Abhängigkeit des Magnetfeldes, wobei beide Achsen mit der Quantisierungsenergie  $\hbar \omega_0$  normiert sind. Abhängig von der Drehimpulsquantenzahl  $l$  sind die Niveaus als s-, p- und d-artig bezeichnet, wobei für die d-Zustände die oben erwähnte Einschränkung gilt.

---

<sup>1</sup> wegen des kleinen effektiven g-Faktors der InAs-Quantenpunkte, siehe [Fricke96b].



**Abbildung 2.1:** Auf die Energie  $\hbar\omega_0$  normierte Fock-Darwin-Energieeigenwerte im zweidimensionalen harmonischen Potenzial für die untersten drei Zustände  $s$ ,  $p$  und  $d$ . Auf der rechten Seite sind die Quantenzahlen  $(n, l)$  für die jeweiligen Energieäste angegeben. Die Spinentartung ist hier nicht mit eingezeichnet.

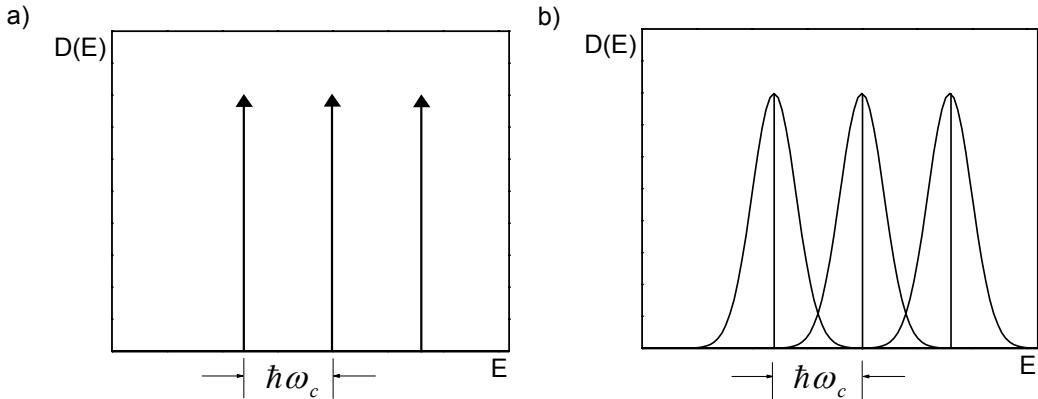
Die in Abb. 2.1 eingezeichnete Energie  $\hbar\omega_c$  ergibt sich aus der Aufspaltung der  $p$ -Niveaus mit  $l = -1$  und  $l = 1$ :

$$E_{0,+1} - E_{0,-1} = 2\hbar\omega_{eff} + \frac{1}{2}\hbar\omega_c - \left( 2\hbar\omega_{eff} - \frac{1}{2}\hbar\omega_c \right) = \hbar\omega_c. \quad (2.5)$$

Die Quantisierung der Energiewerte im nulldimensionalen System äußert sich in der Zustandsdichte  $D(E)$  in deltaförmigen Maxima mit Abständen  $\hbar\omega_c$  für einen einzelnen Quantenpunkt, wie es in Abb. 2.2a dargestellt ist. Liegt ein inhomogenes Ensemble von Quantenpunkten vor, ergibt sich eine gaußförmige Verbreiterung in der Zustandsdichte auf Grund der Größenvariation im Ensemble (Abb. 2.2b).

Zeichnet sich aber das Quantenpunkt-Ensemble durch ausreichende Homogenität und somit schmale Maxima in der Zustandsdichte aus, so kann mittels der Kapazitätsspektroskopie (siehe Kapitel 3.7) die Lage der einzelnen Energieniveaus direkt spektroskopiert werden. Dabei ist dann auch umgekehrt in der ex-

perimentellen Messung die Verbreiterung der Zustandsniveaus ein Maß für die Homogenität der Quantenpunkte.



**Abbildung 2.2:** Darstellung der Zustandsdichte für ein nulldimensionales Elektronensystem. a) Deltaförmige Zustandsdichte für einen einzelnen Quantenpunkt b) Zustandsdichte für ein inhomogenes Ensemble von Quantenpunkten mit gaußförmiger Verbreiterung

Die Reduzierung auf eine nulldimensionale Struktur hat dabei Einfluss auf die Transporteigenschaften der Ladungsträger wegen der gegenüber dem dreidimensionalen Fall drastisch veränderten Zustandsdichte.

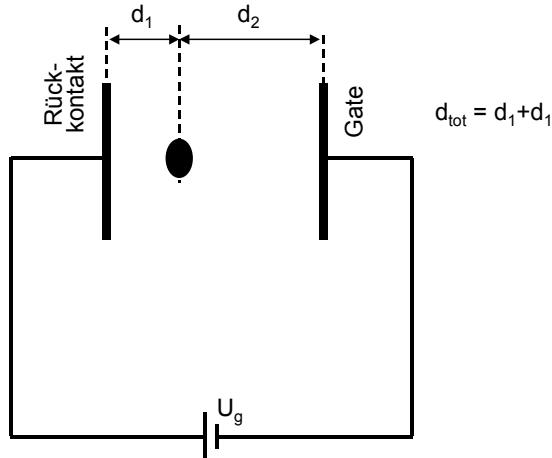
### 2.1.4 Coulombblockade

Wie in Kapitel 3 näher beschrieben wird,bettet man die Quantenpunkte bei der Probenpräparation in eine Kondensatorstruktur ein. Diese Kondensatorstruktur ist in Abb. 2.3 schematisch dargestellt. Die Quantenpunkte werden dabei als Metallpartikel mit der Kapazität  $C$  beschrieben; sie befinden sich zwischen zwei Elektroden, die hier der Probenpräparation entsprechend „Gate“ und „Rückkontakt“ genannt werden (siehe auch Kap. 3), und die in Abb. 2.3 als Kondensatorplatten dargestellt sind. Die genaue Lage der Quantenpunkte ist darin durch den Hebelarm

$$\lambda = \frac{d_{tot}}{d_1} \quad (2.6)$$

gegeben. Der Quantenpunkt befindet sich im Abstand  $d_1$  („Tunnelbarriere“) vom Rückkontakt und steht mit ihm im thermodynamischen Gleichgewicht. Die Elektroden selbst haben einen Abstand  $d_{tot}$  voneinander. Durch Anlegen einer Gleichspannung  $U_g$  zwischen den Kondensatorplatten ist es nun möglich, bei bestimmten Werten von  $U_g$  Elektronen vom Rückkontakt zu den Quantenpunkten über den

Abstand  $d_1$  tunneln zu lassen. Das Tunneln von Elektronen in Richtung der rechten Platte wird dagegen durch eine Blockierbarriere der Dicke  $d_2$  verhindert.



**Abbildung 2.3:** Kondensatormodell für die Beschreibung der Coulombblockade. Der Quantenpunkt ist eingebettet zwischen den beiden Elektroden eines Kondensators. Durch Anlegen einer Spannung  $U_g$  ist das Tunneln von Elektronen über den Abstand  $d_1$  möglich, über den Abstand  $d_2$  dagegen blockiert.

Mit diesem einfachen Modell lässt sich in geeigneter Weise die so genannte **Coulombblockade** beschreiben, wie es im Folgenden genauer dargestellt ist.

Bei der Betrachtung der Grundzustandsenergie von Quantenpunkten muss ab der Besetzung mit dem ersten Elektron die Elektron-Elektron-Wechselwirkung berücksichtigt werden.

Da die Anzahl  $N$  der im Quantenpunkt vorhandenen Elektronen nur ganzzahlige Werte annehmen kann, kann sich im Gleichgewicht eine elektrostatische Potenzialdifferenz  $U'$  zwischen Quantenpunkten und Elektronenreservoir mit der Gesamtladung  $Q = -Ne$  im Quantenpunkt ergeben. Die Einteilchenenergien der Elektronen im Quantenpunkt werden dabei vernachlässigt und es wird angenommen, dass sich die Potenzialdifferenz ausdrücken lässt durch eine Kapazität  $C$  zwischen Quantenpunkt und Elektronenreservoir [Beenakker91]:

$$U'(Q) = \frac{Q}{C} + \frac{1}{\lambda} U_g, \quad (2.7)$$

wobei  $1/\lambda \cdot U_g$  der von außen angelegte Spannungsbeitrag ist. Damit berechnet sich die Gesamtenergie  $E_N$  von  $N$  Elektronen im Quantenpunkt zu

$$E^N = \int_0^{-Ne} U'(Q') dQ', \quad (2.8)$$

und damit

$$E^N = \frac{(Ne)^2}{2C} - \frac{1}{\lambda} NeU_g. \quad (2.9)$$

Dabei ist der linke Term die Coulombenergie der  $N$  Elektronen im Quantenpunkt, wobei der Quantenpunkt die Kapazität  $C$  besitzt. Der rechte Term dagegen stellt die potenzielle Energie der  $N$  Elektronen im Quantenpunkt eingebettet zwischen Gateelektrode und Rückkontakt dar, wobei zwischen Quantenpunkt und linker Kondensatorplatte eine um den Faktor  $1/\lambda$  verringerte Spannung abfällt.

Weitere Elektronen können nur dann in den Quantenpunkt tunneln, wenn die Gesamtenergie von  $N$  und  $N+1$  Elektronen gleich ist. Daraus lässt sich die Energiedifferenz zwischen zwei Ladevorgängen ableiten:

$$e(U_g^{N+1} - U_g^N) \cdot \frac{1}{\lambda} = \frac{e^2}{C}. \quad (2.10)$$

Den entsprechenden Energiebeitrag  $E_c = e^2/C$  bezeichnet man als Coulombblockade, d.h. es ist immer eine diskrete Erhöhung der Kondensatorspannung nötig, um den Quantenpunkt mit einem weiteren Elektron zu laden. Zwischen diesen Spannungen ist dagegen das Laden blockiert.

## 2.1.5 Das Constant Interaction Model und seine Erweiterung

Zur näheren Beschreibung des Ladevorganges der Quantenpunkte mit Elektronen sollen in diesem Abschnitt Berechnungen aufgeführt werden, die die Elektron-Elektron-Wechselwirkung zusammen mit den Quantisierungseffekten aus Kap. 2.1.3 im so genannten **Constant Interaction Model**<sup>2</sup> [Beenakker91] [Kastner93] geeignet darstellen. Die wichtigste Annahme in diesem Modell ist, dass die Quantisierungs- und Coulombenergien von verschiedenen Größenordnungen sind und somit (auch für ein Niveau) separat voneinander behandelt werden können.

Für die Gesamtenergie von  $N$  Elektronen in einem Quantenpunkt gilt im Rahmen dieses Modells folgender additiver Ansatz:

$$E^N = \sum_{k=1}^N E_{n,l} + \frac{(Ne)^2}{2C} - \frac{1}{\lambda} NeU_g, \quad (2.11)$$

wobei die Gesamtenergie aus Gl. (2.9) um die Summe der Einteilchenenergien aus Gl. (2.3) erweitert worden ist.

---

<sup>2</sup> deutsch: Modell konstanter Wechselwirkung

Die Energiedifferenz zwischen zwei Ladevorgängen berechnet sich dann nach

$$\frac{1}{\lambda} Ne(U_g^{N+1} - U_g^N) = \frac{e^2}{2C} + E_{n,l}^{N+1} - E_{n,l}^N. \quad (2.12)$$

Das Modell geht von einem konstanten Wert für die Coulombblockade aus, d.h. die Coulombblockadeenergie ist unabhängig von der Anzahl der bereits im Quantenpunkt vorhandenen Elektronen.

Erweiterungen dieses Modells sind nötig, um das reale Verhalten der Elektronen im Magnetfeld zu beschreiben. So ist die Coulombblockade nach Störungsrechnungen 1. Ordnung [Warburton98] sehr wohl abhängig von der Anzahl der im Quantenpunkt vorhandenen Elektronen.

Dabei wurden bei der Erweiterung des Modells folgende Annahmen getroffen:

1. Die Quantisierungsenergie ist größer als die Coulombenergie. Diese Annahme ist, wie sich aus den experimentellen Messergebnissen zeigt, ge-rechtfertigt, wobei sich in den Messungen in dieser Diplomarbeit  $\hbar\omega_0 \approx 60\text{meV}$  ergibt, gegenüber einer Coulombenergie von ca. 20meV zwischen den beiden s-Elektronen. Somit können die Coulomb-Wechselwirkungen als eine kleine Störung des Einteilchensystems behandelt werden.
2. Das einschränkende Potenzial ist parabolisch. Dies zeigt sich in Fern-Infrarot-Untersuchungen von Quantenpunkten [Fricke96a], bei denen sich in Anlehnung an das Kohn'sche Theorem die optische Absorption als nur schwach abhängig von der Besetzungszahl zeigt.<sup>3</sup>
3. Die Quantisierung ist wesentlich stärker in Wachstumsrichtung der Quantenpunkte als in lateraler Richtung. Dies bestätigt sich in den Abmessungen der Quantenpunkte, die Höhen von etwa 7nm und Durchmesser von ungefähr 20nm besitzen. Die Quantisierung ist damit fast eine Größenordnung stärker in Wachstumsrichtung.
4. Quantenpunkt-Quantenpunkt-Wechselwirkungen werden vernachlässigt. Die Wechselwirkung von Elektronen in unterschiedlichen Quantenpunkten sollte einen nur geringen Effekt auf die Coulombblockade haben, was sich aus dem Verhältnis von Quantenpunktgröße zu Quantenpunktdurchmesser ergibt [Medeiros97].

---

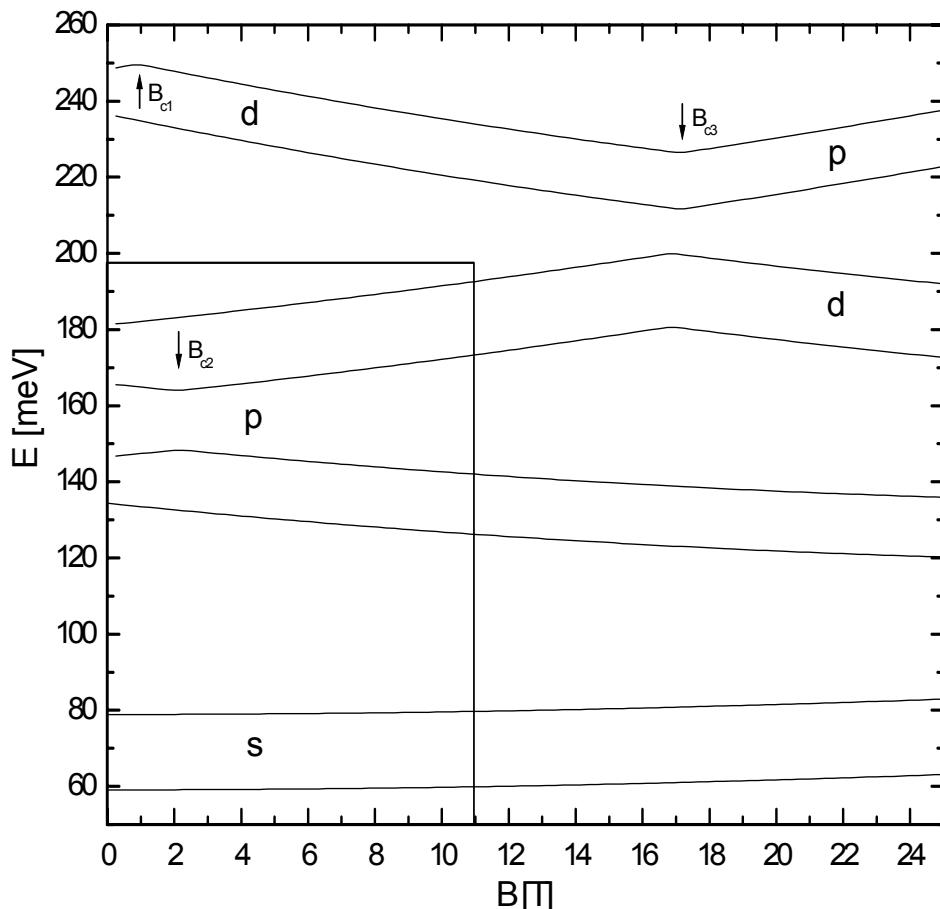
<sup>3</sup> Durch die optischen Untersuchungen ergab sich aus dem Verhalten der Eigenenergieabstände eine parabolische Potenzialform, die einen nach oben hin abgeflachten Verlauf hat.

Nachfolgend wird die Magnetfeldabhängigkeit der Coulombblockade eingeführt. Der charakteristischen Frequenz  $\omega_0$  (ohne Magnetfeld) entspricht eine **charakteristische Länge**  $l_0$  des harmonischen Einschlusspotenzials der Form  $l_0 = (\hbar / m^* \omega_0)^{1/2}$  (wegen  $\frac{1}{2}m^* \omega_0^2 l_0^2 = \frac{1}{2}\hbar\omega_0$ ).

Nach [Merkt91] ergibt sich die Magnetfeldabhängigkeit der charakteristischen Länge  $l_c$  in der Form  $l_c = (\hbar / m^* \omega_{eff})^{1/2}$ . Für die Magnetfeldabhängigkeit der Coulombblockade der beiden s-Elektronen resultiert daraus:

$$E_C^{ss}(B) = E_C^{ss}(B=0) \cdot \sqrt[4]{1 + \left( \frac{\hbar\omega_c}{2\hbar\omega_0} \right)^2}. \quad (2.13)$$

Ab dem dritten Elektron im Quantenpunkt müssen zusätzlich noch die direkte Coulombladeenergie und die Austauschwechselwirkung zwischen einem s- und einem p-Elektron berücksichtigt werden.



**Abbildung 2.4:** Energieniveaudiagramm für die ersten acht Elektronen im Quantenpunkt mit eingezzeichneter Spinentartung. Als Parameter wurden gewählt  $\hbar\omega_0 = 59,1\text{meV}$ , effektive Masse  $m_e^* = 0,063m_e$  und die Coulombblockade der s-Niveaus zu  $e^2 / C = 19,8\text{meV}$ . Die Coulombblockade der p-Niveaus ist an die experimentellen Daten angepasst.

Aus den Gleichungen (2.3) und (2.4) für die Einteilchenenergien im Magnetfeld lässt sich ein Energieniveaudiagramm für die Elektronen im Quantenpunkt darstellen [Warburton98]. Abb. 2.4 zeigt ein solches Diagramm, bei dem die Parameter an die in dieser Arbeit experimentell gemessenen Daten angepasst wurden. Die Quantisierungsenergie wurde gewählt zu  $\hbar\omega_0 = 59,1\text{meV}$ , die effektive Masse zu  $m_e^* = 0,063m_e$  und die Coulombblockade der s-Niveaus zu  $e^2/C = 19,8\text{meV}$ . Eingekästelt ist in der Abbildung der in dieser Diplomarbeit der Messung zugängliche Bereich, der die Niveaus bis zur  $p$ -Schale und Magnetfelder bis 11T umfasst.

Eingezeichnet in Abb. 2.4 sind auch die **kritischen Magnetfelder**, für die Grundzustandsänderungen der Elektronen vorliegen. Dabei bekommt das einfache obige Modell durch Berücksichtigung der **Hund'schen Regel** eine zusätzliche Korrektur. Die Hund'sche Regel besagt, dass eine Schale zuerst bis zur Hälfte mit Zuständen gleichen Spins gefüllt wird, dann wird die andere Hälfte mit Zuständen entgegengesetzten Spins gefüllt. Wie in Abb. 2.4 dargestellt, gehen die Elektronen bei den kritischen Feldern  $B_{c1}$  und  $B_{c2}$  vom  $p$ - in den  $d$ -artigen Zustand über. Die Energien  $\hbar\omega_c$  wurden von [Warburton98] berechnet, womit eine Bestimmung der kritischen Felder möglich ist. Diese sind in Tabelle 2.3 aufgelistet.

**Tabelle 2.3:** Kritische Magnetfelder der abrupten elektronischen Zustandsänderungen. Zur Berechnung wurden die obigen experimentellen Werte  $\hbar\omega_0 = 59,1\text{meV}$ ,  $m_e^* = 0,063m_e$  und  $e^2 / C = 19,8\text{meV}$  benutzt.

$k$	Grundzustandsänderung	$\hbar\omega_c$	$\hbar\omega_c [\text{meV}]$	$B_{ck} [\text{T}]$
1	$d_{+2} \rightarrow d_{-2}$	$\frac{105}{2048}E_c^{ss}$	1,02	0,6
2	$p_+ \rightarrow p_-$	$\frac{3}{16}E_c^{ss}$	3,71	2,09
3	$p_+ \rightarrow d_{-2}$	$\frac{2}{3}\hbar\omega_{eff} - \frac{25}{64}E_c^{ss}$	31,66	17,9

Mit dem Verhältnis von Coulombblockade des jeweiligen Niveaus zur Coulombblockade der  $s$ -Schale,  $E_c / E_c^{ss} = 1/2$  für  $p_+$  und  $E_c / E_c^{ss} = 11/16$  für  $p_-$  [Miller98] ergibt sich  $\hbar\omega_c$  für den untersten Energieast mit  $N = 4$  Elektronen entsprechend  $B_{c2}$  zu:

$$\hbar\omega_c = \left( \frac{11}{16} - \frac{1}{2} \right) E_c = \frac{3}{16} E_c. \quad (2.14)$$

Aus diesem Wert erhält man dann direkt  $B_{c2} = 2,09\text{T}$ . Ab  $B_{c3}$  wurde ein numerisches Verfahren zur Berechnung des kritischen Feldes herangezogen. Der sich

ergebende Wert von 17,9T liegt jedoch außerhalb des im Rahmen dieser Arbeit zugänglichen Bereichs.

Der physikalische Grund für die Zustandsänderungen kann folgendermaßen verstanden werden. Analog der Hund'schen Regel in der Atomphysik, ist es für die Besetzung der Elektronenzustände bei  $B = 0\text{T}$  zunächst energetisch günstiger zwei Elektronen im  $p$ -Zustand mit gleichem Spin zu haben, weil dadurch die Gesamtenergie durch den  $p$ - $p$  Austauschterm minimiert wird.

Für  $N = 4$  Elektronen geht der Grundzustand ab einem kritischen Magnetfeld  $B_{c2}$  von  $ssp\_p_+$  über in  $ssp\_p_-$ . Ab diesem Feld ist es für die  $p$ -Elektronen energetisch günstiger, jeweils  $p_-$ -Zustände zu besetzen, da der  $p_-$ -Zustand energetisch mit steigendem Magnetfeld abnimmt. Dadurch fällt zwar der Beitrag des Austauschterms bei der Minimierung weg, aber dies wird kompensiert durch eine Abnahme der Einteilchenenergien.

In der ersten Zeile der Tabelle 2.3 findet sich der Übergang für den  $N = 8$  Elektronen Grundzustand von  $ssp\_p_+p_-p_+d_{-2}d_{+2}$  nach  $ssp\_p_+p_-p_+d_{-2}d_{-2}$  der bei dem kritischen Feld  $B_{c1}$  auftritt.

Die abrupten Zustandsänderungen bei den kritischen Magnetfeldern äußern sich in Knicken in den Dispersionskurven im Energieniveaudiagramm, wie sie in Abb. 2.4 zu sehen sind.

Experimentell wurde die Gültigkeit der Hund'schen Regel beim Befüllen der Schalen bereits 1996 von Tarucha et al. an lithografisch definierten Quantenpunkten<sup>4</sup> nachgewiesen [Tarucha96]. Für Magnetfelder  $B < 0,4\text{T}$  ergaben sich Energiedifferenzen für das Abknicken der Energieäste gemäß der Hund'schen Regel von ungefähr  $0,7\text{meV}$  bei Quantisierungsenergien von  $\hbar\omega_0 = 3\text{meV}$ .

## 2.1.6 Berechnung der effektiven Masse

Aus der Aufspaltung zwischen dem zweiten und dritten p-Niveau (also dem vierten und fünften Elektron im Quantenpunkt) lässt sich mit Gl. (2.5) die effektive Masse  $m_e^*$  der Elektronen im Quantenpunkt berechnen. Die effektive Masse bezieht Bandstruktureffekte mit ein und gibt somit Hinweise auf das Einschlusspotenzial der Elektronen.

Für die Energiedifferenz zwischen dem Laden des 4. und 5. Elektrons gilt näherungsweise (siehe Gl. (2.5) und auch weiter unten):

$$\Delta E^{4-5} = \frac{1}{\lambda} e \Delta U_g^{4-5} = \hbar \omega_c, \quad (2.15)$$

---

<sup>4</sup> Die von Tarucha untersuchten vertikalen Quantenpunkte in Form einer runden Säule wurden realisiert durch trocken- und nasschemisches Ätzen einer Doppelbarrieren-Heterostruktur. Eingebettet ist der Quantenpunkt zwischen Source- und Drain-Kontakten, die aus dotierten Halbleiter schichten bestehen.

mit  $\hbar\omega_c = \hbar eB / m_e^*$ .

Das Bilden der Ableitung nach dem B-Feld ergibt:

$$\frac{\partial \Delta E^{4-5}}{\partial B} = \frac{\hbar e}{m_e^*}. \quad (2.16)$$

Die Aufspaltung zwischen zweitem und drittem p-Niveau ist annähernd linear im untersuchten Bereich, und somit kann durch Umstellen von Gl. (2.16) nach  $m_e^*$  die effektive Masse berechnet werden nach:

$$m_e^* \cong \frac{\hbar e}{\frac{\partial \Delta E^{4-5}}{\partial B}}. \quad (2.17)$$

Abweichungen von einer linearen Aufspaltung sind dabei für die verwendeten Magnetfeldstärken und den experimentell ermittelten Energiewerten kleiner als 0,5% und können vernachlässigt werden. Durch Auftragung der Energieaufspaltung der p-Zustände in Abhängigkeit des Magnetfelds ist es dann möglich, mit Hilfe der Steigung einer Ausgleichsgeraden die effektive Masse der Elektronen zu bestimmen.

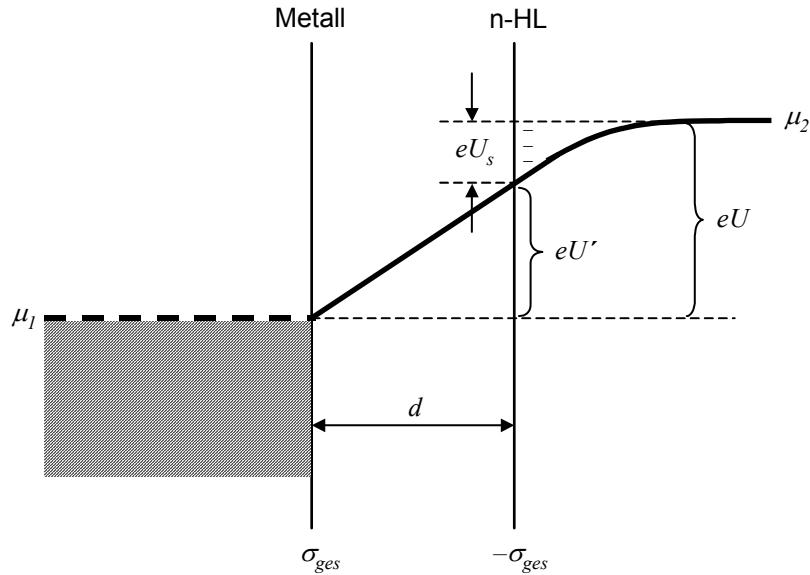
### 2.1.7 Die Quantenkapazität $C_q$

Für die Beschreibung des untersuchten Probensystems ist außer den aus der elementaren Elektrotechnik bekannten geometrischen Kapazitäten noch eine weitere Kapazitätsform notwendig, die so genannte Quantenkapazität  $C_q$ . Da deren Herkunft nicht so eingängig ist wie die der geometrischen Kapazitäten im untersuchten Probensystem, soll sie im Folgenden näher dargestellt werden. Die Quantenkapazität äußert sich bei den in dieser Arbeit durchgeführten Kapazitätsmessungen im Laden der Quantenpunkte mit Elektronen. Sie ist wichtiger Bestandteil des im nächsten Teilkapitel dargestellten Ersatzschaltbilds für das Probensystem und wird im Auswertungsteil dieser Arbeit ermittelt (vergl. Kapitel 4). Eine Formel für die Abschätzung von  $C_q$  wird in Anhang C gegeben.

Eingeführt wurde das Konzept der Quantenkapazität 1988 von Luryi bei der Beschreibung eines zweidimensionalen Elektronengases (2DEG) in einem Quantentopf [Luryi88]. Er argumentierte, dass im Gegensatz zu einer metallischen Platte, das 2DEG nicht völlig in der Lage sei, ein angelegtes elektrisches Feld abzuschirmen. Damit stellt sich das 2DEG als ein Kondensator mit der Kapazität  $C_q$  dar.

Im Folgenden wird eine Einführung der Quantenkapazität mittels eines Kondensatormodells gegeben.

Zur näheren Beschreibung betrachten wir zwei Elektroden einer Kondensatorstruktur, zwischen denen eine Spannung  $U$  angelegt wird. Die Elektroden sind, wie in Abb. 2.5 dargestellt, im Abstand  $d$  durch eine isolierende Schicht (mit Dielektrizitätskonstante  $\epsilon_r$ ) voneinander getrennt.



**Abbildung 2.5:** Schematische Darstellung zweier Elektroden (links Metall, rechts n-Halbleiter) einer Kondensatorstruktur, die durch eine isolierende Schicht der Dicke  $d$  getrennt sind und zwischen denen eine Spannung  $U$  anliegt. Eingezeichnet sind die Leitungsbandkante mit der entsprechenden Bandverbiegung und die elektrochemischen Potenziale  $\mu_1$  und  $\mu_2$ .

Die linke Elektrode besteht aus Metall, die rechte aus einem Halbleitermaterial, das schwach n-dotiert sei. Durch Anlegen einer Spannung  $U$  wird das elektrochemische Potenzial  $\mu_2$  um  $eU$  gegenüber  $\mu_1$  verschoben. Die Anzahl der Elektronen an der Oberfläche der rechten Elektrode wird um  $dN = D(E_F)eU_s$  erhöht, so dass ein Teil der Potenzialdifferenz dort abfällt (innerhalb der Abschirmlänge). Es gilt  $eU = eU' + eU_s$ , worin  $U_s$  die Spannung pro Flächeneinheit ist.

Die Definition der Gesamtkapazität  $C_{ges}$  wird vorgenommen als:

$$\frac{1}{C_{ges}} \equiv \frac{dU}{d\sigma_{ges}} = \frac{d(U' + U_s)}{d\sigma_{ges}} \quad (2.18)$$

Der geometrische Anteil bezogen auf die Oberflächenladungsdichte  $\sigma_{ges}$  an der linken Kondensatorplatte lautet:

$$\sigma_{ges} = \frac{\epsilon_r \epsilon_0}{d} U' . \quad (2.19)$$

Mit der Zustandsdichte pro Oberfläche  $D(E_F)$  ergibt sich die Oberflächenladungsdichte  $\sigma_{ges}$  auf der rechten Kondensatorplatte zu:

$$\sigma_{ges} = e dN = e \frac{dN}{dE} dE = e^2 D(E_F) U_s . \quad (2.20)$$

Damit folgt durch Einsetzen von Gl. (2.19) und (2.20) in Gl. (2.18) für die Gesamtkapazität:

$$\frac{1}{C_{ges}} = \frac{d}{\epsilon_r \epsilon_0} + \frac{1}{e^2 D(E_F)} \quad (2.21)$$

Der Kehrwert der Gesamtkapazität (pro Fläche) setzt sich also additiv zusammen aus den Kehrwerten der geometrischen Kapazität  $C_{geom} = \epsilon_r \epsilon_0 / d$  und einer **Quantenkapazität**  $C_q = e^2 D(E_F)$  für die rechte n-halbleitende Platte.

Die Eigenschaften des Elektronensystems im Festkörper entscheiden dabei, wie stark die Auswirkung der Quantenkapazität ist.

Im Fall von Metallen, wo viele Leitungselektronen zur Verfügung stehen, ist die Oberflächenkapazität der Elektroden groß, und die Gesamtkapazität ist somit ausschließlich gegeben durch die geometrische Kapazität.

Im Fall der Halbleiter dagegen sind weniger Leitungselektronen vorhanden, so dass die Kapazität  $C_q$  aufgrund der Verarmung oder Population des Leitungsbandes die Gesamtkapazität dominieren kann. Damit zeigen sich Quanteneffekte beim Laden des 2DEGs, bzw. auch bei den in dieser Arbeit untersuchten Quantenpunkten, die in eine Kondensatorstruktur eingebettet sind. Dabei ist die Kapazität gegeben durch

$$C_q = e^2 D(E_F) , \quad (2.22)$$

wobei  $D(E_F)$  die Zustandsdichte des 2DEGs beziehungsweise der Quantenpunkte ist.

Die Quantenkapazität  $C_q$  ist dabei eine Konsequenz aus dem Prinzip der Coulombblockade, welche einen zusätzlichen Energieaufwand fordert für das Füllen des Quantentopfes mit Elektronen und aus der Quantisierung, die das Überwinden einer Energielücke erfordert.

## 2.1.8 Ersatzschaltbild für die Probenstruktur

Mit Hilfe der im letzten Abschnitt eingeführten Quantenkapazität  $C_q$  wird nun die Herleitung eines Ersatzschaltbildes dargestellt, wie sie von [Luyken99b] vorgenommen worden ist. Mit diesem Schaltbild ist es in der Auswertung möglich, die Tunnelzeiten  $\tau$  der Elektronen, die zwischen Rückkontakt und Quantenpunkten hin- und her tunnen, zu bestimmen (siehe Kap. 4.2.2).

Der Äquivalentschaltkreis wird aus der Betrachtung der Ladungsbalance zwischen Gate und Rückkontakt hergeleitet. Im folgenden sollen die wichtigsten Schritte kurz aufgeführt werden.

Angenommen wird, dass die angelegte, sinusförmige Wechselspannung linear auf das System übertragen wird, d.h. die Ladungsträgerdichten im Rückkontakt ( $\sigma_B$ ) und in den Quantenpunkten ( $\sigma_D$ ) ebenfalls eine sinusförmige Abhängigkeit zeigen.

Für den in der Struktur fließenden Strom, der proportional zur gemessenen Kapazität ist, gilt [Luyken99b]:

$$j(t) = \frac{d}{dt}(\sigma_B + \sigma_D). \quad (2.23)$$

Die Beschreibung des Ladungstransfers erfolgt über eine Zerfallsgleichung mit der Tunnelzeit  $\tau$ :

$$\frac{d\sigma_D}{dt} = -\frac{eD\Delta\mu}{\tau} = -\left(\frac{\Delta\sigma_D - eD\Delta\Phi}{\tau}\right) \quad (2.24)$$

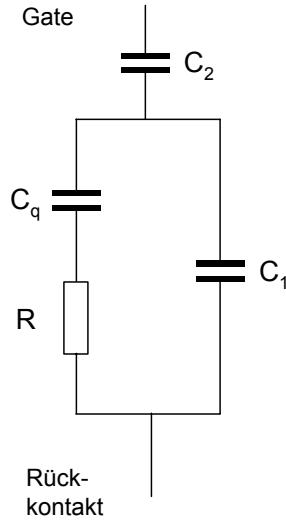
Dabei ist  $D$  die Zustandsdichte in den Quantenpunkten,  $\Delta\mu$  der Unterschied im elektrochemischen Potenzial zwischen Rückkontakt und Quantenpunkten und  $\Delta\Phi$  ist der Potenzialabfall zwischen Rückkontakt und Quantenpunkten.

Nach einer hier nicht aufgeführten Rechnung ergibt sich dann für den Strom  $j(t)$ :

$$j(t) = \frac{d}{dt}(\sigma_B + \sigma_D) = i\omega e^{i\omega t} \Delta U C_2 \left( \frac{C_1 + \frac{C_q}{1+e^{i\omega t}}}{C_1 + C_2 + \frac{C_q}{1+e^{i\omega t}}} \right) \quad (2.25)$$

mit den geometrischen Kapazitäten  $C_1 = \epsilon_r \epsilon_0 / d_1$  und  $C_2 = \epsilon_r \epsilon_0 / d_2$  (normiert auf die Fläche und den Abständen  $d_1$  und  $d_2$  aus Abb. 2.3 entsprechend) und der Quantenkapazität  $C_q = e^2 D$ .

Der Klammerausdruck in Gl. (2.25) ergibt das folgende Ersatzschaltbild:



**Abbildung 2.6:** Ersatzschaltbild für die Rechnung nach Gl. (2.25) mit den geometrischen Kapazitäten  $C_1$  und  $C_2$ , der Quantenkapsitität  $C_q$  und dem Tunnelwiderstand  $R$ . In der Kondensatorstruktur führt der obere Teil zur Gateelektrode und der untere Teil zum Rückkontakt. Typische Werte für die Kapazitäten der untersuchten Proben sind beispielsweise  $C_1 = 130\text{ pF}$  und  $C_2 = 20\text{ pF}$ .

Dabei ist die Tunnelzeit  $\tau = RC_q$ . Der Widerstand  $R$  („Tunnelwiderstand“) wird dabei aus Überlegungen in das Schaltbild eingeführt, welche die Abhängigkeit der Tunnelmechanismen von der angelegten Spannung berücksichtigen. Legt man eine Wechselspannung der Frequenz  $f$  an die in Abb. 2.6 gezeigte Schaltung an, so können folgende Grenzfälle unterschieden werden:

### 1. niedrige Frequenzen

Für niedrige Frequenzen wird der Stromfluss nur limitiert durch die Quantenkapsitität  $C_q$ , der Widerstand  $R$  ist vernachlässigbar. Damit bekommt das Schaltbild einen rein kapazitiven Charakter und die Phasenlage der Schaltung ist bei  $90^\circ$  maximal.

### 2. mittlere Frequenzen

Im Bereich der mittleren Frequenzen limitieren sowohl  $R$  als auch  $C_q$  den Stromfluss. Die Phase verringert sich gegenüber ihrem Maximalwert.

### 3. hohe Frequenzen

Bei hohen Frequenzen wird der Stromfluss auf dem linken Zweig des Schaltbildes von  $R$  limitiert, der Strom wird dann über den rechten Zweig fließen. Damit liegt wieder ein praktisch rein kapazitiver Kreis vor, mit einer Phasenlage bei (idealerweise)  $90^\circ$ .

## 2.2 Impedanzspektroskopie

Die Impedanzspektroskopie ist eine wichtige und oft verwendete Untersuchungsmethode in der Elektrochemie und der Materialwissenschaft zur Charakterisierung von sowohl flüssigen als auch festen Systemen.

Es handelt sich dabei um eine Messmethode, bei der die komplexen Widerstände eines Systems in Abhängigkeit der Frequenz einer angelegten Wechselspannung ermittelt werden (vergl. auch Kap. 3.8). Allgemein ist zur Impedanzspektroskopie außer dem Anlegen einer Wechselspannung auch eine andere gezielte Störung des zu untersuchenden Systems möglich, wie z.B. durch Temperatursprünge oder Schallwellen.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde die Impedanzspektroskopie als zusätzliche Messmethode zur Charakterisierung der Quantenpunkt-Proben genutzt. Ziel war es, die mit dieser Methode erhältliche makroskopische Information über das Probensystem so auszuwerten, dass man Rückschlüsse auf die Modellierung des Systems ziehen kann. Insbesondere das in Kapitel 2.1.8 dargestellte Ersatzschaltbild sollte auf seine Übereinstimmung mit den Impedanzdaten hin geprüft werden.

### 2.2.1 Modellierung in der Impedanzspektroskopie

Bei der Impedanzmessung wird allgemein das zu untersuchende Probenmaterial zwischen die Elektroden einer Kondensatorstruktur eingebracht. Die dann an die Elektroden angelegte gezielte Störung, beispielsweise eine Spannung oder ein Strom, resultiert dann in einem zu messenden Antwortsignal (ein resultierender Strom oder eine resultierende Spannung in der obigen Reihenfolge). Üblich ist es, Zeitinvarianz anzunehmen und Eigenschaften und Abhängigkeiten des Probensystems auf Variablen wie Druck, Temperatur oder elektrischer Spannung zu bestimmen.

Diese Messmethode bietet sich bei dem in dieser Arbeit vorliegenden Probensystems in geeigneter Weise an, da, wie in Kapitel 2.1.4 über die Coulombblockade bereits dargestellt wurde, die Quantenpunkte auch für die Kapazitätsspektroskopie in eine Kondensatorstruktur eingebaut werden. Es ist also möglich, das Probensystem ohne zusätzliche Präparation der Impedanzmessung zugänglich zu machen. Von den oben erwähnten Messvarianten werden hier konkret das Anlegen einer Wechselspannung inklusive einer Gleichspannung in Abhängigkeit der Frequenz genutzt, um die Impedanzdaten zu ermitteln.

Hat man die Messdaten ermittelt, so besitzt man Informationen über den Gesamtcharakter des Systems, so dass für die mikroskopische Analyse noch die Verarbeitung der Daten in Form von Modellen notwendig ist.

Es lassen sich drei Modellierungsgrade der Systeme unterscheiden [Macdonald87]:

### 1. Mikroskopische Modelle

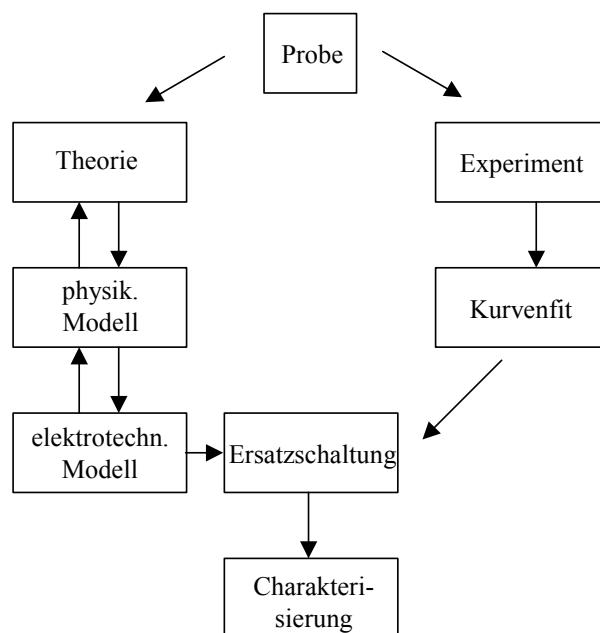
Diese repräsentieren die fundamentalste Möglichkeit der Charakterisierung, bei der die individuellen Bewegungen der im System vorhandenen Ladungsträger beschrieben werden sollen. Die Vielzahl der mikroskopischen Prozesse führt zu einem elektrischen Gesamtverhalten des Systems.

### 2. Modelle des Kontinuums

Hier betrachtet man das System, in dem sich die Ladungsträger bewegen, als ein kontinuierliches Medium, wobei der Ladungstransport durch Differentialgleichungen beschrieben wird. Der Ladungstransfer über Zwischenschichten hinweg liefert dabei die Nebenbedingungen zum Lösen der Differentialgleichungen.

### 3. Äquivalentschaltkreise

Dies ist die in dieser Arbeit am meisten interessierende Modellierungsmöglichkeit. Die Verwendung von hypothetischen Ersatzschaltkreisen erlaubt die Beschreibung des Antwortverhaltens eines Systems auf eine Reihe von äußeren Signalen.



**Abbildung 2.7:** Flussdiagramm für die Messung und Auswertung eines Probensystems mittels der Impedanzspektroskopie

Abb. 2.7 zeigt ein Flussdiagramm für die Abhängigkeiten bei der Charakterisierung eines Probensystems. Auf der linken Seite findet sich der Theorieast, bei welchem sich durch die Entwicklung eines physikalischen Modells eine elektrotechnische Vorstellung in Form eines Ersatzschaltbildes darstellen lässt. Auf der anderen Seite führt das Impedanzexperiment über die Messwerte, für die in der

Auswertung ein „Kurvenfit“ durchgeführt wird, ebenfalls zur Charakterisierung des Systems über Ersatzschaltbild. Dabei werden sich natürlich beide Seiten gegenseitig beeinflussen, indem das physikalische Modell Hilfestellung bei der Auswertung der experimentellen Daten gibt und andererseits die Auswertung Veränderungen bezüglich der Modellvorstellung ergeben kann.

## 2.2.2 Frequency-Domain-Methode

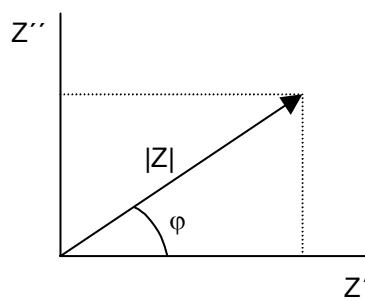
Die **Frequency-Domain-Methode**<sup>5</sup> ist eine Messmethode in der Impedanzspektroskopie, bei der die Frequenz der angelegten Wechselspannung in einem bestimmten Bereich variiert wird. Gemessen wird dann das frequenzabhängige Impedanzsignal der Probe.

Die **Impedanz  $Z$**  ist eine komplexe Größe, weil sich das ausgegebene Signal gegenüber dem angelegten Signal sowohl in der Amplitude als auch der Phase ändern kann. Deswegen lässt sich die Impedanz als der komplexe Wechselstromwiderstand darstellen als<sup>6</sup>:

$$Z = Z' + iZ'' = |Z|e^{i\varphi} \quad (2.26)$$

$$|Z| = \sqrt{(Z')^2 + (Z'')^2} \quad (2.27)$$

$$\varphi = \arctan(Z'' / Z') \quad (2.28)$$



**Abbildung 2.8:** Zeigerdiagramm mit der komplexen Impedanz als Vektor, dessen Länge der Betrag von  $Z$  ist, und der mit der reellen Achse den Winkel  $\varphi$  einschließt.

<sup>5</sup> deutsch: Frequenzbereich-Methode

<sup>6</sup> die verwendete Schreibweise folgt der Notation von [Macdonald87], bei der der Realteil als  $\text{Re}(Z)=Z'$  und der Imaginärteil als  $\text{Im}(Z)=Z''$  bezeichnet wird; für andere komplexe Größen gilt entsprechendes.

Die zum Impedanzvektor gehörenden Größen Betrag  $|Z|$  und Phasenwinkel  $\varphi$  sind in Abb. 2.8 in der komplexen Ebene dargestellt.

Weitere wichtige, in der Impedanzspektroskopie betrachtete Größen sind die komplexe **dielektrische Permittivität  $\varepsilon$**  und die komplexe **Modulus-Funktion  $M$** :

$$\varepsilon = \varepsilon' + i\varepsilon'' \quad (2.29)$$

$$M = M' + iM''. \quad (2.30)$$

Dabei besteht zwischen den Größen folgender reziproker Zusammenhang:

$$M = 1/\varepsilon. \quad (2.31)$$

Mit der Leitfähigkeit  $\sigma_l = l / A|Z|$  lässt sich die komplexe dielektrische Funktion  $\varepsilon$  darstellen als:

$$\varepsilon = \varepsilon' + i \frac{\sigma_l}{\varepsilon_0 \omega} = \varepsilon' + i \frac{l}{\varepsilon_0 \omega A |Z|}. \quad (2.32)$$

Auswertungen des Modulus  $M = 1/\varepsilon$  erweisen sich in der Impedanzspektroskopie als vorteilhaft, da wegen

$$M = i\omega C_0 Z \quad (2.33)$$

eine frequenzgewichtete Proportionalität zwischen  $M$  und der Impedanz  $Z$  besteht, wobei  $C_0 = \varepsilon_0 A_M / l_M$  die bekannte **Leerkapazität** der Messzelle ist mit Elektrodenfläche  $A_M$  und Elektrodenabstand  $l_M$ .

Tabelle 2.4 zeigt nach [Macdonald87] die Beziehungen zwischen den in der Impedanzspektroskopie betrachteten Größen, Impedanz  $Z$ , Admittanz  $Y$ , Modulus  $M$  und Permittivität  $\varepsilon$ . Durch Messung von Realteil  $Z'$  und Imaginärteil  $Z''$  der Impedanz können alle anderen Größen durch die Zusammenhänge in Tab. 2.4 berechnet werden. Dabei kann die Betrachtung jeder der vier dargestellten Funktionen in der Auswertung der Daten sinnvoll sein, weil sie jeweils unterschiedliche Frequenzgewichtungen zeigen.

So sind oftmals Details in der reinen Impedanzauftragung im hoch- oder niedrfrequenten Bereich nicht aufzulösen; in diesen Fällen hilft die Auswertung der komplexen Modulusfunktion weiter, da sie (wie oben dargestellt) eine Gewichtung der Frequenz enthält und so die Kurveneigenschaften für die extremen Frequenzbereiche besser aufgelöst werden können.

**Tabelle 2.4:** Beziehungen zwischen den Impedanzfunktionen  
Impedanz  $Z$ , Admittanz  $Y$ , Modulus  $M$  und Permittivität  $\varepsilon$

	Impedanz $Z$	Admittanz $Y$	Modulus $M$	Permittivität $\varepsilon$
$Z$	-	$Z' = \frac{Y'}{Y'^2 + Y''^2}$ $Z'' = -\frac{Y''}{Y'^2 + Y''^2}$	$Z' = \frac{M''}{\omega C_0}$ $Z'' = -\frac{M'}{\omega C_0}$	$Z' = \frac{\varepsilon''}{\omega C_0 (\varepsilon'^2 + \varepsilon''^2)}$ $Z'' = -\frac{\varepsilon'}{\omega C_0 (\varepsilon'^2 + \varepsilon''^2)}$
$Y$	$Y' = \frac{Z'}{Z'^2 + Z''^2}$ $Y'' = -\frac{Z''}{Z'^2 + Z''^2}$	-	$Y' = \frac{\omega C_0 M''}{M'^2 + M''^2}$ $Y'' = \frac{\omega C_0 M'}{M'^2 + M''^2}$	$Y' = \omega C_0 \varepsilon''$ $Y'' = \omega C_0 \varepsilon'$
$M$	$M' = -\omega C_0 Z''$ $M'' = \omega C_0 Z'$	$M' = \frac{\omega C_0 Y''}{Y'^2 + Y''^2}$ $M'' = \frac{\omega C_0 Y'}{Y'^2 + Y''^2}$	-	$M' = \frac{\varepsilon'}{\varepsilon'^2 + \varepsilon''^2}$ $M'' = \frac{\varepsilon''}{\varepsilon'^2 + \varepsilon''^2}$
$\varepsilon$	$\varepsilon' = -\frac{Z''}{\omega C_0 (Z'^2 + Z''^2)}$ $\varepsilon'' = \frac{Z'}{\omega C_0 (Z'^2 + Z''^2)}$	$\varepsilon' = \frac{Y''}{\omega C_0}$ $\varepsilon'' = \frac{Y'}{\omega C_0}$	$\varepsilon' = \frac{M'}{M'^2 + M''^2}$ $\varepsilon'' = -\frac{M''}{M'^2 + M''^2}$	-
			$M = i\omega C_0 Z$	$M = 1/\varepsilon$

In den letzten Jahrzehnten fanden zunehmend so genannte **Frequency Response Analyzer** (FRA) Verbreitung bei der Impedanzmessung. Das im Messaufbau in Kap. 3.8.3 eingesetzte Messgerät *Solartron SI 1255* ist ein solcher FRA.

Das Funktionsprinzip eines solches Geräts besteht in der Korrelation des gemessenen Probensignals, das hier allgemein mit  $S$  bezeichnet sei, mit zwei synchronen Referenzsignalen, wovon das eine in Phase mit der gezielten Sinus-Störung (der Wechselspannung  $dU$ ) ist und das andere um  $90^\circ$  dazu phasenverschoben. Das Resultat wird anschließend über eine Anzahl von Perioden der Sinusfunktion integriert.

Harmonische Anteile des Antwortsignals, die aus der nichtlinearen Beziehung zwischen Spannung und Strom stammen, werden durch die Korrelation unterdrückt und der Rauschanteil wird minimiert durch die Mittelung über mehrere Perioden. Damit können in Bezug auf Rauschen und Harmonische sehr kleine Signale gemessen werden.

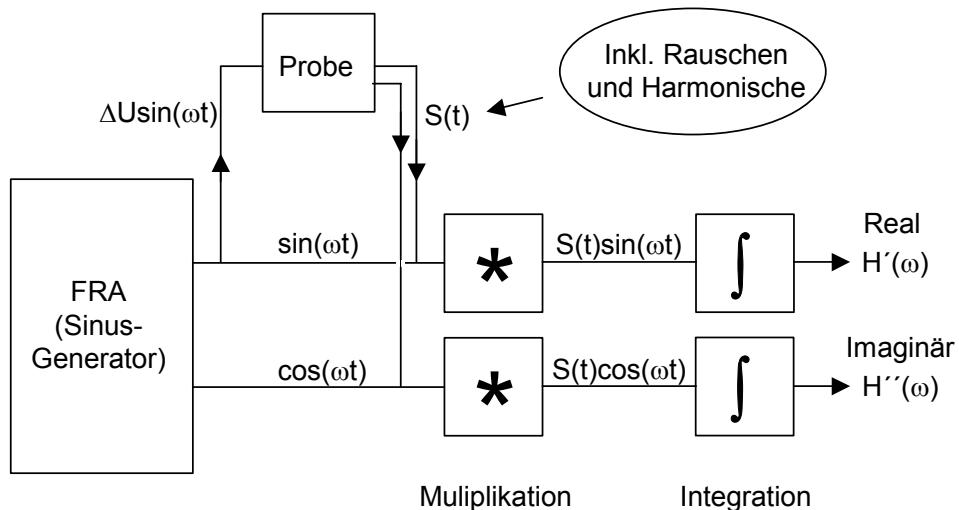
Die vom FRA erzeugte Wechselspannung  $dU(t)$  habe die Form

$$dU(t) = \Delta U \sin(\omega t), \quad (2.34)$$

mit der Amplitude  $\Delta U$ . Sie erzeugt im Probensystem ein Stromsignal  $S(t)$ , welches dargestellt werden kann als

$$S(t) = |K(\omega)|\Delta U \sin[\omega t + \varphi(\omega)] + \sum_m A_m \sin(m\omega t - \varphi_m) + N_r(t). \quad (2.35)$$

Der erste Term der rechten Seite von Gl. (2.35) ist die so genannte fundamentale Komponente mit  $\varphi = \arctan(K''/K')$  und der **Transferfunktion**<sup>7</sup>  $K(\omega)e^{i\varphi(\omega)}$ . Die Summe im zweiten Term umfasst alle Harmonischen mit Laufindex  $m$  und der letzte Term  $N_r(t)$  beinhaltet die Rauschkomponenten.



**Abbildung 2.9:** Prinzipielle Arbeitsweise eines FRA. Das Probensignal  $S(t)$  wird korreliert mit zwei synchronen Referenzsignalen, vergleichbar mit dem Prinzip der Lock-In Verstärkung.

Wie in Abbildung 2.9 schematisch dargestellt, werden dann die unerwünschten Signaleanteile durch Multiplikation mit der jeweiligen Referenzwelle und anschließender Integration herausgefiltert. Diesen Schritt nennt man **Korrelation**. Das Ergebnis besteht aus einem realen Anteil  $H'(\omega)$  und einem imaginären Anteil  $H''(\omega)$  der Form

---

<sup>7</sup> Die Transferfunktion  $K(\omega)$  entspricht bei der in dieser Arbeit verwendeten Messmethode (Anlegens einer Spannung  $dU$  und Messen des Stromsignals  $S$ ) dem Leitwert  $Y$ .

$$H'(\omega) = \frac{1}{T} \int_0^T S(t) \sin(\omega t) dt \quad (2.36)$$

$$H''(\omega) = \frac{1}{T} \int_0^T S(t) \cos(\omega t) dt \quad (2.37)$$

Durch Einsetzen von Gl. (2.34) und (2.35) in (2.36) und (2.37) erhält man

$$\begin{aligned} H'(\omega) &= |K(\omega)| \Delta U \frac{1}{T} \int_0^T \sin[\omega t + \varphi(\omega)] \sin(\omega t) dt \\ &\quad + \frac{1}{T} \int_0^T \sum_m A_m \sin(m\omega t - \varphi_m) \sin(\omega t) dt \\ &\quad + \frac{1}{T} \int_0^T N_r(t) \sin(\omega t) dt \end{aligned} \quad (2.38)$$

$$\begin{aligned} H''(\omega) &= |K(\omega)| \Delta U \frac{1}{T} \int_0^T \sin[\omega t + \varphi(\omega)] \cos(\omega t) dt \\ &\quad + \frac{1}{T} \int_0^T \sum_m A_m \sin(m\omega t - \varphi_m) \cos(\omega t) dt \\ &\quad + \frac{1}{T} \int_0^T N_r(t) \cos(\omega t) dt \end{aligned} \quad (2.39)$$

Wird die Integration über  $N_f$  Perioden von  $dU$  ausgeführt, so beträgt die Rauschfilterung [Gabrielli81]

$$\frac{\Delta f}{f_1} = \frac{1}{N_f} \quad (2.40)$$

mit der Bandbreite  $\Delta f$  und der Messfrequenz  $f_1$ . Somit kann durch Wahl langer Integrationszeiten das Rauschen effektiv herausgefiltert werden. Bei perfekter Rauschunterdrückung würden die jeweils dritten Integralterme in Gl. (2.38) und (2.39) verschwinden.

Bezüglich der Unterdrückung der harmonischen Anteile können die Gl. (2.38) und (2.39) in eine Reihe entwickelt und dann über ganzzahlige Vielfache von  $2\pi$  integriert werden, was hier nicht dargestellt werden soll. Das Resultat für die integrierten Signale lautet

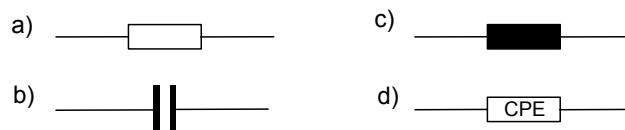
$$\begin{aligned} H'(\omega) &= |K(\omega)| \Delta U \cos[\varphi(\omega)] \\ &= \Delta U \cdot K' \end{aligned} \quad (2.41)$$

$$\begin{aligned} H''(\omega) &= |K(\omega)| \Delta U \sin[\varphi(\omega)] \\ &= -i \Delta U \cdot K''. \end{aligned} \quad (2.42)$$

Die Messung besteht dann in dem Anlegen einer Folge von Wechselspannungsfrequenzen, die ein charakteristisches Antwortverhalten der Probe hervorrufen, wobei sowohl Amplituden- als auch Phasenänderung der Signale ermittelt werden. Über die Proportionalitäten der Messsignale  $H'$  und  $H''$  zur Transferfunktion  $K$  (d.h. hier dem Leitwert  $Y$ ) in Gl. (2.41) und (2.42), lassen sich dann direkt Real- und Imaginärteil der Probenimpedanz berechnen. Vorteile der FRAs sind eine hohe Präzision und die große Bandbreite der möglichen Messfrequenzen ( $10^{-4}$  bis  $10^7$  Hz).

### 2.2.3 Äquivalentschaltkreise

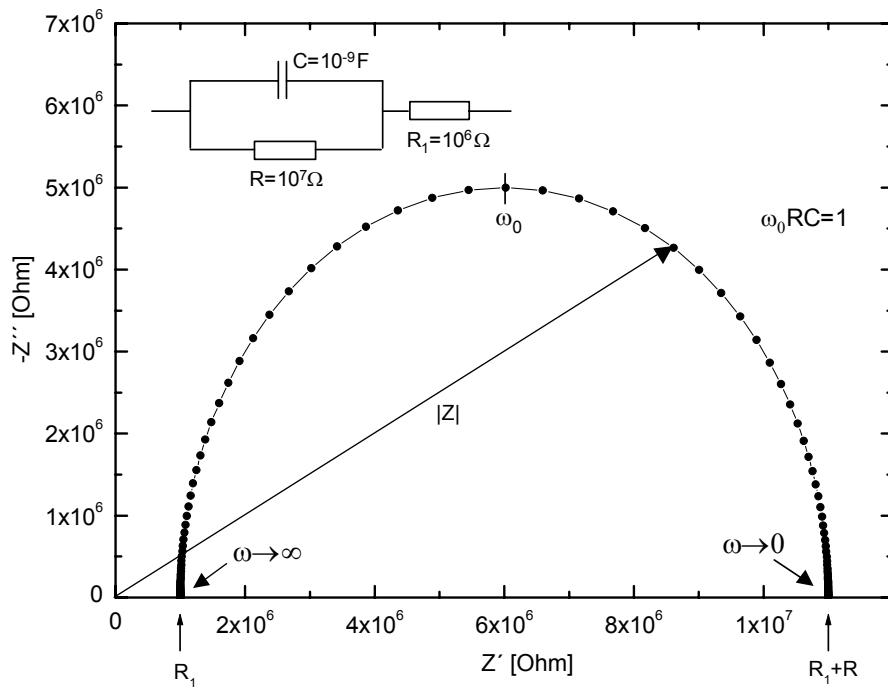
Die Auswertung der Daten kann in der Impedanzspektroskopie vorgenommen werden, indem man einen Äquivalentschaltkreis definiert, der möglichst viel vom bereits über das Probensystem vorhandenen Verständnis mit einbezieht. Für den Schaltkreis können verschiedene Schaltelemente verwendet werden, wie z.B. Widerstände, Kondensatoren, Induktivitäten, aber auch nicht reale Elemente, wie beispielsweise das Constant Phase Element, welches weiter unten näher erläutert wird. Abb. 2.10 zeigt eine Übersicht der Schaltsymbole. Mit dieser Definition ist es dann möglich, die gemessenen, makroskopischen Effekte durch analytisch zu berechnende Bauteile zu beschreiben. Das Probensignal ist dabei ein Zusammenwirken der Beiträge der einzelnen Schaltelemente.



**Abbildung 2.10:** Schaltsymbole, die für die Definition eines Äquivalentschaltkreises verwendet werden können. a) Widerstand b) Kapazität c) Induktivität d) Constant Phase Element

Zur Einführung in die Impedanzauswertung ist in Abb. 2.11 eine typische Auftragung für einen (idealen) Schaltkreis gezeigt, der aus einer Parallelschaltung eines Widerstands  $R$  mit einem Kondensator  $C$  (RC-Glied) und einem dazu in Reihe geschalteten Widerstands  $R_I$  besteht (siehe Einsatz in Abb. 2.11). Das Diagramm zeigt eine Auftragung in der komplexen Ebene (der negative Imaginärteil der Impedanz  $-Z''$  über dem Realteil der Impedanz  $Z'$ ).

Für das gezeigte Schaltbild ergibt sich in diesem Diagramm der dafür typische Halbkreis, wobei der Betrag der Impedanz die Länge des Vektorpfeils auf den jeweiligen Messpunkt ist und der linke Teil den Bereich der hohen Frequenzen darstellt.



**Abbildung 2.11:** Auftragung der Impedanz in der komplexen Ebene für das in der Einsatzzeichnung gezeigte Schaltbild.

Der in Reihe geschaltete Widerstand bewirkt eine Verschiebung des Halbkreises auf der Abszisse um den Betrag von  $R_1$ , das niederfrequente Ende schneidet also die Abszisse bei  $R_1+R$ . Aus dem Maximum des Halbkreises kann die Resonanzfrequenz  $\omega_0$  des RC-Glieds berechnet werden, da  $Z''$  für  $\omega_0 RC=1$  maximal wird.

### Constant Phase Element

Ein besonderes Schaltelement, welches auch in dieser Arbeit bei der Auswertung der Impedanzdaten Verwendung findet, ist das so genannte **Constant Phase Element** (CPE), das im Folgenden näher beschrieben werden soll.

Es handelt sich dabei um ein nicht reales Schaltelement, welches nichtsdestotrotz häufig in der Praxis angewandt wird, um das Verhalten von realen Probenystemen zu charakterisieren. Das Konzept des CPEs basiert auf der Tatsache, dass mikroskopische Materialeigenschaften selbst oftmals in einer Verteilung vorliegen. So bewirken ortsabhängige Defekte und Inhomogenitäten in realen Systemen je nach Elektrodenposition einen „verteilten“ Kapazitäts- und Widerstands-

beitrag. Die gemessene Impedanzinformation stellt jedoch eine Mittelung dieser verteilten Beiträge dar. Das CPE kann dieser Mittelung Rechnung tragen, da es als verteiltes Impedanzelement die Eigenschaften eines idealen Widerstands oder Kondensators erweitert.

Der Vorteil eines CPEs liegt darin, dass es sich je nach Wahl der Parameter entweder wie ein reales Element (Widerstand, Kondensator etc.) oder wie eine Mischform derselben verhält.

Die Impedanzfunktion eines CPEs lautet:

$$Z = \frac{A}{(i\omega)^\alpha}. \quad (2.43)$$

Dabei sind  $A$  und  $\alpha$  zwei bei der Auswertung wählbare Parameter, von denen der elektrotechnische Charakter des CPEs abhängt.

- Für  $\alpha = 0$  verhält sich das CPE wie ein reiner Widerstand, die Frequenzabhängigkeit verschwindet und der Phasenwinkel beträgt  $0^\circ$ . Der Parameter  $A$  entspricht dem Widerstandswert, also  $A = R$ .
- Für  $\alpha = 1$  ist das CPE ein Kondensator mit Phasenwinkel  $90^\circ$ . Der Parameter  $A$  entspricht dem Reziproken des Kapazitätswerts, also  $A = 1 / |C|$ .
- Ist  $\alpha = -1$ , so verhält sich das CPE wie eine Induktivität, d.h. der Phasenwinkel beträgt  $-90^\circ$ , und der Parameter  $A$  ist gleich dem Induktivitätswert, also  $A = L$ .

Auch alle Werte für  $\alpha$  zwischen  $-1$  und  $+1$  können vorkommen und damit Mischformen der obigen Elemente ergeben. Elektrotechnisch sinnlos sind jedoch Werte außerhalb dieses Bereichs. Wenn sich beim Auswerten der Daten solche Werte ergeben sollten, sind die Startwerte und das Schaltbild selbst zu überprüfen.

Der Parameter  $A$  kann sinnvolle Werte zwischen  $1$  und  $10^{12}$  annehmen, die je nach Wert für  $\alpha$  einer anderen physikalischen Einheit entsprechen (siehe oben).

### Motivation

Die Impedanzspektroskopie wird in dieser Arbeit als eine der Kapazitätsspektroskopie verwandten Methode zur Untersuchung von InAs-Quantenpunkten benutzt. Insbesondere soll das in Kap. 2.1.8 dargestellte Ersatzschaltbild für die verwendete Probengeometrie mit den Impedanzdaten verglichen werden.

Während die in Kap. 3.7 dargestellte Kapazitätsspektroskopie Aufschluss über den Gesamtcharakter des Ersatzschaltbildes gibt, soll dabei die Impedanzspektroskopie verwendet werden, um genauere Aussagen über die einzelnen Elemente zu machen, insbesondere über die Quantenkapazität  $C_q$  und den Tunnelwiderstand  $R$ .

Die Idee dabei ist es, mit der oben dargestellten Frequency-Domain-Methode Messungen durchzuführen, bei denen ein fester Gleichspannungswert und eine Wechselspannung der Amplitude  $\Delta U$  eingestellt werden. Die Frequenz der Wechselspannung wird dann vom Impedanzspektrometer in einem weiten Bereich durchfahren (über bis zu zehn Dekaden).

Die ermittelten Impedanzdaten sollen dann zur Auswertung eines Äquivalentschaltkreises herangezogen werden.

# Kapitel 3

## Probenpräparation und Messmethoden

Dieses Kapitel beschäftigt sich mit der Herstellung und Präparation der in dieser Arbeit untersuchten Probenstrukturen. Zuerst wird das Wachstum von nulldimensionalen Elektronensystemen diskutiert und anschließend die weitere Probenpräparation dargestellt, mit der die Proben für die Messung präpariert werden. Es wird ein Überblick über die verwendeten Schichtstrukturen gegeben und Abbildungen gezeigt, die durch rasterkraftmikroskopische Messungen gewonnen wurden. Des weiteren ist der prinzipielle Messaufbau für die Kapazitäts- und Impedanzmessungen erläutert.

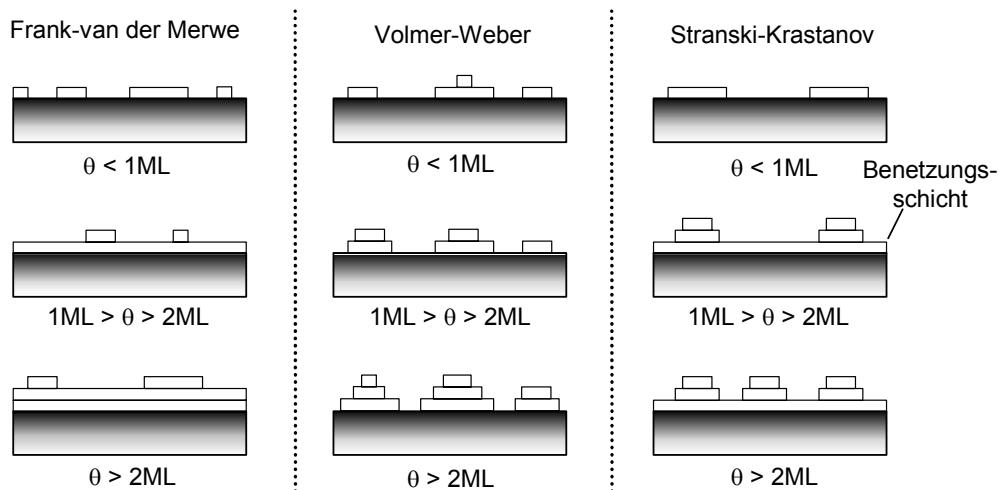
### 3.1 Wachstumsmodi

Beim heteroepitaktischem Wachstum eines Materials A auf ein Material B hängt die Morphologie der aufgewachsenen Schicht ab von den Grenzflächenspannungen und Grenzflächenenergien zwischen den Materialien. Vernachlässigt man die Diffusion von Teilchen und chemische Reaktionen, so lässt sich die Morphologieausbildung in drei Modi unterteilen, Frank-van der Merwe-, Volmer-Weber- und Stranski-Krastanov-Wachstum. Abb. 3.1 zeigt die drei Modi in Abhängigkeit des Bedeckungsparameters  $\theta$ .

Beim **Frank-van der Merwe**-Wachstum bilden sich zweidimensionale Schichten des Materials A auf B aus, d.h. ein lagenweises Wachstum mit jeweils abgeschlossenen Monolagen sorgt für nahezu atomar glatte Oberflächen.

Im **Volmer-Weber**-Wachstum dagegen bilden sich dreidimensionale Inseln aus, welche mit steigendem Angebot von A sowohl lateral als auch in Wachstumsrichtung vergrößert werden.

Das **Stranski-Krastanov**-Wachstum kann man als eine Mischform der beiden obigen Modi verstehen. Zunächst bildet sich eine zweidimensionale Schicht aus dem Material A, welche als **Benetzungsschicht** (engl. **wetting layer**) bezeichnet wird und aus einigen Monolagen bestehen kann. Auf dieser Benetzungsschicht wachsen dann dreidimensionale Inseln, analog dem Volmer-Weber-Wachstum. Die Monodispersität der Inseln hängt dabei von der Materialkombination ab.



**Abbildung 3.1:** Schematische Darstellung der drei Wachstumsmodi Frank-van der Merwe, Volmer-Weber und Stranski-Krastanov in Abhängigkeit des Bedeckungsparameters  $\theta$ .

Die in dieser Arbeit untersuchten InAs-Quantenpunkte wachsen auf der GaAs-Schicht nach dem Stranski-Krastanov-Modus auf. Die beim InAs-Wachstum entstehende Verspannung relaxiert ab einer bestimmten Schichtdicke durch Ausbildung von Inselstrukturen, wobei trotz der Oberflächenvergrößerung ein energetisch günstigerer Zustand erreicht wird.

Das Wachstum erfolgt gitterfehlangepasst, wobei InAs mit  $a_{\text{InAs}} = 6,04\text{\AA}$  eine um 6,5% größere Gitterkonstante als GaAs hat ( $a_{\text{GaAs}} = 5,65\text{\AA}$ ). Das Materialsystem InAs/GaAs ergibt durch das Wechselspiel von Verspannungs-, Oberflächen- und Grenzflächenenergien bei gleichbleibenden Wachstumsbedingungen stets die gleichen Inselgrößen. Die Monodispersität der Inselstrukturen ist wiederum Voraussetzung für die in diesem Kapitel vorgestellte Spektroskopie der Quantenpunkte.

Dagegen bildet sich zwar beim Volmer-Weber-Wachstum keine Benetzungsschicht, was für die Spektroskopie ebenfalls von Vorteil wäre<sup>1</sup>, doch die Inselgrö-

<sup>1</sup> in der Regel wird bei der Kapazitätsspektroskopie bei steigender positiver Gleichspannung nach den vier Niveaus der p-Schale nur noch die Benetzungsschicht spektroskopiert. Die nächsthöheren d-Niveaus sind daher nicht sichtbar und werden nur bei Anlegen eines hohen Magnetfeldes der Messung zugänglich. Vergleiche dazu auch Abb. 4.1.

ßen fallen für andere Materialkombinationen bei diesem Wachstumsmodus, wie in Abb. 3.1 dargestellt, zu unterschiedlich aus. Beim Stranski-Krastanov-Wachstum von InAs auf GaAs ändert sich die Form der Inseln mit weiterem InAs-Materialangebot fast nicht mehr, und es erhöht sich lediglich die Inseldichte [Schmidt97].

## 3.2 Probenwachstum

Alle in dieser Arbeit untersuchten Proben enthalten selbstorganisiert gewachsene InAs-Quantenpunkte und wurden per Molekularstrahlepitaxie (MBE)<sup>2</sup> von Gilberto Medeiros-Ribeiro und Jorge Garcia an der University of California, Santa Barbara und von Dirk Reuter und Peter Schafmeister an der Ruhr-Universität Bochum gewachsen. Die Santa Barbara Proben haben die Nomenklatur „MC XY“ („Magneto-Capacitance Nr. XY“) und die untersuchten Bochumer Proben beginnen in der Nummerierung bei „11059“.

Das Wachstum der InAs-Quantenpunkte auf GaAs erfolgt im oben beschriebenen Stranski-Krastanow-Modus, bei dem sich beim Abscheiden von InAs auf GaAs zunächst eine Benetzungsschicht ausbildet. Ab einer kritischen Schichtdicke von 1,6 Monolagen entstehen dann die InAs-Inselstrukturen, deren Dichte und Größe entscheidend von den Wachstumsparametern wie abgeschiedene InAs-Menge, Wachstumstemperatur und As-Hintergrunddruck abhängt. Umgeben werden die Inseln dann mit einer weiteren Schicht GaAs.

Die Proben aus Santa Barbara wurden an einer *Varian* GEN-II MBE-Anlage auf [100] orientiertem GaAs-Substrat gewachsen. Einige dieser Proben wurden ohne Probenrotation gewachsen, so dass über die Probe ein Gradient in der abgeschiedenen InAs-Menge entsteht. Dies erzeugt dann einen Dichtegradienten bezüglich der Quantenpunkte, wobei Quantenpunktdichten zwischen 0 und  $2 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$  erreicht werden. Für eine quantitative Auswertung siehe Kapitel 4.1.3. Dort wird die Quantenpunktdichte für zwei unterschiedliche Waferstücke berechnet.

Die Quantenpunkt-Proben der Ruhr-Universität Bochum wurden mit ähnlichen Parametern an einem *Riber* „Epineat II“ MBE-System gewachsen. Einige Unterschiede und Details sind nachfolgend dargestellt.

Beim Material 11194 wurden beispielsweise für die Quantenpunkte 16 Wachstumszyklen InAs verwendet. Dies ergibt nach 1,6 Monolagen dann den Übergang zum 3D-Wachstum und damit die Inselstrukturen, wobei insgesamt 2,0 Monolagen aufgewachsen wurden. Beim MC-Material waren es insgesamt 1,8 Monolagen.

---

<sup>2</sup> molecular beam epitaxy

Entscheidenden Einfluss auf die Qualität der Quantenpunkte haben, wie oben erwähnt, auch die verwendeten MBE-Temperaturen, wie sich im Vergleich der Proben 11190 zu 11194 gezeigt hat. Bei 11190 wurde das Material vor dem Überwachsen der Quantenpunkte um nur  $10\text{ }^{\circ}\text{C}$  auf  $535\text{ }^{\circ}\text{C}$  abgekühlt. Dagegen wurde bei 11194 die Temperatur vor dem Überwachsen um  $15\text{ }^{\circ}\text{C}$  auf  $530\text{ }^{\circ}\text{C}$  vermindert. Dabei führten die Wachstumsbedingungen mit der  $5\text{ }^{\circ}\text{C}$  niedrigeren Temperatur beim Wachstum von 11194 zu wesentlich homogeneren Quantenpunkten.

Beim MC-Material waren höhere absolute Temperaturen beim MBE-Wachstum verwendet worden, bei MC24 beispielsweise  $560\text{ }^{\circ}\text{C}$  beim Wachsen der Quantenpunkte.

Die Silizium-Dotierung des GaAs-Rückkontakte erfolgte bei den in Bochum gewachsenen Proben mit konstantem Si-Fluss bei einer Temperatur von  $1310\text{ }^{\circ}\text{C}$ . Hallmessungen an 11190 ergaben eine Dotierdichte von  $4,3 \cdot 10^{12}\text{ cm}^{-2}$ . Dabei muss eine durch die Dotierung entstehende Raumladungszone berücksichtigt werden, die eine dünne Verarmungsschicht erzeugt. Die Volumendotierung ergibt sich für das erwähnte Material zu  $2,15 \cdot 10^{18}\text{ cm}^{-3}$ . Zum Vergleich: die Volumendotierung für MC35 beträgt  $4 \cdot 10^{18}\text{ cm}^{-3}$ .

### 3.3 Heterostruktur der Quantenpunktproben

Die in dieser Arbeit untersuchten Proben bestehen aus einer Heterostruktur von Halbleiterschichten aus GaAs und AlAs/GaAs. Es handelt sich dabei um eine MISFET-Struktur<sup>3</sup>, bei der die InAs-Quantenpunkte im isolierenden Teil der Feldeffektstruktur untergebracht sind. Tabelle 3.1 gibt eine Übersicht der einzelnen Schichten und ihrer Funktionen am Beispiel des Probenmaterials 11210. Die entscheidenden Probenparameter sind die drei Schichten Quantenpunkte, Tunnelbarriere und Rückkontakt.

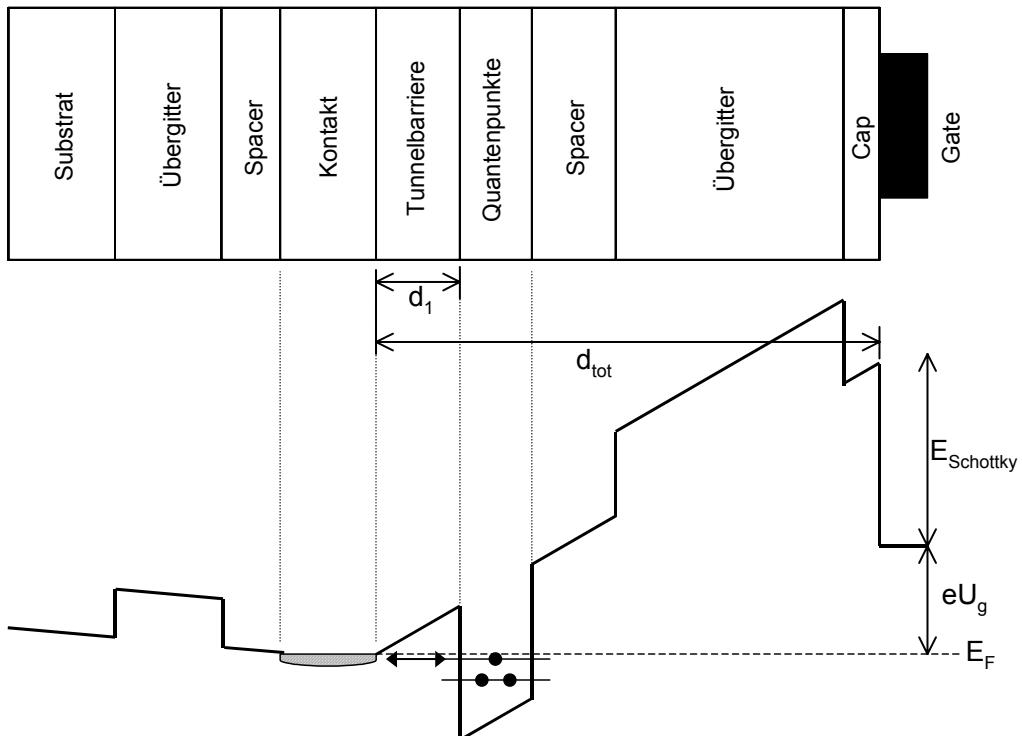
**Tabelle 3.1:** Übersicht der Schichtenfolge in der Heterostruktur des Materials 11210. Die Schichten sind in der Reihenfolge wie in Abb. 3.2 dargestellt, also oben mit dem Substrat beginnend.

Material	Dicke [nm]	Bezeichnung	Funktion
GaAs	-	Substrat	semiisolierendes GaAs-Substrat
AlAs / GaAs	120	Übergitter	dient dem Einschließen von Defekten und der Glättung der Substratoberfläche für das weitere Bewachsen
GaAs	400	Spacer	Abstandsschicht
GaAs, Si-dotiert	20	Rückkontakt	dient als Elektronenreservoir und Gegenelektrode (Rückkontakt), die Si-Dotierung beträgt $2,15 \cdot 10^{18} / \text{cm}^3$
GaAs	40	Tunnelbarriere	Tunnelbarriere für die Elektronen
InAs	2,0ML	Quantenpunkte	selbstorganisiert durch Stranski-Krastanov-Wachstum
GaAs	30	Spacer	zur Bedeckung der Quantenpunkte
AlAs / GaAs	200	Übergitter	eine Blockadeschicht, die das Entladen der Quantenpunkte zur Gateelektrode hin verhindert
GaAs	10	Deckschicht, Cap	zur Verhinderung von Oxidation

Ein schematische Übersicht der Schichtenfolge und der zugehörigen Leitungsbandkante ist in Abbildung 3.2 dargestellt. Die Schichtenfolge der Halbleitermaterialien mit den unterschiedlichen Dielektrizitätszahlen und Bandlücken führt zu den gezeigten Leitungsband-Diskontinuitäten. In Kapitel 3.7 wird näher dargestellt, wie durch Anlegen einer Gleichspannung  $U_g$  die Leitungsbandkante und

<sup>3</sup> metal insulator semiconductor field effect transistor, deutsch: Metall-Isolator-Halbleiter-Feld-Effekt-Transistor

damit die Lage der besetzbaren Zustände im Potenzialtopf der Quantenpunkte in Bezug auf das Fermi-Niveau verschoben werden kann.



**Abbildung 3.2:** Verlauf der Leitungsbandkante (unterer Teil) für die MISFET-Schichtstruktur (oben). Elektronen tunneln vom Elektronenreservoir (Kontakt) in die Quantenpunkte, dargestellt durch den Quantentopf im Leitungsband. Im Quantentopf geben die waagerechten Striche mit Punkten besetzte Zustände an.

Die **Tunnelbarriere**  $d_1$  ist ein für diese Arbeit sehr wichtiger Probenparameter, da durch ihn die Tunneldynamik der Elektronen vom Elektronenreservoir in die Quantenpunkte hinein abhängt. Die Dicke dieser Schicht bestimmt die Tunnelzeiten der Elektronen, wobei bei einer Schicht von  $d_1 = 25\text{ nm}$  wie bei MC24 im zur Verfügung stehenden Frequenzbereich des verwendeten Lock-In-Verstärkers keine Auswirkung auf die Tunneldynamik festgestellt werden konnte. Erst ab einer Schicht von  $d_1 = 35\text{ nm}$  (bei MC36 oder 11194) oder  $d_1 = 40\text{ nm}$  (bei MC35 oder 11190) sind die Tunnelzeiten ausreichend lang, so dass eine Frequenzabhängigkeit gemessen werden kann.

Ein weiterer Parameter, der sich aus der Schichtenfolge ergibt, ist der bereits mit Gl. (2.6) eingeführte **Hebelarm**  $\lambda$ ,

$$\lambda = \frac{d_{tot}}{d_1}, \quad (3.1)$$

mit einem Wert von z.B.  $\lambda = 6$  für MC35. Bei den meisten anderen Proben galt  $\lambda = 7$ . Dieser geometrische Parameter bestimmt die „Hebelwirkung“, die die angelegte Spannung auf die Leitungsbandkante hat.

Die Spannungsskala ist dabei nach der Hebelarmbeziehung

$$eU_g = \lambda E \quad (3.2)$$

gegenüber der Energieskala um den Faktor  $\lambda$  gespreizt.

Von der idealen Darstellungsweise der Leitungsbandkante in Abb. 3.2 ergeben sich einige Korrekturen, die nachfolgend dargestellt sind, die jedoch die modellhafte Anwendbarkeit dieses Bildes nicht beeinträchtigen.

Durch Anlegen einer Spannung können den Quantenpunkten Ladungen zugeführt werden. Diese lokale Konzentrationsänderung der Ladungsträger hat eine Bandverbiegung an den Ecken des Potenzialtopfes zur Folge, die in Abb. 3.2 nicht eingezeichnet ist. Sie wird hier vernachlässigt, da die angelegten Spannungen nur recht klein und die Ladungsträgerdichten hoch sind.

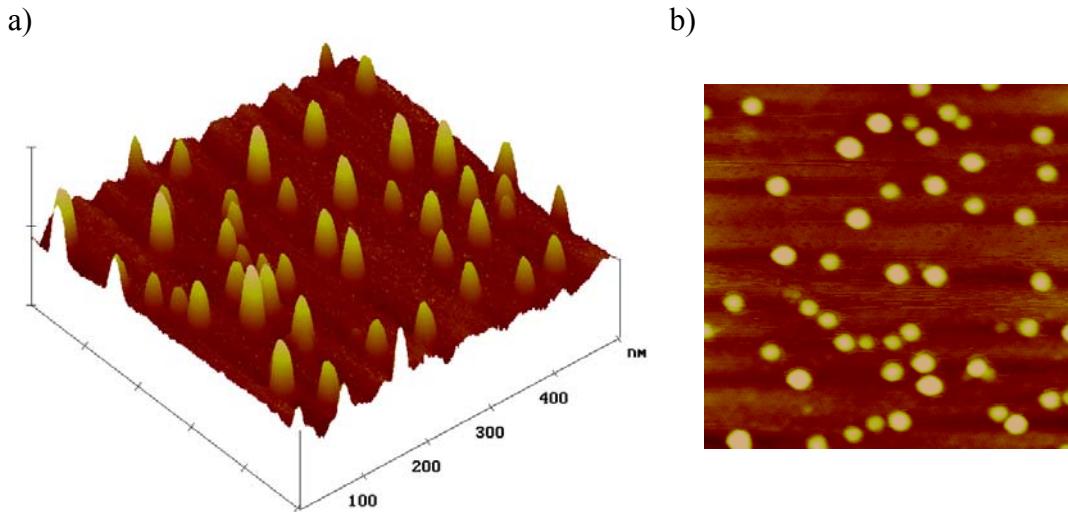
### 3.4 AFM-Untersuchungen

Abb. 3.3 zeigt eine AFM<sup>4</sup>-Aufnahme des Probenmaterials 11157. Bei diesem Material waren außer den Quantenpunkten in der Heterostruktur noch zusätzlich Quantenpunkte an der Oberfläche aufgewachsen worden. Diese wurden mit dem Rasterkraftmikroskop Nanoscope IIIa der Firma *Veeco* mit TESP-Spitzen (Tapping Mode Etched Silicon Probes) des Typs NCH (non-contact, high frequency) aufgenommen. Betriebsmodus war der Tapping-Modus („Klopf-Modus“), bei dem die Oberfläche durch die Spitze bei geregelter Amplitudeneinstellung gerastert wird.

Teil a) von Abb. 3.3 zeigt eine dreidimensionale Darstellung eines  $500 \times 500 \text{ nm}^2$  großen Probenfläche mit einer Skalierung von  $10 \text{ nm}$  / Skaleneinheit in z-Richtung (Wachstumsrichtung). In Abb. 3.3b ist der gleiche Ausschnitt zweidimensional von oben zu sehen.

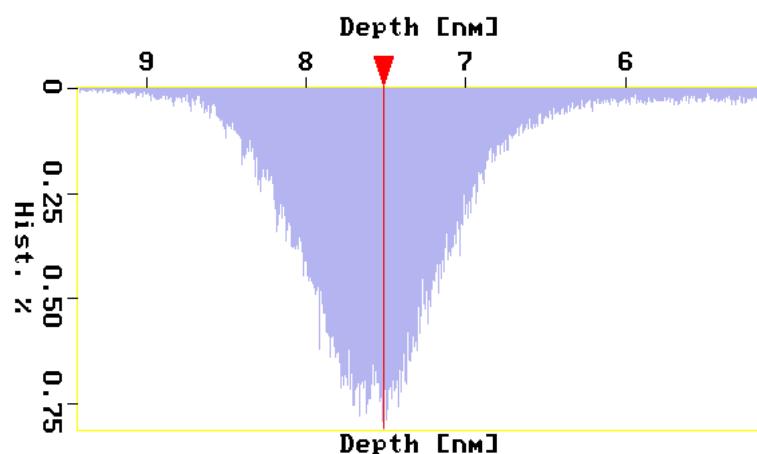
---

<sup>4</sup> atomic force microscopy, deutsch: Rasterkraftmikroskopie



**Abbildung 3.3:** AFM-Aufnahme vom Probenmaterial 11157 in a) dreidimensionaler und b) zweidimensionaler Ansicht. Der untersuchte Bereich hat eine Größe von 500 x 500nm, die Skalierung in Wachstumsrichtung beträgt 10nm / Skaleneinheit.

Die Quantenpunkte der in Abb. 3.3 zu sehenden Probe sind ausreichend homogen, was sich auch durch Kapazitätsuntersuchungen (siehe Kap. 4.1) gezeigt hat, wenngleich in der AFM-Aufnahme einige Inselstrukturen mit geringeren Abmessungen zu sehen sind.



**Abbildung 3.4:** AFM-Auswertung der Quantenpunktthöhe („Depth“). Das Histogramm zeigt einen Durchschnittswert von 7,5nm. Der komplette Bildausschnitt ist in Anhang D gezeigt.

In Abb. 3.4 ist ein Histogramm aus AFM-Auswertungen an der Probe 11157 gezeigt. Mittels einer Auswertungsmethode über die Verteilung der Oberflächenhöhen in der Probenstruktur („Bearing“) wurden die Höhen der Quantenpunkte be-

stimmt, mit einer Durchschnittshöhe von 7,5nm. Der mittlere Durchmesser der Quantenpunkte für das Material 11157 wurde durch eine „Partikel-Analyse“ bestimmt zu 23,4nm. Die kompletten Bildschirmkopien der AFM-Auswertung sind im Anhang gezeigt.

### 3.5 Probenpräparation

Die Kontaktierung der Quantenpunkte erfolgt in der Probenpräparation durch Aufdampfen zweier Elektroden auf die Probenoberfläche.

Die eine Elektrode („Rückkontakt“) wird kontaktiert durch Einlegieren von AuGe bis zur Silizium-dotierten Schicht in der Probe, die andere Elektrode („Gateelektrode“) wird erzeugt durch Aufdampfen von NiCr auf die Oberfläche der Probe. Somit ist es möglich, durch Anlegen einer Spannung zwischen diesen beiden Elektroden Elektronen aus der Schicht des Rückkontaktes in die Quantenpunkte tunnellen zu lassen, während in Richtung Gate das Tunneln durch eine Blockierschicht verhindert wird. Abb. 3.5 zeigt schematisch eine fertig präparierte Probe mit aufgebrachten Elektroden.

Die Präparation der Proben erfolgte in einem **Reinraum** der **Klasse 5** (nach VDI Richtlinie 2083) bzw. der class 10000 (nach US Federal Standard 209b).<sup>5</sup> Dadurch wird eine Kontamination mit Fremdpartikeln bei der Präparation weitgehend vermieden. Darüber hinaus wird die Temperatur bei 21-22 °C und die Luftfeuchte auf circa 45-50% gehalten. Dadurch verringert sich die Gefahr von Wasserfilmbildung auf den Probenoberflächen und der Wasseraufnahme durch den Photolack. Außerdem erfolgt die Präparation unter Gelblicht, um ein ungewolltes Belichten des Photolacks zu verhindern.

#### Erzeugen von Ohm'schen Kontakten

Zuerst erfolgt das Herausbrechen („Cleaven“) eines 4mm x 4mm großen Probenstücks aus dem Wafermaterial. Dabei ist darauf zu achten, dass ein eventueller Rand, der von der MBE-Halterung herührt, abgetrennt wird, und dass die Position vermerkt wird, aus welchem Stück des Wafers die Probe entnommen wurde. Das ist notwendig, da unter Umständen beim Wachstum ein Gradient bezüglich der InAs-Bedeckung benutzt wurde, um eine unterschiedliche Quantenpunktdichte auf dem Wafermaterial zu erzeugen (siehe Kapitel 3.2 und 4.1.3).

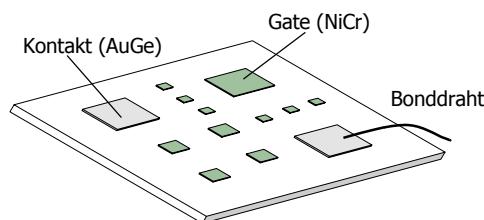
Die Proben müssen nun gereinigt werden, einerseits von den beim Cleaven entstehenden Bruchstücken, andererseits von einer oft vorhandenen Schutzlackschicht, die nach dem Wachstum aufgebracht worden ist, um ein Verschmutzen oder Verkratzen der Probenoberfläche zu verhindern. Das Reinigen erfolgt durch Spülen der Proben zuerst in Aceton, anschließend in Methanol und schließlich in Isopropanol, d.h. in der Reihenfolge des meistpolaren zum niedrigpolaren Lösungsmittel. Das Trockenblasen der Proben erfolgt dann mit Stickstoffgas.

---

<sup>5</sup> class 10000 ist gleichbedeutend mit einem Maximum von 10.000 Partikeln größer als 0,1µm pro 28l Luft.

Für die nachfolgende Kontaktlithografie wird dann Photolack (*Allresist AR-P 3840*) durch Aufschleudern auf die Proben aufgebracht (800 Umdreh./min für 1s zum Beschleunigen, dann für 30s bei 6000 Umdreh./min). Dies ergibt eine durch AFM-Untersuchungen ermittelte Lackhöhe von circa 920nm in der Mitte der Probe. Die Lacksschicht muss im zu belichtenden Bereich der Probe gleichmäßig aufgebracht sein und darf keine Verunreinigungen enthalten.

Die Proben werden dann im Ofen bei 90 °C für 20min ausgebacken und erst nach ausreichendem Abkühlen weiter präpariert.



**Abbildung 3.5:** Schematische Darstellung einer präparierten Probe mit zwei Kontakten und verschiedenen Gategrößen. Bonddrähte dienen der Kontaktierung zum Chip-Carrier hin.

### Kontaktlithografie

Zur Herstellung von Strukturen größer als 1µm lässt sich gut die Methode der Kontaktlithografie verwenden, bei der die gewünschten Strukturen durch Belichten in den auf die Probe gebrachten Photolack übertragen werden. Verwendet wird dazu eine mittels Elektronenstrahlenschreiben hergestellte Maske. Die in dieser Arbeit verwendete Glasmaske war mit einer Chromschicht bedeckt, in die die Strukturen mit einem Elektronenmikroskop *LEO 1530* und einer Strahlsteuereinheit *Raith Elphy Plus* geschrieben wurden. Verwendet wurde PMMA-Lack mit 4% Feststoffgehalt und eine Flächendosis von 200µC/cm<sup>2</sup> bei einer Blendenöffnung von 60µm.

Bei der Lithografie befindet sich die Maske in direktem Kontakt mit der Probe, so dass der lichtempfindliche Photolack an den gewünschten Stellen belichtet wird. Die Belichtungszeit mit UV-Licht an dem Maskenbelichter der Firma *Karl Süss* beträgt 13s.

Entwickelt werden die Probenstücke dann in *Allresist AR 300-35* für 12s. Dabei wird der Photolack an den belichteten Stellen entfernt. Das Stoppen erfolgt in deionisiertem Wasser.

Auf der verwendeten Maske waren insgesamt 14 Gateelektroden vorhanden, mit den drei unterschiedlichen Flächen A<sub>1</sub>, A<sub>2</sub> und A<sub>3</sub>, die in der Tabelle 3.2 aufgelistet sind.

Die in Kap. 3.7 beschriebene Kapazitätsspektroskopie stellt eine integrale Messmethode dar, bei der sich auf Grund der hohen Zahl gleichzeitig gemessener Quantenpunkte in den Spektren eine entsprechende Gauß-Verbreiterung zeigt. Aus diesem Grund werden bei der Präparation unterschiedliche Elektrodengrößen aufgebracht, um die Zahl der gleichzeitig spektroskopierten Quantenpunkte zu variieren und Effekte bezüglich deren Homogenität und Dichte auf der Probe messen zu können. Die ungefähre Anzahl der von einer Elektrode überdeckten Quantenpunkte wurde aus einer Abschätzung nach Kap. 4.1.3 gewonnen und ist in der zweiten Spalte von Tab. 3.1 dargestellt. Mit Gl. (4.1) kann die Anzahl der Quantenpunkte berechnet werden. Die Anzahl kann sich allerdings ändern mit dem Probenmaterial und mit dem Bereich des Wafers aus dem die Probe entnommen wurde und sollte deswegen nur als Größenordnung verstanden werden. Die Werte in Tabelle 3.2 sind berechnet für eine Probe des Materials MC35 des Indium-reichen Bereichs des Wafers.

**Tabelle 3.2:** Anzahl der spektroskopierten Quantenpunkte in Abhängigkeit der Gateelektrodenfläche für den Indium-reichen Bereich der Probe MC 35

Gateelektrodenfläche	Anzahl der Quantenpunkte
$A_1 = 0,457 \cdot 10^{-8} \text{ m}^2$	$9,6 \cdot 10^5$
$A_2 = 4,112 \cdot 10^{-8} \text{ m}^2$	$8,7 \cdot 10^6$
$A_3 = 0,457 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2$	$7,8 \cdot 10^7$

### Aufdampfen

Das Aufbringen der Metalle auf die Proben erfolgt durch thermisches Verdampfen der Materialien aus Wolframschiffchen. Dazu werden die Proben auf einen dafür gefertigten Halter aufgebracht und in eine Aufdampfanlage der Firma *Veeco* eingebaut. Es wird ein Vakuum von circa  $10^{-6}$  mbar erzeugt. Für die ohmschen Kontakte folgt das Aufdampfen von 8 - 12 nm Ni und 75 - 100 nm AuGe.

AuGe mit einem Verhältnis von Au zu Ge von 88:12 (im Maß einer eutektischen Legierung) ist eines der Standardmaterialsysteme für das Aufbringen von ohmschen Kontakten auf GaAs. Das Germanium dient dabei zur Dotierung des GaAs während des Einlegierens. Meist wird außer AuGe auch noch Ni aufgedampft, dessen genaue Funktion jedoch noch immer diskutiert wird. Ursprünglich sollte es die Benetzung des AuGe verbessern, wobei sich durch das Ni bessere Widerstände und eine bessere Morphologie nach dem Einlegieren ergeben haben [Knight69]. Neuere Untersuchungen weisen außerdem darauf hin, dass Nickel die Diffusion von Germanium in GaAs unterstützt.

Im so genannten „Lift-off“ wird im heißen Acetonbad bei 60 – 70 °C die Lackschicht und damit das darüber liegende aufgedampfte Material an den nicht belichteten Stellen abgelöst, so dass nur die gewünschte Kontaktstruktur stehen

bleibt. Eventuell können überstehende Metallreste vorsichtig per Ultraschall niedrigster Stufe entfernt werden.

Nun müssen die Kontakte in die Heterostruktur bis zur Rückkontakt-Schicht eingelagert werden. Dies erfolgt unter Schutzgas ( $\text{ArH}_2$ )-Atmosphäre (5min, 200 °C; 2min, 400 °C; 30s, 450 °C).

Mit einem Spitzmessplatz wird der Widerstand zwischen den beiden ohmschen Kontakten gemessen, um zu kontrollieren, ob die Rückkontakte-Schicht beim Einlegen erreicht worden ist. Typische gemessenen Werte für den Kontakt-Kontakt-Widerstand lagen bei 0,4 – 1,5 kΩ.

Nach dem Einlegen ist in der Regel nur noch eine kraterförmige Restschicht der Kontakte auf der Oberfläche der Probe vorhanden, so dass unter Umständen noch „Bondpads“ in einem weiteren Präparationsschritt aufgebracht werden müssen. Diese sorgen dafür, dass der Widerstand nicht vom Ort abhängt, von dem aus der Kontakt draht gezogen wird, oder dass die Probenoberfläche beim Kontaktieren beschädigt wird.

Der Präparationsschritt für das Aufbringen der Bondpads erfolgt in der gleichen Schrittfolge wie oben von Belacken bis Bedampfen, wobei diesmal für die Bondpads 7nm NiCr und 50nm Au aufgedampft werden.

### **Herstellen der Gates**

Das Aufbringen der Gate-Elektroden erfolgt analog der Kontakte, deswegen sollen hier nur die unterschiedlichen Parameter dargestellt werden. Das Belichten erfolgt mit der Gate-Struktur der Maske, wobei auf die Ausrichtung der Kontakt- und Gate-Strukturen untereinander zu achten ist. Aufgedampft werden etwa 5 – 10nm NiCr, wobei hier das Verdampferschiffchen öfter gewechselt werden muss, als bei den obigen Materialien, da NiCr nur noch schwer zu verdampfen ist, sobald das Material einmal aufgeschmolzen ist. Der Lift-off ist aufgrund der geringeren Schichtdicke recht unproblematisch.

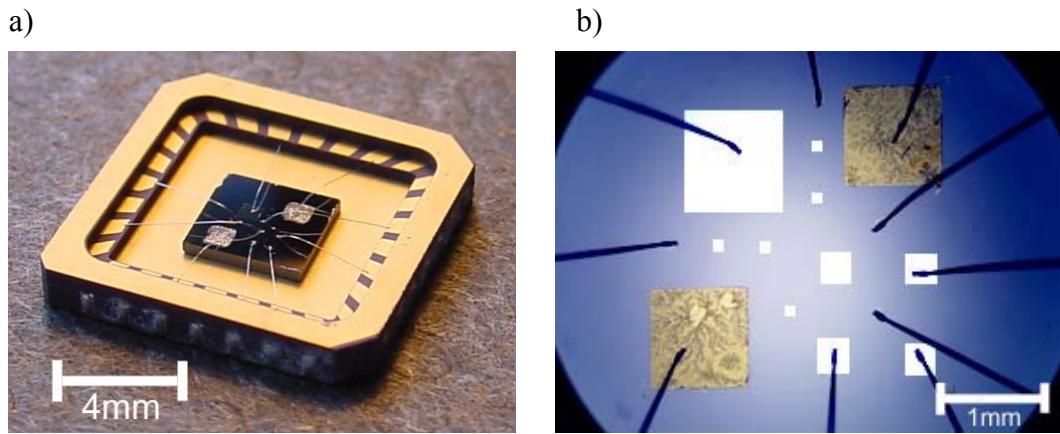
Bezüglich der Wahl des Materialsystems sind gute Adhäsion und thermische Stabilität des Metalls auf GaAs Voraussetzung für eine geeignete Gateelektrode. Au kann nicht verwendet werden, weil es zu stark diffundiert und bei dünnen Schichten zur Inselbildung neigt. Das Materialsystem NiCr dagegen besitzt ausreichend gute elektrische Eigenschaften, wobei das Nickel die Leitfähigkeit in der Legierung erhöht.

### **Kontaktierung der Probe**

Zur Kontaktierung wird die Probe mit Leitsilber auf einen gereinigten Träger („Chipcarrier“) geklebt, der aus Keramik mit Goldkontakte besteht. Die feinen Kontaktfäden aus  $\text{Al}_{99}\text{Si}_1$  (Durchmesser 80µm) werden mit einem Wedgebonder der Firma *Kulicke and Soffa Ind. Inc.* von den Elektroden auf den Proben bis zu den Durchführungen auf dem Chipcarrier gezogen („Bonden“). Die Bonds sollten in einem flachen Winkel verlaufen und die Probenstruktur mit den unterschiedli-

chen Gategrößen geeignet abdecken, um verschiedene Probenbereiche spektroskopieren zu können.

Abbildung 3.6a zeigt eine Fotografie einer präparierten Probe, die auf den Träger geklebt und mit Drähten kontaktiert wurde. In Abbildung 3.6b ist eine Mikroskopaufnahme der Probenoberfläche zu sehen mit Gateelektroden (weiß) und Kontakten (grau strukturiert), auf die die Kontaktdrähte bereits durch Bonden aufgebracht worden sind.



**Abbildung 3.6:** Fotografien einer fertig präparierten Probe. a)  $4 \times 4 \text{ mm}^2$  große Probe auf Chipcarrier b) Mikroskopaufnahme einer gebondeten Probe mit zwei Kontakten (links unten und rechts oben) und Gateelektroden (weiß).

## 3.6 Leckströme

Insbesondere bei einigen der zuerst im Rahmen dieser Arbeit präparierten Proben zeigten sich bei den Messungen hohe Leckströme bei Anlegen einer Spannung zwischen Rückkontakt und Gateelektrode. Diese Proben konnten nicht erfolgreich spektroskopiert werden und es sollen deswegen nachfolgend einige Optimierungen der Probenpräparation erwähnt werden, die sich in der Praxis bewährt haben und die die Präparation zuverlässiger gemacht haben.

1. Wesentliche Voraussetzung für ein fehlerfreies Funktionieren der Proben ist die Vermeidung und Entfernung von Verunreinigungen auf der Oberfläche der Probenstücke. Diese lassen sich oft mit dem Mikroskop erkennen und mit Lösungsmitteln entfernen. Gewissenhaftes Arbeiten zahlt sich hier sehr aus.
2. Defekte auf der Oberfläche sollten notiert und bei der Belichtung für die Gateelektroden vermieden werden. Gegebenenfalls ist die Struktur beim

Belichtungsvorgang zu verschieben. Andernfalls können die oben erwähnten Leckströme entstehen.

3. Eventuell stehen gebliebene Metallreste vom Lift-off sollten wenn möglich entfernt oder zumindest beim weiteren Prozessieren vermieden werden, damit kein Kurzschluss zwischen einem Kontakt und einem Gate entsteht.
4. Zu vermeiden ist auch eine zu hohe Hitzebeanspruchung der Proben beispielsweise beim Aufdampfen. Dies wurde im späteren Teil der Arbeit durch eine größere Entfernung der Proben vom Verdampferschiffchen ermöglicht.
5. Als durchaus brauchbare Methode um Kontakte auf die Proben zu bringen, hat sich auch das Bedampfen per Schattenmaske herausgestellt. Dies ermöglicht die Vermeidung der manchmal kritischen Schritte der Kontaktolithografie und des Lift-offs.

## 3.7 Messmethoden

### Kapazitätspektroskopie

Während das Prinzip der Impedanzspektroskopie bereits ausführlich in Kapitel 2.2.2 dargestellt worden ist, soll nun die Methode der Kapazitätspektroskopie erläutert werden.

Mit der Kapazitätspektroskopie (oft auch „CV-Spektroskopie“ genannt) lassen sich die Grundzustands-Energieniveaus von Quantenpunkten in einer Kondensatorstruktur untersuchen. Dies wird ermöglicht durch die diskrete (gaußförmig verbreiterte) Zustandsdichte  $D(E)$  der nulldimensionalen Systeme (siehe Kap. 2.1.3), da (wie in Kap. 2.1.7 gezeigt) die Kapazität der Quantenpunkte  $C_q$  proportional zu  $D(E)$  ist.

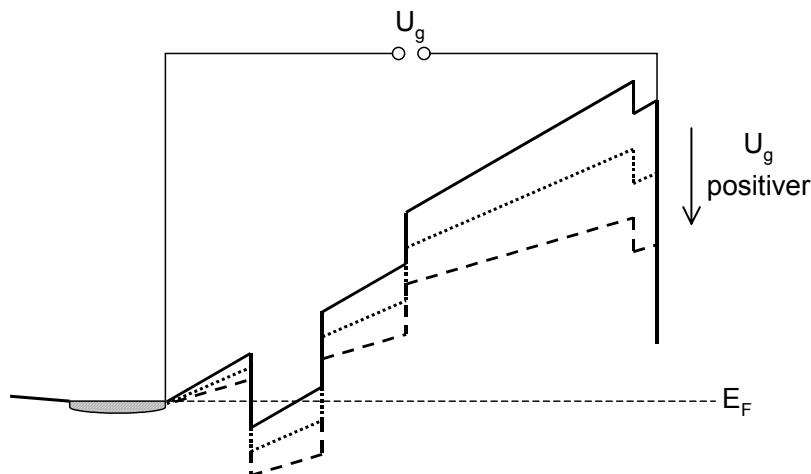
Die für die Messungen nötige Temperatur ergibt sich aus einer Abschätzung der zu messenden Energiedifferenzen, die einige zehn bis hundert meV betragen. Für eine Messtemperatur von beispielsweise  $T = 10\text{K}$  ergibt sich ein Wert für die Anregungsenergien von  $k_B T < 1\text{meV}$ , was eine ausreichende Auflösung darstellt. Aus diesem Grund werden die untersuchten Proben auf die Temperatur des flüssigen Heliums abgekühlt ( $4,2\text{K}$ ). Für diese Temperatur liegen die Anregungsenergien bei  $k_B T \approx 0,4\text{meV}$ . Bei höheren Temperaturen würde das zu große thermische Rauschen die Auflösung der Energieniveaus unmöglich machen.

Wie in der Impedanzspektroskopie wird auch hier zwischen den auf der Probe vorhandenen Elektroden eine Spannung angelegt. Diese zwischen Rückkontakt und Gate angelegte Spannung setzt sich zusammen aus einer Gleich- und einer Wechselspannung, deren Bedeutung im Folgenden näher beschrieben wird.

Das Anlegen einer **Gleichspannung**  $U_g$  in der Größenordnung von  $-1\text{V}$  bis  $+1\text{V}$  bewirkt eine Verschiebung der Leitungsbandkante bezüglich des Fermi-Niveaus,

wie es in Abb. 3.7 exemplarisch für drei verschiedene Gleichspannungen dargestellt ist. Mit dem Hebelarmargument äußert sich die Spannung in einem addierten beziehungsweise subtrahierten linearen Potenzial  $E_\Phi$ :

$$E_\Phi = \frac{1}{\lambda} e U_g . \quad (3.3)$$



**Abbildung 3.7:** Verlauf der Leitungsbandkante für drei unterschiedliche Gatespannungen. Mit steigender Spannung werden die besetzbaren Energieniveaus des Quantentopfes unter die Fermikante abgesenkt. Dies erfolgt gemäß dem Hebelarmprinzip, wobei der Drehpunkt am Elektronenreservoir liegt (links mit schattierter Füllung dargestellt).

Das bedeutet, die diskreten Energieniveaus der Quantenpunkte können bezüglich des Ferminiveaus so verschoben werden, dass bei bestimmten Spannungen Elektronen vom hochdotierten Rückkontakt, dem Elektronenreservoir, in die Niveaus der Quantenpunkte tunneln können.

Die Annahme eines linear addierten oder subtrahierten Potenzials stellt dabei allerdings eine Idealisierung dar, die der Wirklichkeit nicht ganz entspricht. Zu beachten sind die unterschiedlichen Halbleitermaterialien in der Heterostruktur (GaAs, InAs, AlAs), die jeweils eine unterschiedliche Dielektrizitätskonstante besitzen. Damit ist das Potenzial  $E_\Phi$  nur näherungsweise linear, doch die Abweichungen sind so gering, dass sie im Rahmen des Messverlaufs vernachlässigt werden können.

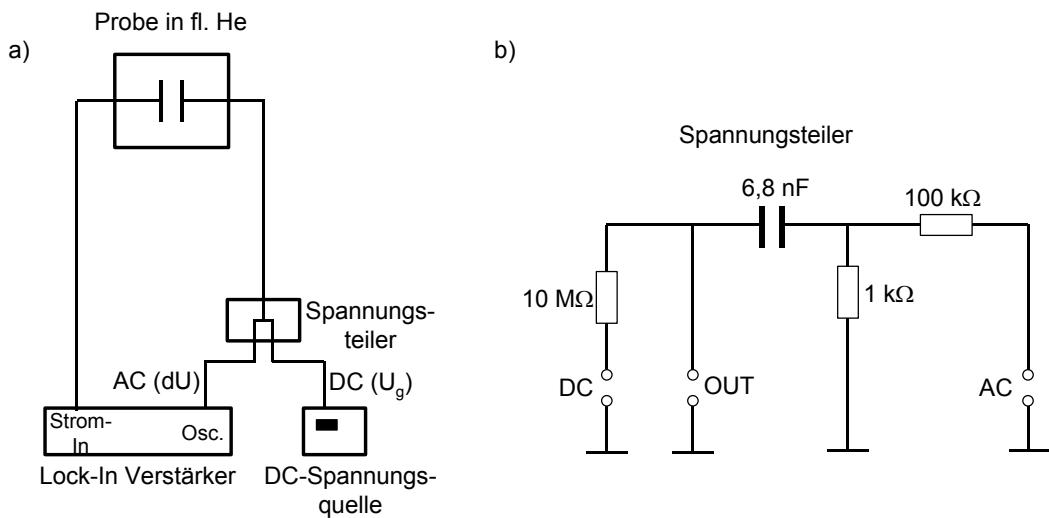
Das zusätzliche Anlegen einer **Wechselspannung**  $dU$  in der Größenordnung von 5mV führt dazu, dass die Elektronen zwischen dem Rückkontakt und den Quantenpunkten hin- und her tunneln. Damit ist es möglich, dieses dynamische Laden- und Entladen der Quantenpunkte zu spektroskopieren.

Der resultierende Wechselstrom ist kapazitiv und somit im Idealfall um  $90^\circ$  gegenüber der angelegten Wechselspannung phasenverschoben. Immer dann, wenn Resonanz vorliegt (siehe Konzept der Coulombblockade) und Elektronen tunneln, ergibt sich dann ein kapazitives Signal, welches gegenüber der Hintergrundkapazität erhöht ist. In der Auftragung des kapazitiven Signals über der Gleichspannung zeigt sich dann, bei welchen Spannungen diese Resonanzmaxima auftreten. Da eine hohe Anzahl von Quantenpunkten (z.B.  $10^7$ , vergleiche Tab. 3.1) die nicht perfekt identisch sind, gleichzeitig spektroskopiert werden, sind die Maxima gaußverbreitert und deren Form ist damit umgekehrt eine Untersuchungsmethode für die Homogenität der Quantenpunkte.

## 3.8 Messaufbau

### 3.8.1 Kapazitätsmessung

Abb. 4.8 zeigt den prinzipiellen Messaufbau, wie er für die Kapazitätspektroskopie verwendet worden ist. Die Gleichspannung wird erzeugt von einer programmierbaren Konstantspannungsquelle der Firma *Yokogawa*, Modell 7651. Ein Lock-In Verstärker der Firma *EG&G*, Modell 7265 DSP, erzeugt die Wechselspannung. Alternativ wurde auch ein Lock-In Verstärker der Firma *Stanford Research Systems*, Model SR 830 DSP verwendet.



**Abbildung 3.8:** a) Prinzipieller Messaufbau für die Kapazitätspektroskopie ohne Magnetfeld. b) Schaltbild des in a) verwendeten Spannungsteilers. In den Zeichnungen steht „AC“ für die Wechselspannung und „DC“ für die Gleichspannung.

Gleich- und Wechselspannung werden über einen Spannungsteiler (Schaltung siehe Abb. 3.8b) zusammen per BNC-Kabel auf die Gateelektrode der Probe gegeben, wie es in Abb. 3.8a dargestellt ist. Der Spannungsteiler beinhaltet Schutz-

widerstände, moduliert Wechsel- und Gleichspannung und hat auch die Funktion, die Wechselspannung im Verhältnis 100:1 herunter zu teilen, um ein besseres Signal-Rausch-Verhältnis zu erreichen.

Der Lock-In Verstärker wird neben der Erzeugung der Wechselspannung auch dazu benutzt, den resultierenden Wechselstrom zu messen. Dazu wird er über BNC-Kabel an den Rückkontakt der Probe angeschlossen. Die maximal zur Verfügung stehenden Frequenzbereiche lagen bei 250 kHz für das Modell von *EG&G*, bzw. bei 102 kHz für den Lock-In von *Stanford*. Die Probe selbst befindet über einen Probenstab in flüssigem Helium bei 4,2K.

Lock-In Verstärker und Spannungsquelle sind über eine GPIB-Schnittstelle mit einem Computer verbunden, so dass einerseits die Geräte durch ein Labview-Programm gesteuert und andererseits die Messdaten automatisch aufgenommen werden können.

Der Messvorgang selbst besteht dann im Einstellen einer bestimmten Wechselspannungsfrequenz und dem automatischen Durchfahren des gewählten Gleichspannungsbereich, der sich nach der energetischen Lage der elektronischen Niveaus richtet, aber typischerweise zwischen -1V und +1V liegt. Die Wahl der Frequenz hängt ab von der Größe der Tunnelbarriere des Probenmaterials – in dieser Arbeit wurden Frequenzen ab einigen hundert Hz bis zu 250 kHz verwendet, wobei Vielfache von 50Hz des Stromnetzes vermieden werden müssen. Je nach Frequenz müssen auch die Integrationszeiten und die Zeit zwischen zwei Messschritten entsprechend angepasst werden, wobei für niedrige Frequenzen Integrationszeiten von einigen Sekunden, für hohe Frequenzen dagegen solche von teilweise unter einer Sekunde gewählt worden sind. Für eine möglichst gute Auflösung der Messpunkte wird im Lock-In Verstärker der Messbereich so eingestellt, dass eine bestmögliche Ausnutzung der Signalfrequenz gewährleistet wird.

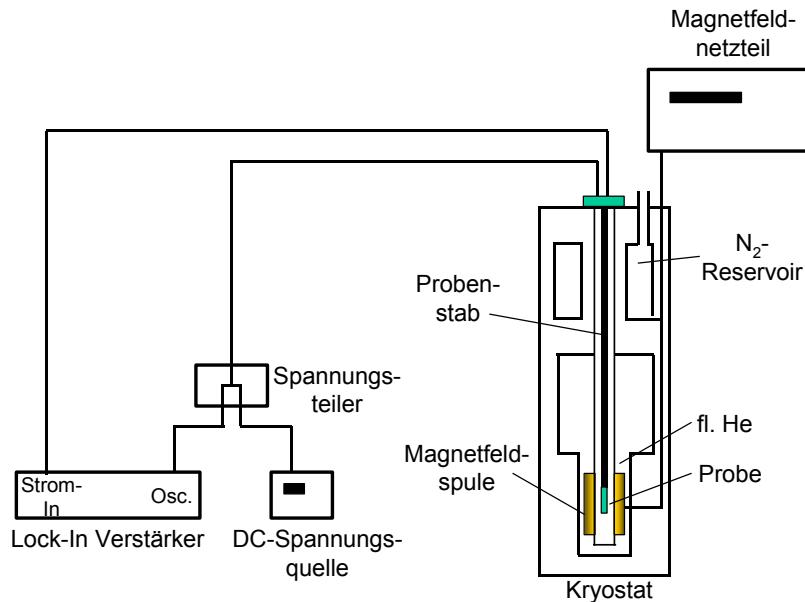
### 3.8.2 Kapazitätsmessung im Magnetfeld

Für die Magnetfeldmessungen stand ein Kryostat der Firma *Cryogenic Ltd.* zur Verfügung, mit welchem Magnetfelder von bis zu 11T bei 4,2K erzeugt werden konnten. Der innere Teil des Kühlbehälters ist mit flüssigem Helium gefüllt, in das der geschlossene und mit Kontaktgas gefüllte Probenstab abgesenkt wird. Ein umliegender Schild aus flüssigem Stickstoff dient als Kühlenschutz gegenüber der Umgebung. Die Magnetfelder werden von einer supraleitenden Spule erzeugt, welche sich im unteren Teil des Kryostaten befindet. Der homogene Magnetfeldbereich beträgt ca. 1,5cm, in den die Probe exakt ausgerichtet werden muss.

Zusätzlich zum oben gezeigten Messaufbau ist dazu ein Magnetfeldnetzteil zur Steuerung der Felder vorhanden, wie es in Abb. 3.9 dargestellt ist. Das Netzteil kann im Spannungs- oder Strom-Kontrollmodus betrieben werden, wobei ein Spannungslimit beim Hoch- oder Herunterfahren des Feldes gesetzt werden kann. Dieses setzt bei Bedarf den Steuermechanismus des Generators außer Kraft.

Bei den Magnetfeldmessungen ist dann der jeweilige primäre Messparameter die Magnetfeldstärke, der sekundäre Parameter die Frequenz, wobei wie oben

jeweils die Gleichspannung im gewählten Bereich durchfahren wird. In der Auswertung werden dann jeweils die Kurven gleicher Frequenz bei unterschiedlichen Magnetfeldern in ein Diagramm aufgetragen.



**Abbildung 3.9:** Messaufbau für die Kapazitätsspektroskopie im Magnetfeld eines Kryostaten. Die Probe ist im Zentrum des durch die supraleitenden Spulen erzeugten Magnetfeldes platziert.

### 3.8.3 Impedanzmessung

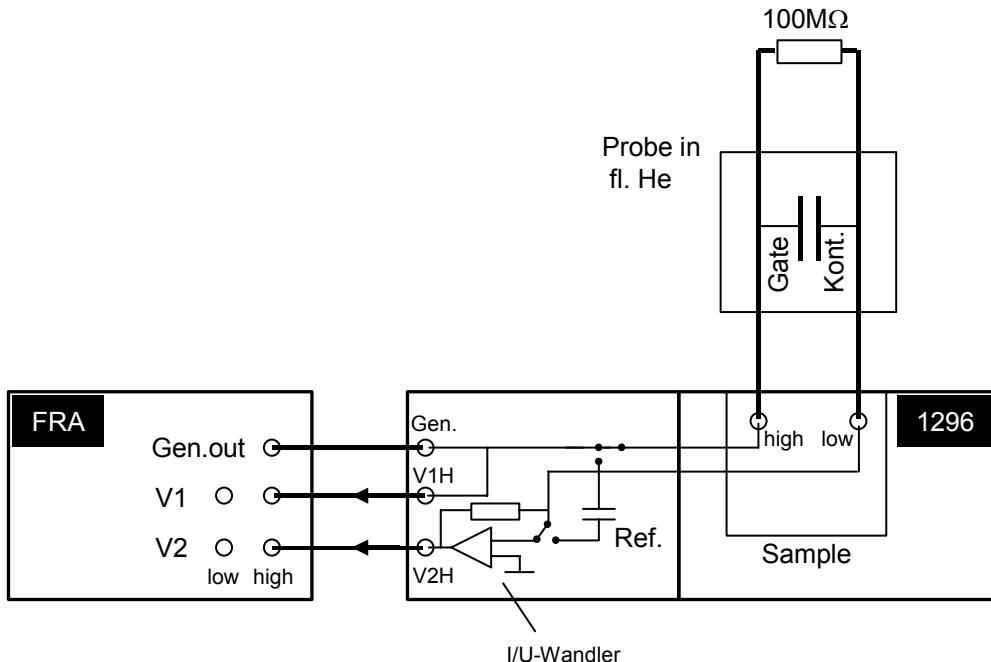
Als Impedanzspektrometer wurde ein 1255 H.F. Frequency Response Analyzer (FRA) der Firma *Solartron* verwendet. Das Messgerät kann Frequenzen zwischen  $10^{-5}$  und  $2 \cdot 10^7$  Hz erzeugen, mit einer Auflösung von  $10^{-5}$  bis 1 Hz, je nach Frequenzbereich. Außerdem können eine Wechselspannung mit einer Auflösung von 5mV und eine Konstantspannung mit einer Auflösung von 10mV erzeugt werden.

Der Messaufbau ist in Abbildung 3.10 zu sehen. Der FRA generiert ein Wechselspannungs- und ein Gleichspannungs-Signal (Gen. out), welches in den Generator-Eingang eines Dielektrischen Interfaces 1296 (Gen.) gespeist und weiter über den High-Ausgang auf die Gateelektrode gegeben wird.

Das von der Probe kommende Stromsignal wird über einen Strom-Spannungswandler im 1296 mit entsprechender Verstärkung (V1H, V2H) in den Analyzer-Eingang des FRA gegeben. Dadurch wird die Messempfindlichkeit des FRA stark verbessert, so dass auch sehr kleine Ströme und Kapazitäten gemessen werden können.

Eine Referenzkapazität (Ref.) im Dielektrischen Interface dient zum Messzellenabgleich, wobei mittels zweier gekoppelter Schalter (siehe Abb. 3.10) entweder die Referenz- oder die Probenleitungen mit dem FRA verbunden werden.

Gemessen werden dann die Impedanzsignale bei Anlegen der Gleich- und Wechselspannung und Durchfahren des Frequenzbereichs. Letzterer wurde in den Messungen in der Regel zu  $10^{-2}$  bis  $10^6$  Hz gewählt, während die Wechselspannungsamplitude etwas größer als bei den Kapazitätsmessungen eingestellt wurde, um das Signal-Rausch-Verhältnis zu verbessern.



**Abbildung 3.10:** Messaufbau für die Impedanzmessung. Auf der linken Seite ist der Frequency-Response-Analyzer (FRA) dargestellt, mit dem die Spannungen erzeugt werden. Auf der rechten Seite sind der Innenteil und die Außenanschlüsse des Dielektrischen Interfaces 1296 gezeigt, über den das Spannungssignal auf die Probe (oben) gegeben wird. Parallel zur Probe ist ein  $100\text{M}\Omega$  Widerstand geschaltet. Über einen I/U-Wandler wird das ankommende Signal in die Analyzer-Eingänge geleitet und vom FRA als Spannung gemessen.

# Kapitel 4

## Experimentelle Ergebnisse und Diskussion

In diesem Kapitel werden die mittels Kapazitäts- und Impedanzspektroskopie erzielten Messergebnisse an InAs-Quantenpunkten dargestellt. Untersucht worden sind hauptsächlich Heterostrukturen mit großen Tunnelbarrieren (35 – 40nm), welche sich besonders zur Spektroskopie der Tunneldynamik eignen. Zum Vergleich wurden auch Proben mit kleineren Tunnelbarrieren (ab 22nm) untersucht, die aber keine Frequenzabhängigkeit bezüglich der Tunneldynamik zeigten.

### 4.1 Kapazitätsmessungen

Die Kapazitäts-Spannungs-Messungen („CV-Spektroskopie“<sup>1</sup>) wurden (wie auch die Impedanzmessungen) durchgeführt bei der Temperatur des flüssigen Heliums (4,2K). Mit dieser Methode ist es möglich, die elektronischen Zustände der Quantenpunkte zu spektroskopieren und Aussagen über die Grundzustandsenergien des Elektronensystems zu treffen.

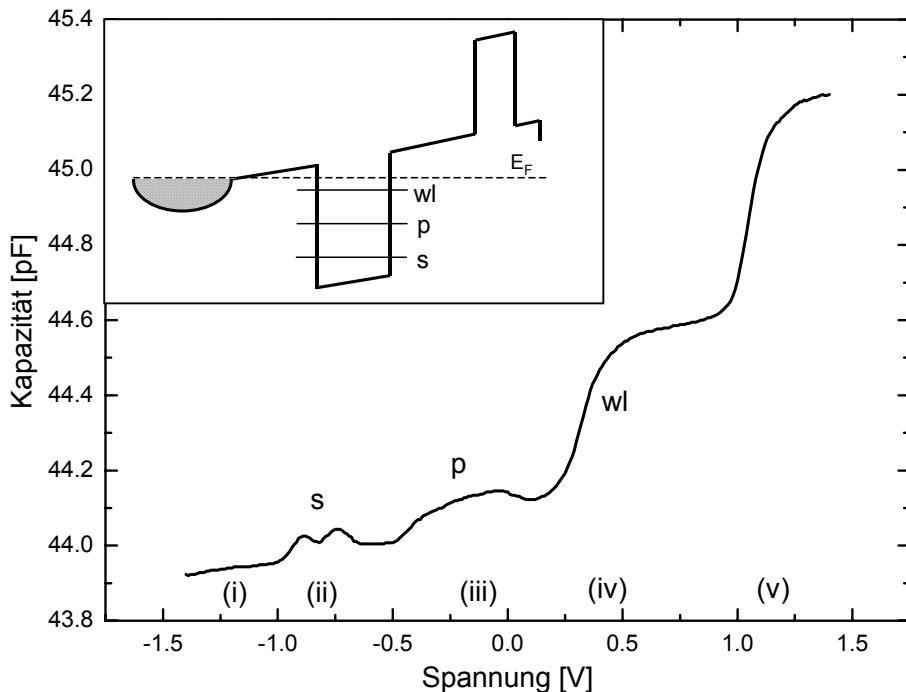
Die Messungen wurden an verschiedenen Proben durchgeführt, deren Aufbau sich vor allem in dem für die Transportdynamik wichtigen Parameter der Tunnelbarriere unterscheidet. Die genaue Schichtenfolge ist in Kap. 3.3 dargestellt worden und die jeweiligen Schichtparameter sind noch einmal in den Tabellen A.1 und A.2 im Anhang zusammenfasst. Alle Proben enthielten selbstorganisierte InAs-Quantenpunkte und wurden mittels Molekularstrahlepitaxie von Gilberto Medeiros-Ribeiro an der University of California, Santa Barbara und von Dirk Reuter und Peter Schafmeister an der Universität Bochum gewachsen.

---

<sup>1</sup> Im Text und in den Formeln wird i.d.R. für die Spannung der Buchstabe  $U$  verwendet, doch in der üblichen Bezeichnungsweise wird die Spannung im Begriff „CV-Spektroskopie“ mit  $V$  abgekürzt.

### 4.1.1 Kapazitätsspektren

Abbildung 4.1 zeigt den typischen Gesamtverlauf des Kapazitätsspektrums einer Quantenpunktprobe, hier gezeigt für das Probenmaterial MC27. Nachfolgend soll der Verlauf der Kurve vor allem qualitativ diskutiert werden, um einen Überblick über die zugrunde liegenden Mechanismen zu bekommen.



**Abbildung 4.1:** Kapazitätsspektrum für das Material MC27 bei 4343Hz und einer Gatefläche von  $4,1 \cdot 10^4 \mu\text{m}^2$ . Die Tunnelbarriere beträgt hier 22nm. Aufgetragen ist die Probenkapazität in pF in Abhängigkeit der angelegten Gleichspannung  $U_g$ . Zu sehen ist das doppelte Lademaximum beim Besetzen der beiden s-Niveaus, darauf folgt das breite Lademaximum für die vier p-Niveaus und anschließend das Laden der Benetzungsenschicht (wl). Die Einsatzzeichnung zeigt schematisch den Leitungsbandverlauf mit abgesenktem Quantentopf bei einer angelegten Spannung von etwa 0,7V, also nach dem Laden der Benetzungsenschicht.

Wie in Kap. 3.7 dargestellt worden ist, werden sowohl eine Gleichspannung als auch eine aufmodulierte Wechselspannung an die Kondensatorstruktur angelegt. Die Gleichspannung dient dazu, die Energieniveaus der Quantenpunkte bezüglich des Fermi-Niveaus im Rückkontakt zu verschieben, wohingegen die Wechselspannung es ermöglicht, die Elektronen bei entsprechender Resonanz vom Rückkontakt zu den Quantenpunkten hin- und herzutunnen zu lassen. Dies ermöglicht es, das „Laden“ der Quantenpunkte mit Elektronen in Form einer CV-Kurve darzustellen.

In Abbildung 4.1 lassen sich fünf Bereiche unterscheiden:

- (i) Für den Gleichspannungsbereich  $U_g < -1,0\text{V}$  ergibt sich trotz Änderung der Spannung eine nahezu konstante Kapazität, die gegeben ist durch die geometrische Kapazität zwischen Rückkontakt und Gateelektrode. Der abzulesende Wert von etwa  $43,8\text{pF}$  stimmt zufriedenstellend überein mit dem geometrischen Kapazitätswert  $C = \epsilon_0 \epsilon_r A / d = 31\text{pF}$ , der sich für die Gatefläche  $A = 4,1 \cdot 10^4 \mu\text{m}^2$  und einem Abstand  $d = 150\text{nm}$  zwischen Gateelektrode und Rückkontakt ergibt.
- (ii) Im Bereich zwischen  $-1,0\text{V} < U_g < -0,6\text{V}$  zeigt sich ein zweifaches Maximum in der Kapazität. Das erste Maximum entspricht dabei dem Laden der Quantenpunkte mit dem ersten Elektron, das zweite entsprechend dem Laden mit dem zweiten Elektron. Der Anstieg der Kapazität und der anschließende Abfall auf den Hintergrundbereich nach diesen beiden Maxima erklärt sich durch die Änderung der Zustandsdichte mit der angelegten Spannung. Da die QuantenkappaZität  $C_q$  proportional zu  $D(E)$  ist (siehe Kap. 2.1.7), steigt zuerst die Gesamtkapazität an und fällt dann wieder auf die Hintergrundkapazität ab.
- (iii) Für  $-0,6\text{V} < U_g < 0,15\text{V}$  lässt sich ein breites Maximum erkennen, welches eigentlich aus vier Einzelmaxima besteht, aber in dieser Messung nicht aufgelöst wurde (zur Auflösung vgl. Abb. 4.2). Hier zeigt sich im Spektrum das Laden vom dritten bis zum sechsten Elektron in die Quantenpunkte.
- (iv) Im Bereich von  $0,2$  bis  $0,6\text{V}$  liegt dem Anstieg in der Kapazität das Laden der InAs-Benetzungsenschicht (wetting layer) zugrunde.
- (v) Ab  $0,9\text{V}$  Gleichspannung ist der zu sehende Kapazitätsanstieg Folge des Ausbildens eines weiteren zweidimensionalen Elektronensystems (2DEG) an der Grenzfläche von GaAs zu AlAs/GaAs.

In Analogie zur Atomphysik werden die zweifach entarteten Energieniveaus in (ii) als „s-Schale“ (Drehimpulsquantenzahl  $l = 0$ , Spin  $s = \pm 1/2$ ) und die folgenden vierfach entarteten Niveaus in (iii) als „p-Schale“ ( $l = \pm 1$ ,  $s = \pm 1/2$ ) bezeichnet, wobei im Gegensatz zur Atomphysik bei den Quantenpunkten die p-Schale bereits mit vier anstatt mit sechs Elektronen vollständig gefüllt ist. Dies liegt an der geringeren, scheibenförmigen Symmetrie der Quantenpunkte gegenüber der sphärischen Symmetrie der Atome (ausführliche Diskussion siehe Kapitel 2.1). Die Entartung der Zustände ist dabei, wie im Kapazitätsspektrum zu sehen ist, wegen der Coulomb-Wechselwirkung aufgehoben. Die Niveaus werden im Folgenden entsprechend mit  $s_1, s_2$  und  $p_1$  bis  $p_4$  durchnummeriert.

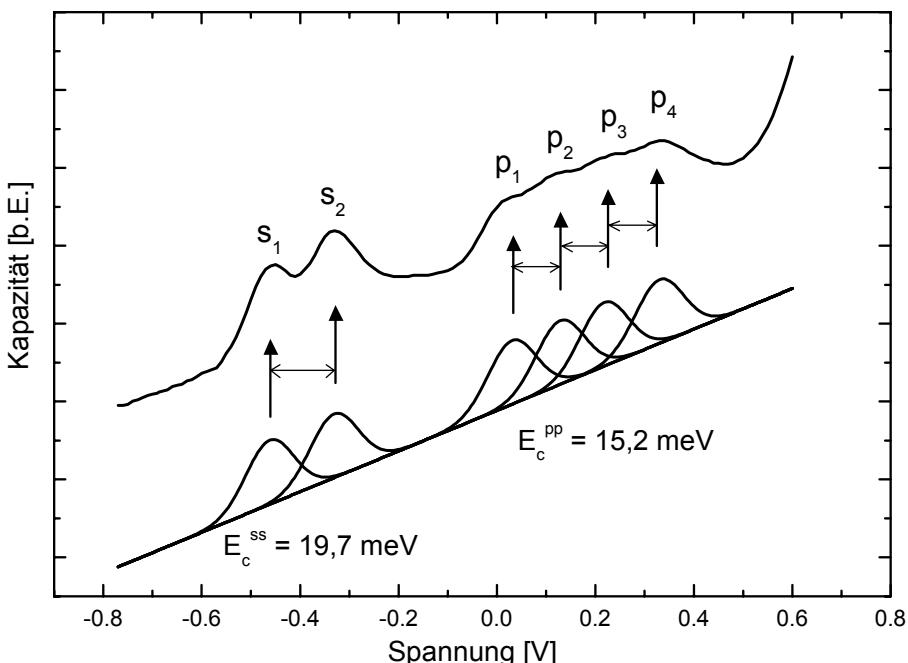
Die Aufspaltung der s- bzw. p-Niveaus ist dabei ein Maß für die Coulombblockade der jeweiligen Zustände. Eine quantitative Auswertung wird in Abb. 4.2 für die Probe 11157 vorgenommen.

Die in Abb. 4.1 spektroskopierte Probe des Materials MC27 besitzt eine nur recht kleine Tunnelbarriere von  $22\text{nm}$ . Während der Verlauf des Spektrums auf

gut ausgebildete Quantenpunkte schließen lässt, ist es jedoch an diesem Material wegen der zu kleinen Barriere im zur Verfügung stehenden Frequenzbereich nicht möglich, frequenzabhängige Auswirkungen auf die Tunneldynamik zu messen, so wie sie sich an größeren Barrieren (ab 35nm) zeigen (siehe Kap. 4.1.4).

### 4.1.2 Auflösen der P-Niveaus

Bezüglich des Auflösens der vier Maxima der p-Schale ist in Abb. 4.2 ein Ausschnitt der CV-Kurve für eine an der Ruhr-Universität Bochum gewachsene Quantenpunktprobe (11157) gezeigt. Dort lassen sich neben den s-Niveaus auch gut die vier einzelnen Maxima der p-Schale erkennen.



**Abbildung 4.2:** Kapazitätsspektrum für das Probenmaterial 11157 mit einer Gatefläche von  $4,112 \cdot 10^4 \mu\text{m}^2$  bei 4243Hz. Die Tunnelbarriere beträgt 25nm. Zu erkennen ist die Auflösung der vier p-Niveaus, was für ein sehr homogenes Quantenpunktensemble spricht. Die unteren Kurven sind gaußförmige Anpassungen der darüber aufgetragenen Niveaus und zeigen die Einzelmaxima, die sich zur oberen Kurve addieren.

Um diese Niveaus sehen zu können, sind sehr homogene Quantenpunkt-Ensembles nötig, weil die Ladeniveaus bei einem inhomogenen Ensemble zu sehr verbreitert sind und somit ineinander übergehen. Wegen der guten Qualität dieses Probenmaterials wurde es verwendet, um Dispersionsmessungen im Magnetfeld durchzuführen (siehe Kap. 4.5.2).

Der Einsatz in Abbildung 4.2 zeigt die entfalteten Lademaxima in Form von Gaußfunktionen für die Niveaus s<sub>1</sub>, s<sub>2</sub>, und p<sub>1</sub> bis p<sub>4</sub>; sie wurden der Übersicht-

lichkeit halber vertikal nach unten verschoben. Die Pfeile zeigen auf die jeweiligen darüber liegenden Maxima, die in der Kapazitätskurve ineinander übergehen. Die Coulombblockade der s-Niveaus ergibt sich zu  $E_c^{ss} = 19,7\text{meV}$  und die der p-Niveaus zu  $E_c^{pp} = 15,2\text{meV}$ .

Ein anderer Messansatz, um die p-Niveaus auflösen zu können, ist eine drastische Reduktion der Zahl der gleichzeitig spektroskopierten Quantenpunkte, wie es von [Miller98] gezeigt wurde. Dort zeigten sich bei der experimentellen Untersuchung von sehr kleinflächigen Proben mit sehr kleinen Gates (es wurden Ensembles bis hinunter zu 1500 Quantenpunkten vermessen) ebenfalls eine entsprechende Auflösung der Niveaus.

### 4.1.3 Quantenpunktdichte

Aus den Kapazitätsspektren lässt sich die Quantenpunktdichte des Probenmaterials bestimmen, da die Fläche unter den Lademaxima ein Maß für die den Quantenpunkten zugeführte Ladung ist. Die Ladung pro Fläche sei  $Q/A$ , dann gilt  $Q/A = ND_d$ , wobei  $N$  die Anzahl der Elektronen im Quantenpunkt ist und  $D_d$  die Quantenpunktdichte. Die Ladung  $Q$  errechnet sich nach  $Q = \lambda \int (C - C_b) dU$ , d.h. sie lässt sich bestimmen durch Integration des Kapazitätssignals  $C$  nach Abzug der Hintergrundkapazität  $C_b$ , wobei die Multiplikation mit dem Hebelarm aus der Tatsache herröhrt, dass die den Quantenpunkten zugeführte Ladung um den Faktor  $\lambda$  größer ist, als die in der Gateelektrode induzierte Ladung (vergl. Kap. 3.3).

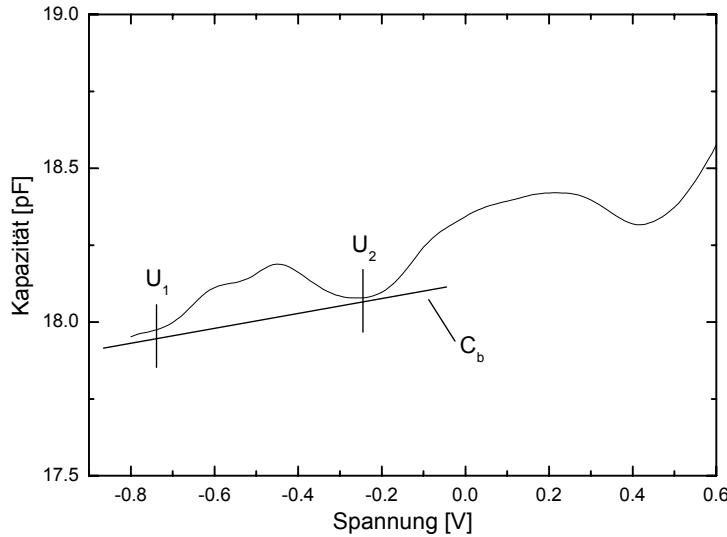
Nach dem Besetzen des zweiten s-Niveaus befinden sich genau  $N = 2$  Elektronen im Quantenpunkt; damit ergibt sich nach Subtraktion einer linearen Hintergrundkapazität und nach Integration der Fläche unter den Maxima der s-Niveaus die Quantenpunktdichte  $D_d$  zu:

$$D_d = \frac{\lambda}{2A} \left( \int_{U_2}^{U_1} [C - C_b] dU \right). \quad (4.1)$$

Dabei ist  $A$  die verwendete Gatefläche,  $\lambda$  ist der Hebelarm und die Hintergrundkapazität ist mit  $C_b$  bezeichnet. Die Integration erfolgt zwischen den Grenzen direkt vor dem Laden des ersten ( $U_1$ ) bis direkt nach dem Laden des zweiten Elektrons ( $U_2$ ). Abb. 4.3 veranschaulicht dies. Dort ist ein Kapazitätsspektrum gezeichnet, mit den Integrationsgrenzen  $U_1$  und  $U_2$ , sowie der linearen Hintergrundkapazität  $C_b$ .

In Tabelle 4.1 sind die aus den Kapazitätsspektren berechneten Quantenpunktdichten für die Probenmaterialien MC23, MC35 und 11157 aufgelistet.

Zum Vergleich wurden für die Probe 11157, an der zusätzliche Quantenpunkte an der Oberfläche aufgewachsen waren, auch die ermittelten AFM-Daten für eine Abschätzung der Quantenpunktdichte verwendet.



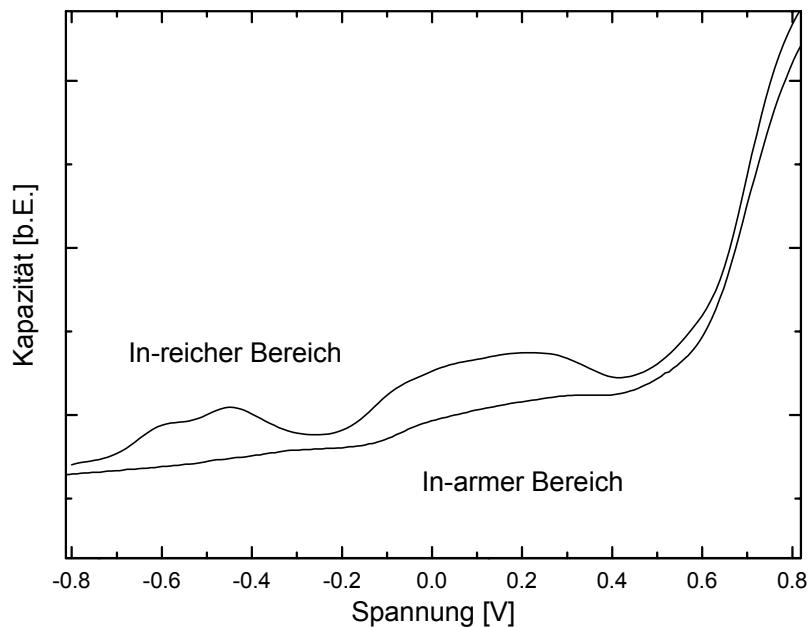
**Abbildung 4.3:** Kapazitätsspektrum von MC35 zur Auswertung der Quantenpunktdichte. Nach Abzug einer linearen Hintergrundkapazität  $C_b$  wird die Fläche zwischen  $U_1$  und  $U_2$  integriert.

**Tabelle 4.1:** Quantenpunktdichten für verschiedene Probenmaterialien

Material	Quantenpunktdichte aus Kapazitätsspektrum	Quantenpunktdichte aus AFM-Aufnahme
MC23	$5,6 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$	-
MC35	$2,1 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$	-
MC35 (Indium-arm)	$2,6 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$	-
11157	$7,2 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$	$1,4 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$

Die AFM-Untersuchungen an 11157 ergaben eine ungefähre Zahl von 140 Quantenpunkten auf einer Fläche von  $1\mu\text{m} \cdot 1\mu\text{m}$ , was eine abgeschätzte Quantenpunktdichte von  $1,4 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$  ergibt (vergl. auch die Bildschirmkopie der AFM-Auswertung in Anhang D). Dieser Wert ist also etwa um einen Faktor 2 größer als der, der sich aus den Kapazitätsdaten errechnet. Diese Abweichung könnte damit erklärt werden, dass mit den AFM-Untersuchungen die zusätzlich an der Oberfläche aufgedampften Quantenpunkte abgebildet werden und nicht die in der Heterostruktur eingebetteten. Für die Quantenpunkte an der Oberfläche aber liegen andere Wachstumsbedingungen vor, wie beispielsweise eine andere Probentemperatur, die wiederum ein sehr kritischer Parameter beim MBE-Wachstum ist (siehe auch Kap. 3.2).

Wie in Kap. 3.2 erwähnt, ist die Quantenpunktdichte nicht nur abhängig vom Probenmaterial, sondern – falls beim Wachstum ein Gradient bezüglich des Indium-Angebots verwendet wurde – auch von der Position auf dem Wafer. Damit ergibt sich eine hohe Dichte von Quantenpunkten in der Mitte des Wafers, am Rand dagegen eine geringere. Zum Vergleich sind in Abb. 4.4 zwei Kapazitätskurven vom Material MC35 gezeigt, die eine für eine Probe aus der Mitte des Wafers, die andere für eine Probe aus einem Randstück. Deutlich zu sehen ist die stark unterschiedliche Ausprägung der Lademaxima, was sich in Gl. (4.1) in der geringeren Größe des Integrals und damit der Quantenpunktdichte  $D_d$  äußert.



**Abbildung 4.4:** Zwei Kapazitätsspektren vom Material MC35 bei jeweils 4443 Hz. Die obere Kurve stammt von einer Probe aus dem Indium-reichen Bereich des Wafers, die untere aus einem Indium-armen Bereich. Die der Übersichtlichkeit halber leicht vertikal gegeneinander verschoben dargestellten Kurven zeigen deutlich unterschiedlich ausgeprägte Lademaxima.

Dabei ist auffällig, dass die Lademaxima der s-Niveaus für den Indium-armen Bereich fast gar nicht zu sehen sind, während die Maxima der p-Zustände noch gut erkennbar vorliegen. Außerdem sind die Maxima der p-Niveaus der unteren Kurve ein wenig gegenüber der oberen auf der Spannungsachse verschoben. Dies könnte an leicht unterschiedlichen Schottky-Barrieren der beiden Proben wegen einer Variation in der Materialzusammensetzung der Gateelektroden liegen.

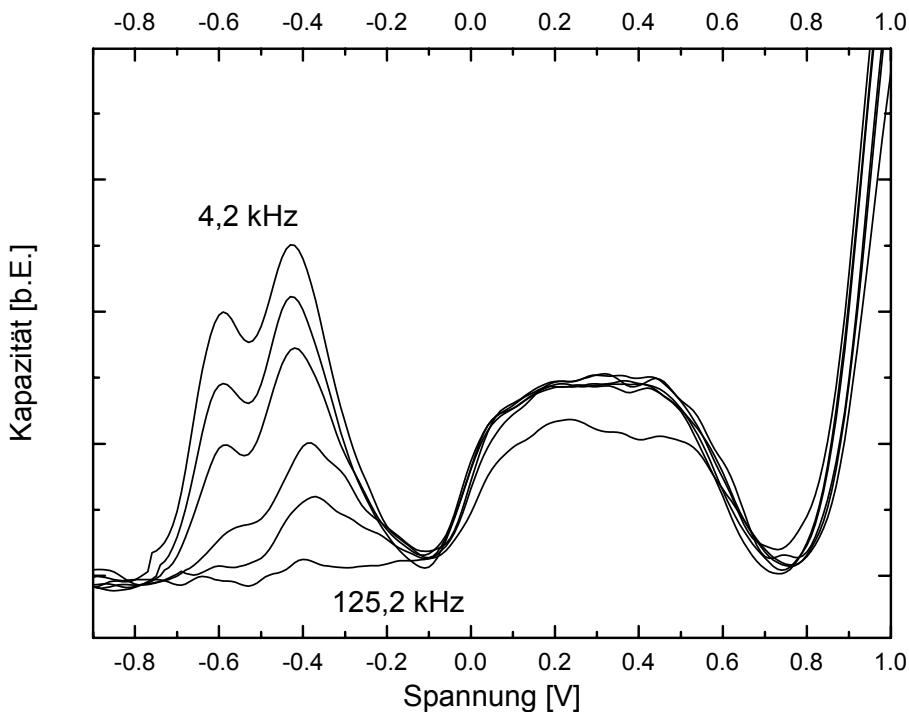
Für die Kurve des Indium-armen Bereichs errechnet sich die Quantenpunktdichte zu  $D_d = 2,6 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$  für das Material MC35, also ungefähr eine Größenordnung weniger als für den Indium-reichen Bereich (vgl. Tabelle 4.1).

## 4.2 Tunneldynamik

In diesem Abschnitt soll genauer auf den Prozess des Tunnelns der Elektronen vom Rückkontakt, dem Elektronenreservoir, in die Quantenpunkte eingegangen werden. Zur Untersuchung der Tunneldynamik sind Proben notwendig, die eine Tunnelbarrierenbreite von mindestens 35nm besitzen, da erst ab dieser Dicke die Tunnelzeiten der Elektronen in einem Bereich liegen, auf den mittels frequenzabhängiger Kapazitätsspektroskopie Einfluss genommen werden kann. Als weitere Messmethode wird in diesem Abschnitt die Impedanzspektroskopie verwendet, um die Tunnelmechanismen zu untersuchen.

### 4.2.1 Kapazitätsmessungen

In Abb. 4.5 sind die Kapazitätsspektren einer Probe vom Material 11210 mit einer Tunnelbarriere von 40nm und einem Hebelarm von  $\lambda = 7$  in Abhängigkeit der Gatespannung gezeigt. Die verschiedenen Kurven wurden für Wechselstromfrequenzen zwischen 4,2 kHz und 125,2 kHz aufgenommen. In der Auftragung ist die Hintergrundkapazität als lineares Signal subtrahiert worden. Gut zu erkennen



**Abbildung 4.5:** Kapazitätskurven der Probe 11210 für die Frequenzen 4,2kHz, 8,2kHz, 33,2kHz, 47,2kHz und 125,2kHz. Gut zu sehen ist der Einbruch der Kapazitätssignale mit steigender Frequenz zuerst für die s-Niveaus, dann ab 125,2kHz auch für die p-Niveaus. Die geometrische Kapazität ist als linearer Hintergrund abgezogen. Aufgenommen wurde die Kurve mit einem Strom-Spannungswandler.

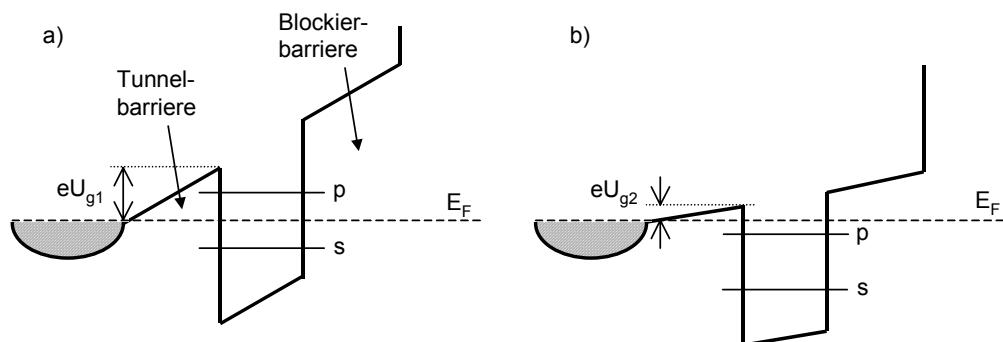
sind die sich verringernden Kapazitätssignale der verschiedenen Lademaxima mit steigender Frequenz der angelegten Wechselspannung. Die beiden Lademaxima der s-Niveaus verringern sich zuerst, bei höheren Frequenzen stellt man dann auch eine Auswirkung auf das breite Plateau der p-Niveaus fest.

Deutet lässt sich der frequenzabhängige Einfluss folgendermaßen. Die mit zunehmender Frequenz kleiner werdenden Kapazitätssignale sind gleichbedeutend mit einer Unterdrückung der Tunnelprozesse. Ab 125 kHz sind für die beiden s-Niveaus praktisch keine Kapazitätssignale mehr sichtbar, die Kurve verläuft bis  $-0,1\text{V}$  beinahe flach.

Die Tunnelzeit  $\tau = RC_q$  ist dabei ein durch die Wahl der Tunnelbarriere fest vorgegebener Parameter. Sie steigt bei größer werdender Tunnelbarriere  $d_1$  an. Da nun die Probe der in Abb. 4.5 gezeigten Kurven eine sehr große Tunnelbarriere besitzt, können die Elektronen bei hoher Wechselstromfrequenz die Barriere nicht mehr schnell genug durchtunnellen und die Lademaxima knicken mit wachsender Frequenz ein.

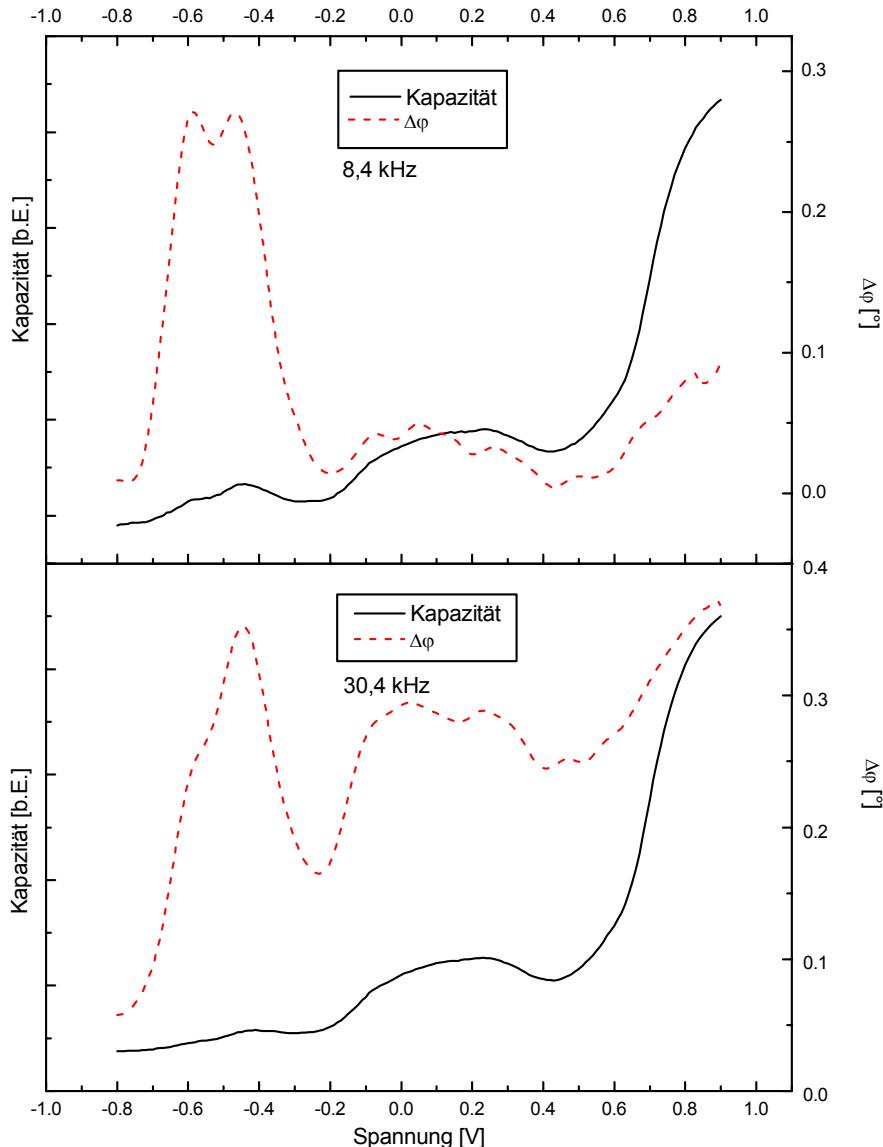
Die s-Zustände der Elektronen sind zwar auch bei  $U_g > -0,1\text{V}$  weiterhin noch besetzt, aber in der Betrachtung der Tunneldynamik finden bei diesem Frequenzwert keine weiteren Lade- und Entladeprozesse auf Grund der Wechselspannung mehr statt.

Eine Erklärung für das unterschiedliche Antwortverhalten der einzelnen Grundzustandsniveaus findet sich bei Betrachtung der energetischen Lage der Niveaus bei unterschiedlichen Gatespannungen. Zum Laden der p-Niveaus sind höhere Gatespannungen nötig als für die s-Niveaus. Mit höherer Spannung verringert sich aber auch, wie in Abb. 4.6 dargestellt, die Höhe der Tunnelbarriere gemäß dem Hebelarmargument, mit dem die Leitungsbandkante gegenüber dem Fermi-Niveau verschoben wird. Aus diesem Grund bleibt das Tunneln der Elektronen in die p-Niveaus länger erhalten und das Kapazitätssignal knickt erst später, also bei höheren Frequenzen, ein.



**Abbildung 4.6:** Darstellung der Tunnelbarrierenhöhe für zwei unterschiedliche Spannungen  $U_g$ . a) Bei der Spannung  $U_{g1}$  ergibt sich eine hohe Tunnelbarriere, die s-Zustände sind besetzt, aber die p-Zustände noch unbesetzt. b) Durch Erhöhung der Spannung auf  $U_{g2}$  wird die Leitungsbandkante nach unten verschoben und damit die Tunnelbarriere erniedrigt. Bei dieser Spannung sind gerade die p-Zustände besetzt worden.

Eine weitere Betrachtungsmöglichkeit der frequenzabhängigen Tunneldynamik liegt in der Auswertung der Phasenlage von angelegter Spannung  $U_g$  und resultierendem Strom. Idealerweise sollte die Phase für ein rein kapazitives Ersatzschaltbild bei  $90^\circ$  liegen. Interessant für die Tunneldynamik ist nun die Auswertung der Phasenbeziehung bei einer bestimmten Frequenz in Abhängigkeit von  $U_g$ .



**Abbildung 4.7:** Zwei Kapazitätskurven des Materials MC35 (durchgezogenen Linien) und die zugehörigen Phasenänderungen  $\Delta\phi$  (gestrichelten Linien) für 8,4kHz (oberes Diagramm) und für 30,4kHz (unteres Diagramm). Für die Phase wurde der Anfangswert bei  $U_g < -0,8V$  als Bezugspunkt gesetzt.

Betrachtet wird dabei nicht der Absolutwert der Phase, sondern das Differenzsignal  $\Delta\varphi$  in Abhängigkeit der Gleichspannung, wobei der Anfangswert der Phase bei  $U_g < -0,8V$  als Bezugspunkt gesetzt worden ist.

Dies ist in Abb. 4.7 dargestellt. Zu sehen sind jeweils eine Kapazitätskurve (durchgezogene Linie) und die zugehörige Phasenlage (gestrichelte Linie) für 8,4kHz (oberes Diagramm) und für 30,4kHz (unteres Diagramm). Man erkennt in den Phasenlagen die Struktur der Kapazitätssignale wieder, allerdings deutet der Verlauf auf eine empfindlichere Signalabhängigkeit hin, als die reinen Kapazitätsverläufe. Zwar ist die absolute Größe der Phasenänderung dabei mit circa  $0,3^\circ$  recht klein, aber in der relativen Auftragung sehr deutlich zu sehen.

Bei den Gatespannungen, bei denen die Kapazitätssignale der s-Niveaus liegen ( $U_g = -0,6$  bzw.  $-0,4V$ ), beobachtet man für 8,4kHz eine gegenüber dem Anfangswert von  $0^\circ$  deutliche Änderung des Phasensignals um circa  $0,3^\circ$ , wobei eindeutig die einzelnen Maxima zu sehen sind. Ab  $-0,2V$  werden dann die vier p-Niveaus besetzt, wobei auch hier eine deutlichere Struktur in der Phase zu sehen ist. Die Änderung der Phase ist für die p-Niveaus bei dieser Frequenz aber noch klein ( $\Delta\varphi < 0,05^\circ$ ).

Bei 30,4 kHz dagegen sieht man bereits einen Rückgang der Phasenänderung für das erste s-Niveau, während sie nun bei den p-Niveaus deutlich beginnt zuzunehmen.

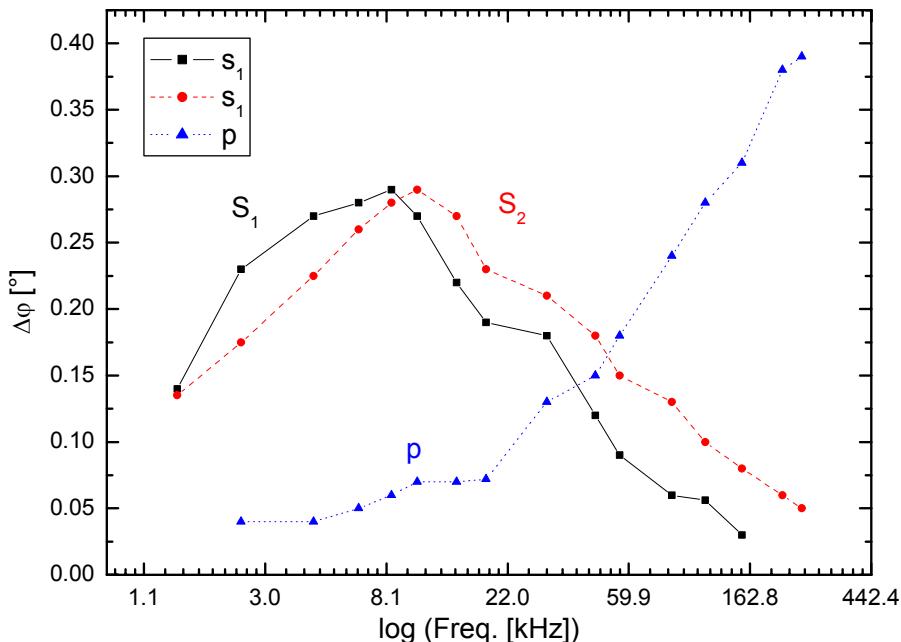
Damit ergibt sich eine weitere Möglichkeit zur Betrachtung der Frequenzabhängigkeit der Tunneldynamik, so dass es möglich ist, zusammen mit den Kapazitätsdaten mehr Informationen über das Probensystem zu erhalten.

Abbildung 4.8 zeigt die Änderung des Differenzsignals in der Phasenlage, ausgewertet für die Lademaxima der s-Niveaus (Rechtecke und Kreise) und für das breite Maximum der p-Niveaus (Dreiecke). Zu verstehen ist der Phasenverlauf in Abb. 4.8 mit den Überlegungen, die in Kap. 2.1.8 dargestellt sind. Dort wurden die frequenzabhängigen Grenzfälle des Ersatzschaltbildes diskutiert, wobei die Phase zuerst bei niedrigen Frequenzen im rein kapazitiven Fall „stabil“ bei ihrem Maximalwert verbleibt (nur sehr geringe Änderungen  $\Delta\varphi$ ). Steigt die Frequenz an, so werden auch die Phasenänderungen  $\Delta\varphi$  immer größer, bis zum Resonanzpunkt, bei dem  $\Delta\varphi$  sein Maximum erreicht.

Bei weiterer Erhöhung der Frequenz liegt wieder mehr und mehr der rein kapazitive Fall im Ersatzschaltbild vor und die Phasen selbst strebt wieder ihrem Ausgangswert zu, wobei  $\Delta\varphi$  wieder abnimmt.

Abb. 4.8 zeigt wie erwartet den oben beschriebenen Verlauf. Zuerst beobachtet man die Zu- und Abnahme in der Phasenänderung für das erste s-Niveau, dann dazu leicht auf der Frequenzachse verschoben den gleichen Verlauf für das zweite s-Niveau.

Für das erste s-Niveau ist liegt der Resonanzpunkt bei circa 7,9kHz, für das zweite s-Niveau bei etwa 8,1kHz. Der Einbruch der p-Niveaus zeigt sich in  $\Delta\varphi$  entsprechend erst bei viel höheren Frequenzen (deutlich erst ab circa 22 kHz), wobei sich der analoge Verlauf für diese Zustände ergäbe, wenn man noch höhere Frequenzen anlegte.



**Abbildung 4.8:** Auswertung der Phasenänderung in Abhängigkeit der Frequenz, welche logarithmisch aufgetragen ist, für die Probe MC35. Zu sehen ist, wie zuerst das  $s_1$ -Niveau bezüglich der Phaseninformation einbricht, danach das  $s_2$ -Niveau und erst bei wesentlich höheren Frequenzen die p-Niveaus.

Dies war jedoch im Rahmen der Messungen auf Grund des Frequenzlimits des Lock-In Verstärkers nicht möglich.

#### 4.2.2 Bestimmung der Tunnelzeiten

Mit Hilfe der Ausführungen in Kapitel 2.1.8, wo in Gl. (2.25) eine Formel für den Stromfluss hergeleitet wurde, kann nun die frequenzabhängige Kapazitätsänderung benutzt werden, um die Tunnelzeiten  $\tau$  für das erste und das zweite s-Niveau zu berechnen.

Der experimentellen Messung zugänglich ist der Imaginärteil des Stroms von Gl. (2.25), der als das kapazitive Signal  $C(\omega)$  bezeichnet sei. Bezeichnet man weiter die Kapazitätsänderung beim Laden der Quantenpunktniveaus mit  $\Delta C(\omega)$ , so gilt [Luyken99a]:

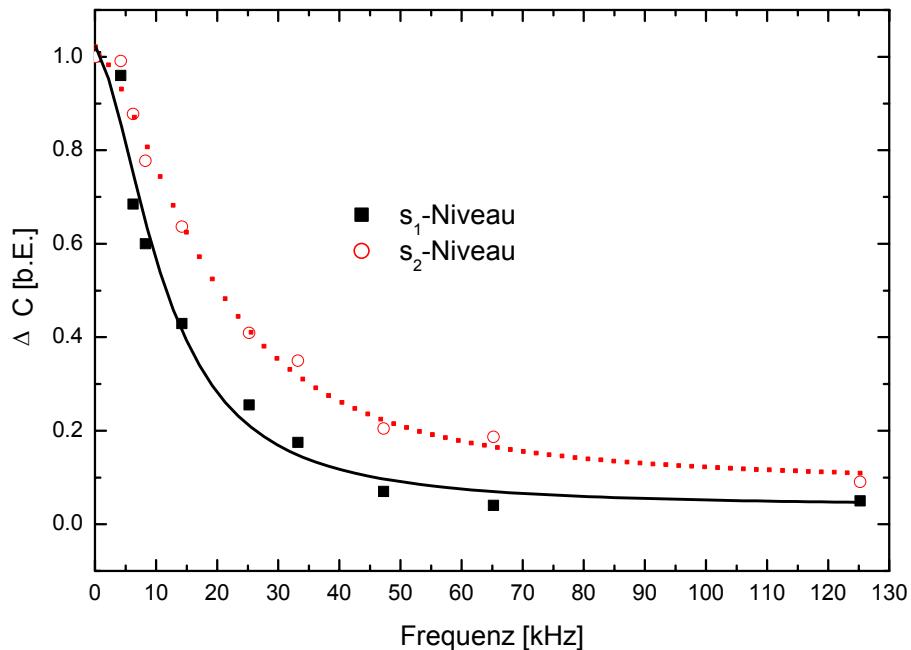
$$\frac{\Delta C(\omega)}{\Delta C(\omega \rightarrow 0)} = \frac{C(\omega) - C(\omega \rightarrow \infty)}{C(\omega \rightarrow 0) - C(\omega \rightarrow \infty)} = \frac{1}{1 + (\tau \delta \omega)^2}. \quad (4.2)$$

Dabei berechnet sich der Parameter  $\delta$  nach:

$$\delta = \frac{C_1 + C_2}{C_1 + C_2 + C_q}. \quad (4.3)$$

D.h. die Änderung des Kapazitätssignals lässt sich nach Abzug der Hintergrundkapazität  $C(\omega \rightarrow \infty)$  durch eine Lorentzfunktion der Form von Gl. (4.2) beschreiben.

Dadurch ist es nun möglich, die Tunnelzeiten zu berechnen, indem die Kapazitätsänderungen aus Abb. 4.5 in Abhängigkeit der Frequenz aufgetragen und eine Lorentzanpassung gemäß Gl. (4.2) vorgenommen wird (siehe Abb. 4.9).



**Abbildung 4.9:** Auswertung der Tunnelzeit durch Lorentzanpassungen an 11210. Aufgetragen ist das Differenzsignal der Lademaxima aus Abb. 4.4 in auf 1 normierten Einheiten über der Frequenz in kHz. Die Linien sind Lorentzanpassungen an die Messpunkte.

Mit  $\omega = 2\pi f$  ergibt sich für das Probenmaterial 11210 eine Tunnelzeit von  $\tau = 427\mu\text{s}$  für den  $s_1$ -Zustand und von  $\tau = 251\mu\text{s}$  für den  $s_2$ -Zustand. Dies ist in Übereinstimmung mit der Berücksichtigung der Coulombwechselwirkung, die eine Verbiegung und damit effektive Reduzierung der Tunnelbarriere für das zweite  $s$ -

Niveau hervorruft. In Tabelle 4.2 sind die Tunnelzeiten für die Probenmaterialien MC35 und 11210 eingetragen. Beide Materialien haben eine Tunnelbarriere von 40nm. In der letzten Zeile sind Werte angegeben, die sich aus Zerfallsmodell-Rechnungen ergeben.

**Tabelle 4.2:** Nach Gl. (4.2) berechnete Tunnelzeiten für die ersten beiden Ladeniveaus der Quantenpunkte und ihr Verhältnis  $\tau(s_1) / \tau(s_2)$

Probe	Tunnelzeit $\tau(s_1)$	Tunnelzeit $\tau(s_2)$	$\tau(s_2) / \tau(s_1)$
MC35	201 $\mu\text{s}$	109 $\mu\text{s}$	54%
11210	427 $\mu\text{s}$	251 $\mu\text{s}$	59%
Theorie	108 $\mu\text{s}$	55 $\mu\text{s}$	51%

Für das Material MC35 wurden Tunnelzeiten errechnet von  $\tau = 201\mu\text{s}$  für den  $s_1$ -Zustand und von  $\tau = 109\mu\text{s}$  für den  $s_2$ -Zustand. Die Absolutwerte der Tunnelzeiten für die beiden Proben 11210 und MC35 unterscheiden sich also sehr stark (Faktor 2,1), obwohl beide Proben nominell die gleiche Tunnelbarriere besitzen (40nm). Die Werte aus Zerfallsmodell-Rechnungen ergeben sich zu  $\tau(s_1) = 108\mu\text{s}$  und  $\tau(s_2) = 55\mu\text{s}$ .

Mit der Abschätzung von  $C_q$  nach Anhang C2 und den berechneten Tunnelzeiten kann dann auch nach  $RC_q = \tau$  der Tunnelwiderstand  $R$  angegeben werden.

**Tabelle 4.3:** Berechnete Quantenkappazitäten und Tunnelwiderstände für die ersten beiden Ladeniveaus der Quantenpunkte von MC35 und 11210

	MC35 ( $s_1$ )	MC35 ( $s_2$ )	11210 ( $s_1$ )	11210 ( $s_2$ )
$C_q$	10,8pF	10,9pF	9,8pF	15,7pF
$R$	$1,85 \cdot 10^6 \Omega$	$1,79 \cdot 10^6 \Omega$	$4,3 \cdot 10^7 \Omega$	$1,6 \cdot 10^7 \Omega$

## Allgemeine Fehlerquellen

Die Ursachen für die großen Abweichungen der Absolutwerte der Tunnelzeiten ergeben sich möglicherweise durch Unsicherheiten bei der Bestimmung der Tunnelzeiten auf Grund der Probengeometrie. So hängt der Parameter  $\delta$  (aus Gl. (4.3)) ab von den geometrischen Kapazitäten  $C_1$  und  $C_2$ , und somit von den Abständen  $d_1$  und  $d_2$ . Der effektive Wert des Abstandes  $d_1$  der Quantenpunkte zum Elektronenreservoir weicht jedoch ab vom geometrischen Wert, weil sich an der hochdotierten Schicht des Rückkontaktes mit der selbstkonsistenten Ladungsträgerver-

teilung eine Raumladungszone ausbildet. Dies erschwert die genaue Bestimmung von  $d_1$ . Ebenso verursachen die elektrostatischen Verhältnisse der Probengeometrie Deformationen im Leitungsbandverlauf, welche Einfluss auf die Tunnelzeit haben. Das von den Ladungsträgern im Quantenpunkt hervorgerufene elektrostatische Potenzial modifiziert die Bandstruktur in einem Bereich um die Quantenpunkte herum und führt zu der von der idealen Dreiecksform abweichenden Form der Tunnelbarriere. Da die Tunnelzeit  $\tau$  jedoch exponentiell von der Form, d.h. insbesondere von der Breite und der Höhe der Tunnelbarriere abhängt, wie sich durch eindimensionale WKB-Rechnungen ergibt, machen sich die Abweichungen sehr stark im Wert von  $\tau$  bemerkbar.

Die Quantenkapazität  $C_q$  wird dabei abgeschätzt nach Rechnungen, wie sie im Anhang dargestellt sind. Dort wird die nicht sehr genau bekannte geometrische Kapazität  $C_1$  durch die besser bekannten Größen ersetzt und mit den experimentell ermittelten Parametern der Hintergrundkapazität und der Änderung des Kapazitätssignals für den jeweiligen Zustand die Quantenkapazität berechnet. Im Anhang wird der mit dieser Abschätzung verbundene Fehler auf etwa 10% geschätzt.

### **Unterschiede der Proben MC35 und 11210**

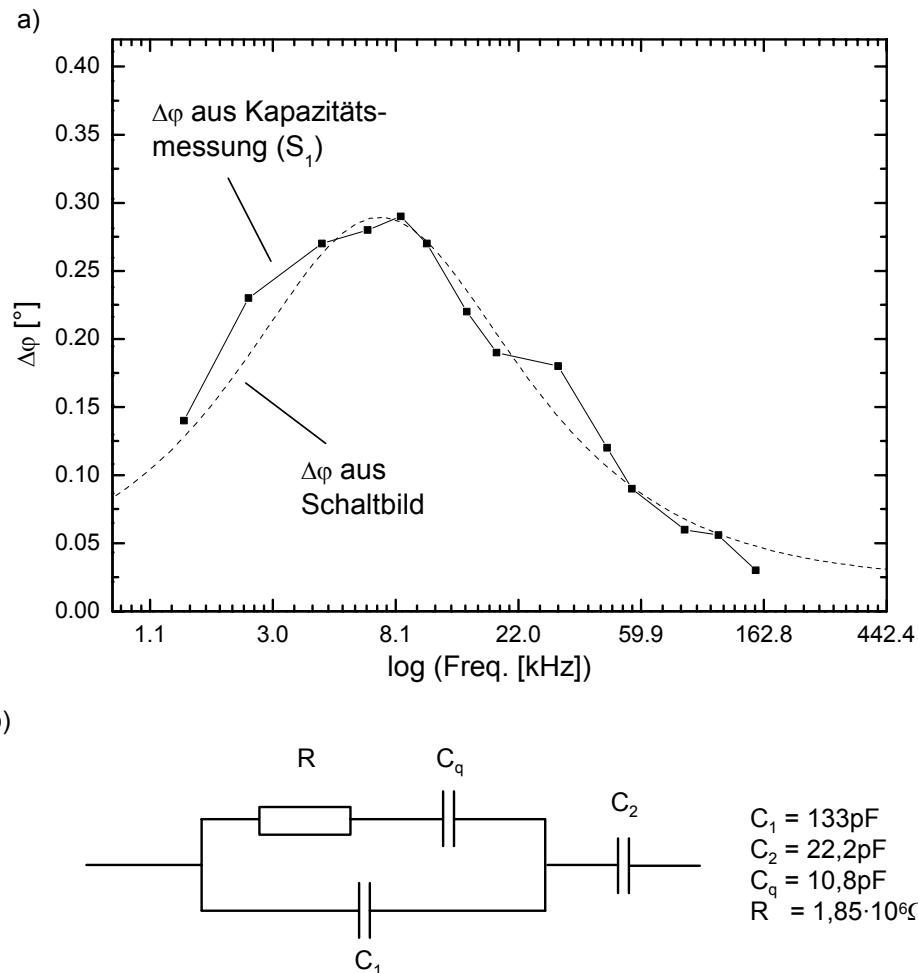
Die untersuchten Probenmaterialien MC35 und 11210 wurden mit etwas unterschiedlichen Wachstumsparametern an verschiedenen MBE-Anlagen gewachsen. So haben zwar beide Materialien eine Tunnelbarriere von nominell 40nm, doch das Material 11210 hat mit 20nm einen wesentlich schmaleren Rückkontakt als MC35, bei dem die Breite 80nm beträgt. Außerdem ist die Volumendotierung für 11210 mit  $2,15 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  nur etwa halb so groß wie für MC35 ( $4 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ ). Dies könnte die kleineren Tunnelzeiten für MC35 durch eine stärkere Ausdehnung der Raumladungszone, d.h. durch eine verkleinerte effektive Barrierenbreite erklären.

Betrachtet man jedoch die Verhältnisse  $\tau(s_2) / \tau(s_1)$  so ergeben sich für MC35 und 11210 Werte von 54% bzw. 59%. Das heißt, während sich die Absolutwerte drastisch unterscheiden, zeigen die Verhältniswerte eine sehr gute Übereinstimmung untereinander und auch in Bezug auf den Verhältniswert von 51%, der sich aus den Zerfallsmodellrechnungen ergibt.

Der Grund dafür könnte in parasitären Kapazitäten liegen, die sich aus Unterschieden in der verwendeten Probenhalterung für beide Proben ergeben. So wurden zur Kontaktierung im Probenstab verschiedene Messdrähte verwendet, deren Verwendung sich nach der Qualität der Gateelektroden richtete. Die parasitären Einflüsse könnten die Absolutwerte der Tunnelzeit etwas verändern, wohingegen die Relativwerte der beiden s-Niveaus nicht beeinflusst wären.

### 4.3 Auswertung der Phaseninformation

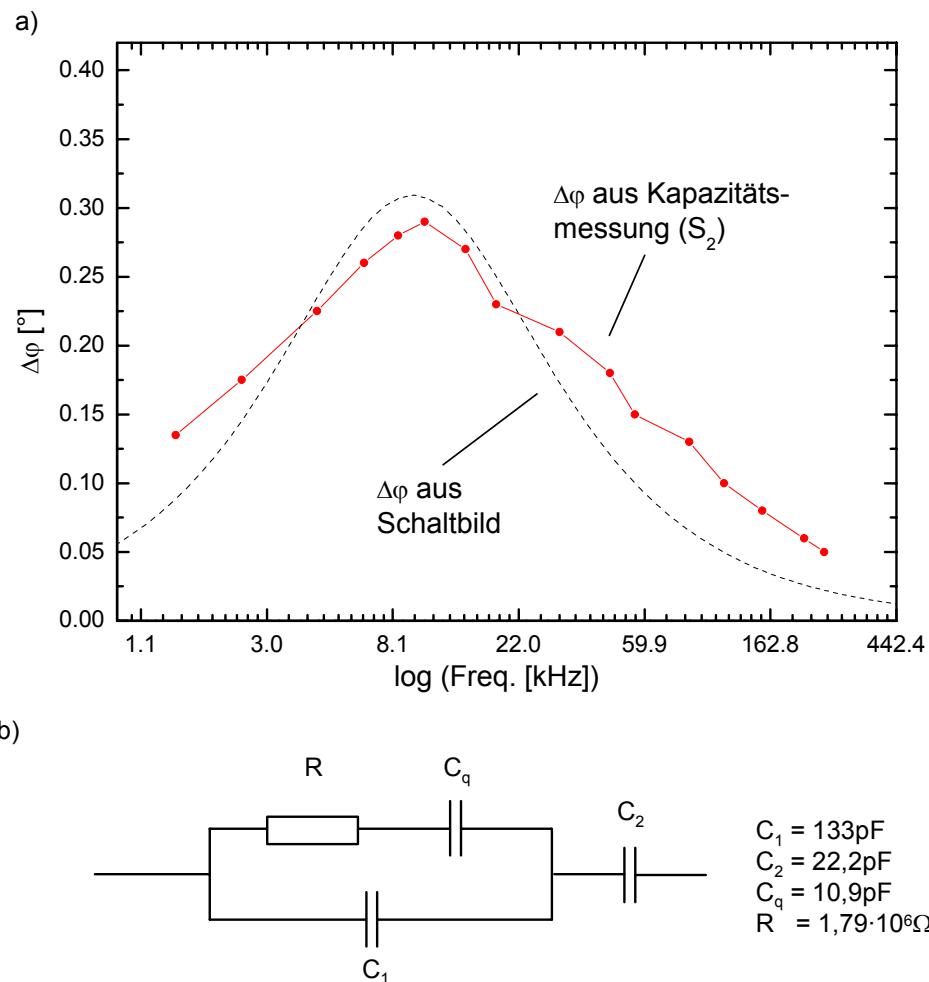
Die Auftragung der Phasenänderung aus Abb. 4.8 wird nun verglichen mit Berechnungen für das Ersatzschaltbild, wie es in Kapitel 2.1.8 vorgestellt worden ist. Die Werte der einzelnen Schaltelemente ergeben sich dabei aus den berechneten Werten für die Tunnelzeit  $\tau$ , Tunnelwiderstand  $R$  und der Quantenkapazität  $C_q$



**Abbildung 4.10:** a) Auftragung der Phasenänderung  $\Delta\varphi$  gegen die Frequenz für das erste s-Niveau (Probe MC35). Die Quadrate zeigen die Werte, die aus den Kapazitätsdaten ermittelt worden sind und die gestrichelte Linie ist eine Berechnung für das in b) gezeigt Schaltbild mit den angegebenen Werten

(vergl. Tab. 4.3). Abb. 4.10 zeigt noch einmal die Phasenänderung für das erste s-Niveau, wie sie aus den Kapazitätsdaten ermittelt worden ist (vergl. Abb. 4.8). Außerdem ist für das im unteren Teil der Abbildung gezeigte Schaltbild die berechnete Phasenänderung aufgetragen (gestrichelt). Es sei betont, dass es sich bei der gestrichelten Kurve *nicht* um eine Anpassungskurve handelt, sondern dass sie separat von der anderen berechnet wurde.

Das Schaltbild repräsentiert das Probensystem mit den geometrischen Kapazitäten  $C_1$  und  $C_2$ , sowie die Tunneldynamik durch die Quantenkapazität  $C_q$  und den Tunnelwiderstand  $R$ . Der direkte Vergleich der theoretischen und experimentellen Kurve zeigt eine sehr gute Übereinstimmung im Verlauf der Phaseninformation. Sowohl die Absolutwerte in der Phasenänderung (maximal circa  $0,3^\circ$ ), als auch die Form der Kurve wird durch die berechnete Kurve gut beschrieben. Die Quantenkapazität berechnet sich zu  $C_q = 10,8\text{pF}$  und der Tunnelwiderstand ergibt sich hier zu  $R = 1,85 \cdot 10^6\Omega$ . Die Resonanzbedingung  $\omega\tau = 1$ , also  $\omega RC_q = 1$  ist mit diesen Werten gut erfüllt.



**Abbildung 4.11:** a) Auftragung der Phasenänderung  $\Delta\varphi$  gegen die Frequenz für das zweite s-Niveau (Probe MC35). Die Quadrate zeigen die Werte, die aus den Kapazitätsmessungen experimentell ermittelt worden sind und die gestrichelte Linie ist eine Berechnung für das in b) gezeigt Schaltbild mit den angegebenen Werten

In Abb. 4.11 wurde die analoge Auftragung für das zweite s-Niveau aus Abb. 4.8 vorgenommen, mit einer entsprechenden Berechnung des in Abb. 4.8b dargestell-

ten Schaltkreises. Die Übereinstimmung im Phasenverlauf ist nicht ganz so gut wie für das erste s-Niveau, doch auch hier kann der qualitative Verlauf als befriedigend angesehen werden. Die Werte aus den Kapazitätssmessungen folgen der theoretischen Kurve tendenziell, wobei die Breite der theoretischen Resonanzkurve etwas geringer ist. Die experimentellen Werte verlaufen dabei eher gradlinig und der Maximalwert der Phasenänderung liegt etwa  $0,02^\circ$  (7%) niedriger als in der berechneten Phase. Die sich für  $s_2$  ergebenden Werte sind  $C_q = 10,9\text{pF}$ , Tunnelwiderstand  $R = 1,79 \cdot 10^6\Omega$ . Auch hier ist die Resonanzbedingung  $\omega\tau = 1$ , also  $\omega RC_q = 1$  gut erfüllt.

## 4.4 Untersuchung der Tunneldynamik mittels Impedanzspektroskopie

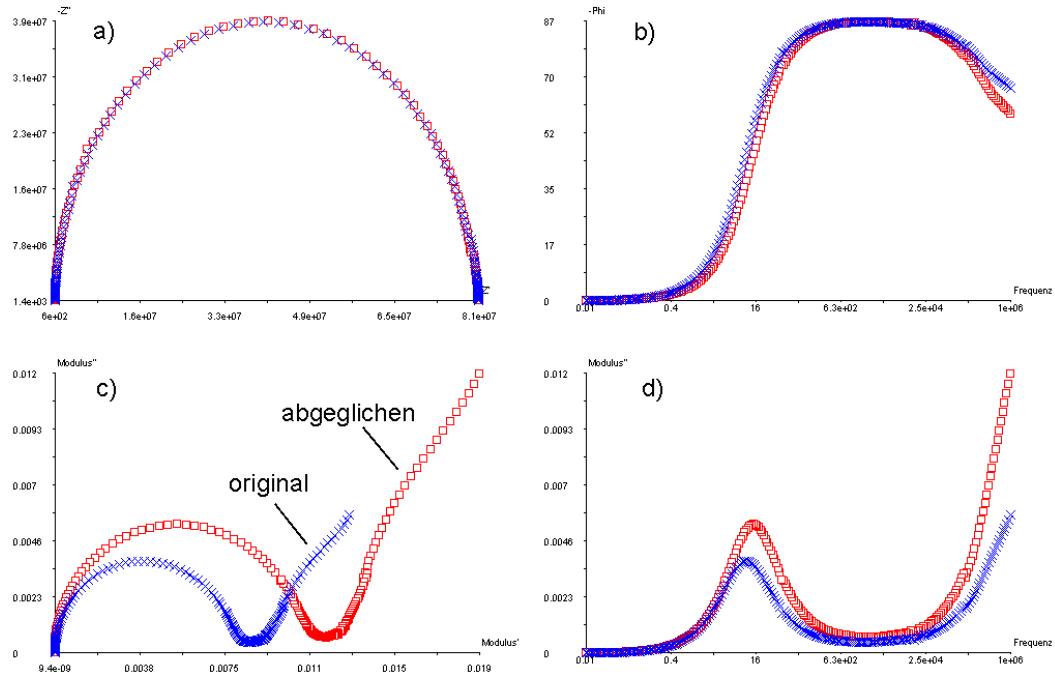
Die Impedanzspektroskopie wird in dieser Arbeit verwendet, da sie zum Einen eng verwandt ist mit dem Prinzip der Kapazitätsspektroskopie (siehe Kap. 2.2.2) und somit Vergleichsmessungen an den InAs-Quantenpunkten erlaubt. Zum Anderen stellt sie eine besonders geeignete Methode dar, durch entsprechende Auswertungen angenommene Ersatzschaltbilder für ein Probenystem miteinander zu vergleichen. So besteht eines der Standardverfahren bei der Auswertung von Impedanzmessungen in der Definition eines Schaltbildes, dessen Elemente (Widerstände, Kapazitäten etc.) bestimmte Anfangswerte zugewiesen bekommen. Mit einem geeigneten Computerprogramm zur Datenauswertung werden dann die Impedanzkurven des Ersatzschaltbildes durch automatische Variation der Größen von Widerständen, Kapazitäten etc., an die Messdaten angepasst. Neben der Überprüfung des grundsätzlichen Schaltraufbaus ist damit auch die Ermittlung der quantitativen Größen der Schaltelemente möglich.

Einschränkungen ergeben sich bei dieser Auswertungsmethode ganz allgemein dadurch, dass verschiedene Schaltbilder die gleichen Impedanzkurven besitzen können. Damit ist keine Eineindeutigkeit in der Zuordnung der Äquivalentschaltkreise möglich. Zudem müssen bei Impedanzauswertungen an realen Probenystemen sehr häufig Constant Phase Elemente (CPEs) verwendet werden [Fleig02]. Dies erschwert die physikalische Interpretation der Schaltung durch das „verteilte elektrotechnische“ Verhalten der CPEs, denen man direkt kein reales Schaltelement zuordnen kann (vergl. Kap. 2.2.3).

Im Folgenden wird das in Kapitel 2.1.8 gezeigte Schaltbild für hier untersuchten Probenstrukturen mit den Impedanzdaten verglichen. Die zugehörigen Impedanzmessungen bei 4,2K wurden mit dem in Kapitel 2.2.2 beschriebenen *Solartron SI 1255* durchgeführt. Parallel zur Probe wurde ein  $100\text{M}\Omega$ -Widerstand geschaltet, um den Messbereich in einen für das System günstigeren Bereich zu verschieben.

Der Messaufbau beinhaltet außer den in Kapitel 3.8.3 beschriebenen Elementen eine Probenhalterung mit verdrillten Kupferkabeln und einer BNC-Anschlussbox. Diese, zusammen mit den restlichen durch den Messaufbau bedingten Kabeln, bedingen parasitäre Kapazitäten, die in der Auswertung von den Probenkapazitäten getrennt werden müssen. Um dies zu ermöglichen, wurden neben den Messdaten der Probe auch die Probenhalterung und Kabel ohne eingebaute Probe ausgemessen. Mit diesen Daten konnte dann ein so genannter „Nullabgleich“ vorgenommen werden, bei dem die parasitären Kapazitäten herausgerechnet wurden.

In Abbildung 4.12 sind sowohl die originalen Messdaten (Kreuze) als auch die mittels eines Computerprogramms abgeglichenen Daten (Quadrate) gezeigt. Aufgetragen sind die Impedanz  $Z$  in der komplexen Ebene (Abb. 4.12a) und die Phasenlage in Abhängigkeit vom Logarithmus der Frequenz. (Abb. 4.12b).



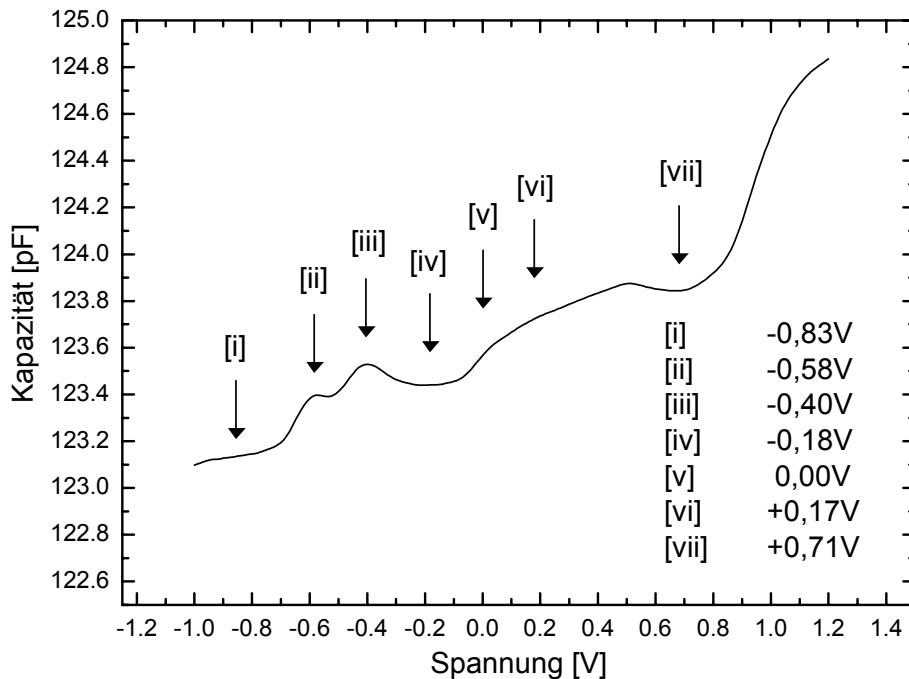
**Abbildung 4.12:** Originale Bildschirmkopie des Programms *Visplot*. Dargestellt sind jeweils die ursprünglichen Impedanzmessdaten (Kreuze) bei 0V Gleichspannung und die mittels eines Computerprogramms abgeglichenen Daten (Quadrate), aus denen die parasitären Kapazitäten des Messaufbaus eliminiert worden sind. Die Auftragungen zeigen in a) die Impedanz in der komplexen Ebene, in b) die Phasenlage in Abhängigkeit vom Logarithmus der Frequenz, in c) die komplexe Modulusfunktion und in d) den Imaginärteil des Modulus in Abhängigkeit vom Logarithmus der Frequenz.

Abb. 4.12c zeigt die komplexe Modulusfunktion und Abb. 4.12d den Imaginärteil des Modulus in Abhängigkeit vom Logarithmus der Frequenz.

In der Impedanzauftragung in Abb. 4.12a zeigt sich der Unterschied zwischen den originalen Messdaten und den abgeglichenen lediglich in einer Verschiebung der Messpunkte auf dem Halbkreis. Der Radius, der den Wert des parallel geschalteten Widerstands angibt (Soll  $100\text{M}\Omega$ , in der Auftragung circa  $81\text{M}\Omega$ ) bleibt dabei ebenso wie der Maximalpunkt des Halbkreises, der die Resonanzfrequenz des „RC-Glieds“ bestimmt, gleich.

Im Modulus dagegen, der, wie in Kap. 2.2.2 erwähnt, eine frequenzgewichtete Auftragung darstellt, zeigen sich bereits größere Unterschiede zwischen den abgeglichenen und den unabgeglichenen Daten (Abb. 4.12c).

Die abgeglichenen Daten werden im Folgenden verwendet, um an sie die Impedanzauftragungen eines Äquivalentschaltkreises anzupassen. Ausgangspunkt ist dabei das Schaltbild aus Kapitel 2.1.8, wobei der parallel geschaltete  $100\text{M}\Omega$ -Widerstand und zusätzlich noch ein kleiner Widerstand  $R_M$  ( $\sim \text{k}\Omega$ ) in Reihe, der die Leitungswiderstände berücksichtigt, zugefügt werden. Außerdem wurde im Ersatzschaltbild die Kapazität  $C_2$  ersetzt durch ein Constant Phase Element (CPE), um eine bessere Datenanpassung zu erreichen.

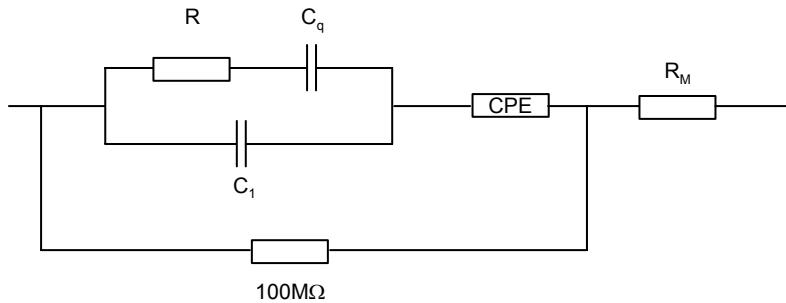


**Abbildung 4.13:** Kapazitätsspektrum der Probe 11210 bei 6243Hz. Die Pfeile markieren die gewählten Gleichspannungswerte, die die Punkte vor und während des Ladens der Quantenpunkte markieren und die für die Impedanzmessungen verwendet worden sind.

Die Impedanzmessungen wurden durchgeführt bei einer Wechselspannung von 20mV und in einem Frequenzbereich von  $10^{-2}$  bis  $10^6$  Hz. Wiederholte wurde die Messung dann für verschiedene, zusätzlich zur Wechselspannung angelegte Gleichspannungswerte, die sich aus dem Kapazitätsspektrum der Probe ableiteten

(vergl. Abb. 4.13). Dabei wurden Gleichspannungen gewählt, die Punkte vor und genau während des Ladens verschiedener Zustände der Quantenpunkte darstellen. Für die Probe 11210 waren dies die Werte  $U_g = -0,83\text{V}$ ,  $-0,58\text{V}$ ,  $-0,4\text{V}$ ,  $-0,18\text{V}$ ,  $0\text{V}$ ,  $0,17\text{V}$  und  $0,71\text{V}$ .

Die Auswertung der Impedanzdaten wurde mit dem Computerprogramm *Visfit* [Wiggers97] durchgeführt, mit dem es möglich ist, Schaltkreise zu definieren und die sich daraus ergebenden Impedanzdaten an die Messwerte anzupassen, indem die Werte der Schaltsymbole variiert werden. Das Programm arbeitet dabei nach dem Gaußausgleichsverfahren kleinster Fehlerquadratsummen (engl. NLLS, non linear least square). Abb. 4.14 zeigt das kombinierte Schaltbild, wie es zur Auswertung der Daten mit dem Programm *Visfit* verwendet worden ist.

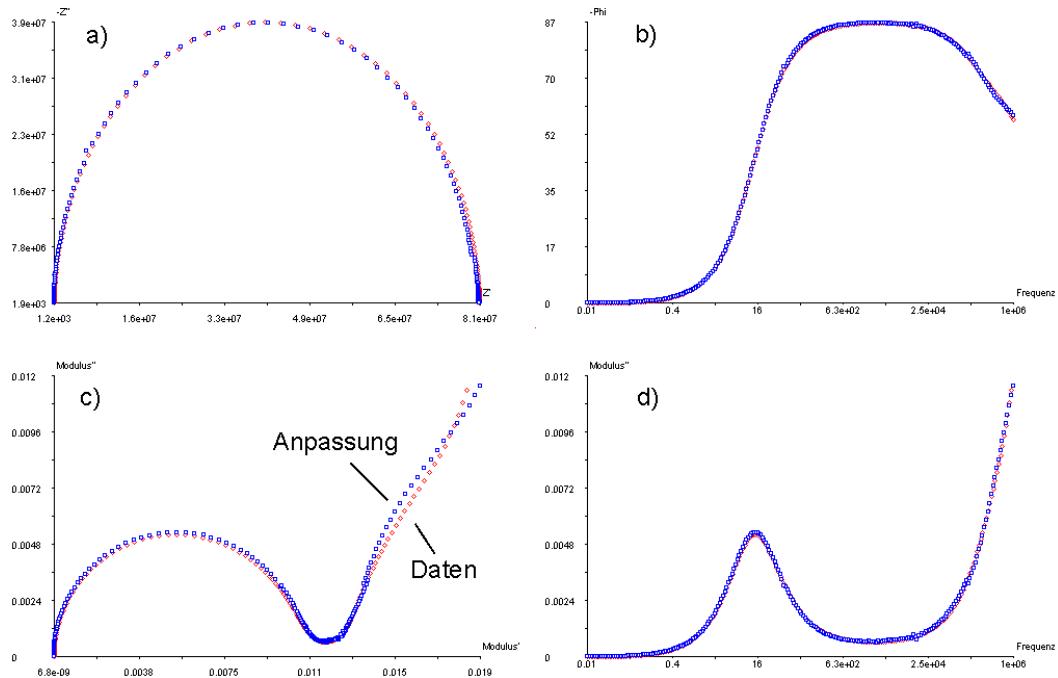


**Abbildung 4.14:** Äquivalentschaltkreis, der zum Auswerten der Impedanzdaten verwendet wurde

Die aus dem Programm *Visfit* stammenden Impedanzauftragungen sind in Abb. 4.15 zu sehen. Dargestellt sind die Auftragungen der Impedanz  $-Z''$  gegen  $Z'$ , die Modulusfunktion  $M''$  gegen  $M'$ , sowie Phasenlage und Realteil der Modulusfunktion halblogarithmisch gegen die Frequenz. In den Diagrammen sind jeweils die (abgeglichenen) Messdaten als Rauten, sowie die angepassten Daten des Schaltbildes als Quadrate dargestellt. Berücksichtigt wurde hier der gesamte aufgenommene Frequenzbereich, also  $10^{-2}$  bis  $10^6$  Hz. Die Datenanpassung ist, wie in Abb. 4.14 zu sehen, sehr gut. Theoretische und experimentelle Kurven liegen sehr gut übereinander, wobei der Fehler bei 5,7% liegt. Allerdings erhält man unrealistische Werte für die Schaltelemente des Ersatzschaltbildes, deren Größen schon mit der Kapazitätsspektroskopie ermittelt worden sind (siehe Kapitel 4.2 und 4.3). Die mit der Auswertung in Abb. 4.15 erhaltenen Größen sind  $R = 3,6\text{k}\Omega$ ,  $C_q = 197\text{pF}$ ,  $C_1 = 162\text{pF}$  und für das CPE erhält man eine äquivalente Kapazität von  $249\text{pF}$ . Letztere wurde dabei aus den Parametern  $A$  und  $\alpha$  des CPEs berechnet mit der Formel

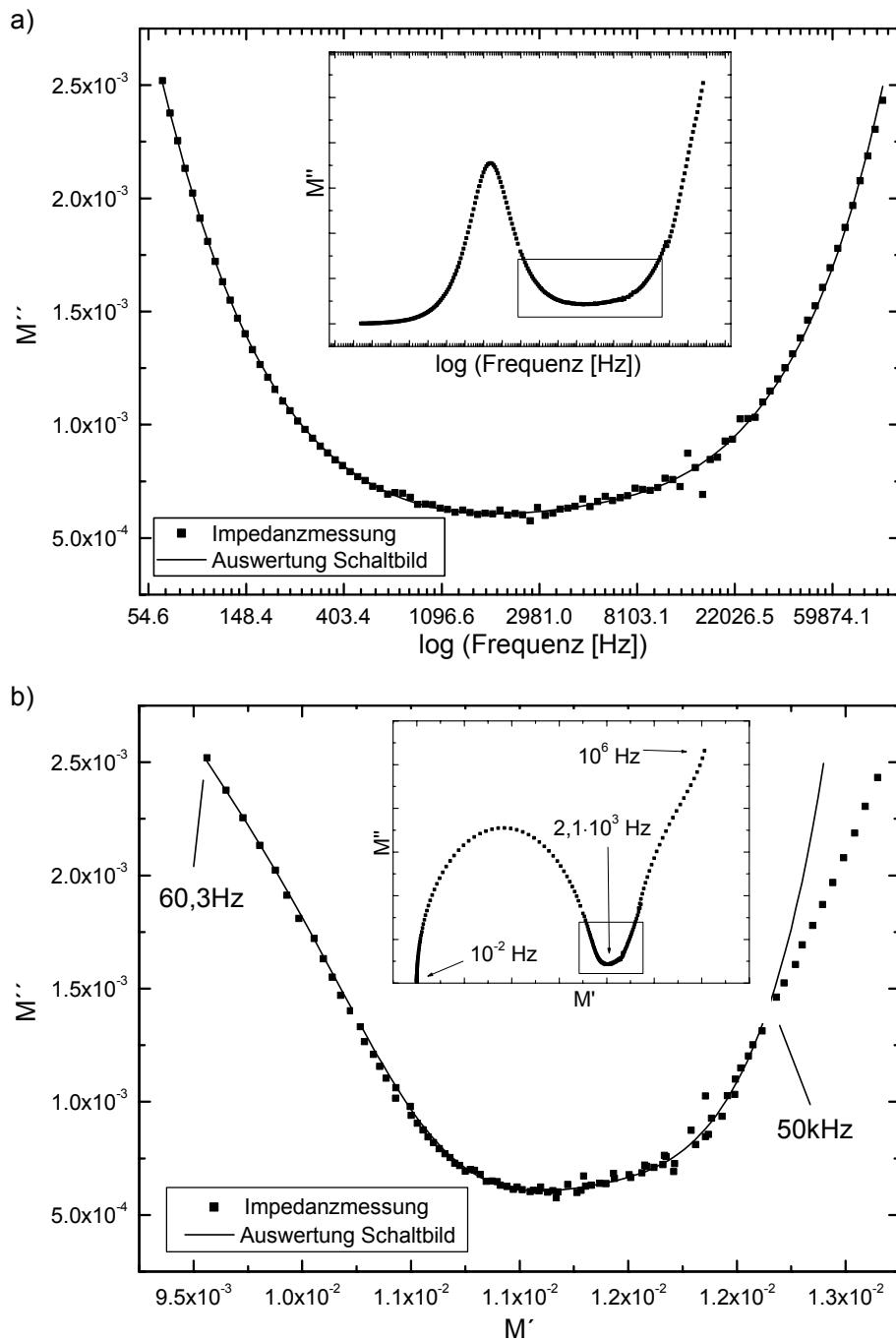
$$C_{equiv.} = \left( \frac{1}{A} \right)^{\frac{1}{\alpha}} R^{\frac{1}{\alpha}-1}. \quad (4.4)$$

Da diese Werte stark abweichen von den in Kapitel 4.2 ermittelten, wurde für die weitere Auswertung der Frequenzbereich stark eingeschränkt. Dies erfolgte aus Gründen, die nachfolgend dargestellt sind.



**Abbildung 4.15:** Originale Bildschirmkopie des Programms *Visplot* für die Impedanzauswertung. Dargestellt sind jeweils die abgeglichenen Impedanzmessdaten (Rauten) und die mittels *Visfit* aus dem Schaltbild (siehe Abb. 4.14) errechneten und angepassten Daten (Quadrate). Die Auftragungen zeigen in a) die Impedanz in der komplexen Ebene, in b) die Phasenlage in Abhängigkeit vom Logarithmus der Frequenz, in c) die komplexe Modulusfunktion und in d) den Imaginärteil des Modulus in Abhängigkeit vom Logarithmus der Frequenz. Der Fehler der Datenanpassung beträgt 5,7%.

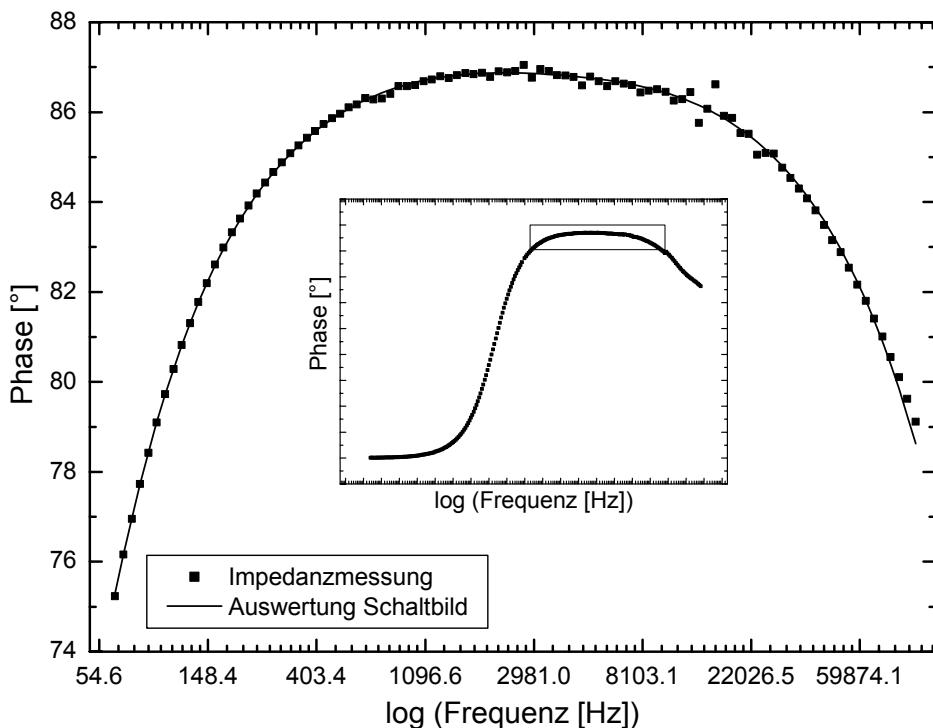
Der in der Kapazitätsspektroskopie verwendete Frequenzbereich lag zwischen wenigen hundert Hz und einigen hundert kHz. Die Auswertung der Impedanzdaten, die über einen sehr viel größeren Bereich aufgenommen worden sind, scheitert bei der Datenanpassung offensichtlich daran, den gesamten Bereich der Impedanzkurven gleichzeitig auszuwerten. Der Unterschied zwischen Impedanz- und Kapazitätsspektroskopie ist der, dass bei letzterer jeweils eine feste Frequenz eingestellt wird, bei der dann die energetische Lage der Quantenpunktniveaus durch Variation der Gleichspannung „abgetastet“ wird. Dabei ist es möglich, die dynamischen Tunnelphänomene über einen Kapazitätsanstieg im Prozentbereich gegenüber der Hintergrundkapazität auszuwerten. Bei der Impedanzmessung dagegen wir nur ein fester Gleichspannungswert eingestellt und der Parameter der Frequenz variiert. Im Folgenden wird nun der betrachtete Frequenzbereich der Impedanzmessung eingeschränkt, so dass er mit dem Bereich vergleichbar ist, der in der Kapazitätsmessung verwendet wurde.



**Abbildung 4.16:** Auswertung der Impedanzkurven für die Probe 11210. Die Quadrate geben die Messpunkte an, die Linien Datenanpassungen, die durch ein Schaltbild vorgenommen wurden. Die Einsatzzeichnungen zeigen jeweils die Gesamtkurven mit eingekästeltem Ausschnittsbereich.  
a) Auftragung des Imaginärteils der Modulusfunktion über den Logarithmus der Frequenz b) Modulus-Auftragung in der komplexen Ebene.

Abb. 4.16 zeigt die Datenanpassung für einen Bereich von 60,3 Hz bis 100kHz, der mit dem gleichen Schaltbild wie in Abb. 4.14 vorgenommen wurde. Die Quadrate repräsentieren dabei die Messpunkte, die durchgezogenen Linien die Datenanpassung des Ersatzschaltbilds.

Zur besseren Übersicht sind in den Einsatzzeichnungen in Abb. 4.15 auch noch einmal die Gesamtkurven gezeigt. Auch hier gelingt die Datenanpassung gut, der Fehler beträgt circa 2%. Die stärksten Abweichungen zeigen sich im rechten Teil der komplexen Modulusauftragung (Abb. 4.16b) für hohe Frequenzen ab etwa 50kHz.



**Abbildung 4.17:** Auswertung der Impedanzkurven für die Probe 11210. Die Quadrate geben die Messpunkte an, die Linien Datenanpassungen, die durch ein Schaltbild vorgenommen wurden. Aufgetragen ist die Phase über dem Logarithmus der Frequenz

Auch die Anpassung in der Phasenauftragung in Abb. 4.17 ist sehr gut für den Frequenzbereich von 60Hz – 100kHz. Der Verlauf der Phase ist bereits mittels der Kapazitätsdaten in Kapitel 4.3 ausführlich diskutiert worden.

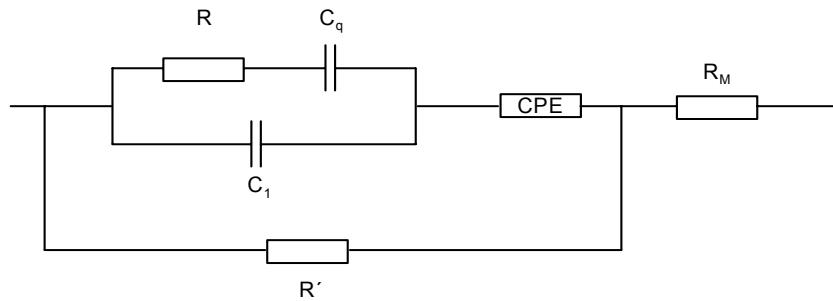
Tabelle 4.4 zeigt beispielhaft für einen Wert von 0V Gleichspannung die Ergebnisse für das Schaltbild, das in der obigen Auswertung ermittelt worden ist und das in Abb. 4.16 noch einmal dargestellt ist.

Für das CPE ergibt sich der Parameter  $\alpha$  zu  $\alpha = 0,93$ , das bedeutet, das CPE zeigt sehr stark kapazitives Verhalten. Mit dem ermittelten Wert von  $A = 1,2 \cdot 10^9$

kann nach Gl. (4.4) eine äquivalente Kapazität von  $668\text{pF}$  berechnet werden. Dieser Wert ist etwa doppelt so hoch, wie der für die geometrische Kapazität erwartete.

**Tabelle 4.4:** Ergebnisse für die Schaltelemente aus den Impedanzauswertungen für die Probe 11210 mit einer Tunnelbarriere von  $40\text{nm}$  und den Fall  $0\text{V}$  Gleichspannung. Die dritte Spalte zeigt die Vergleichswerte aus der Kapazitätsmessung.

Schaltelement	Wert für $0\text{V}$
$R$	$8,9 \cdot 10^6 \Omega$
$C_q$	$2,9\text{pF}$
$C_l$	$290\text{pF}$
CPE ( $C_2$ )	$A = 1,2 \cdot 10^9$ $\alpha = 0,93$
$C_2$ (äquiv.)	$668\text{pF}$
$R'$	$81\text{M}\Omega$
$R_M$	$1,1\text{k}\Omega$



**Abbildung 4.18:** Schaltbild für die Impedanzauswertung der Probe 11210. Der  $100\text{M}\Omega$ -Widerstand ist hier mit  $R'$  bezeichnet.

Sinn der Impedanzmessungen war es, die unterschiedlichen Werte für den Tunnelwiderstand und die Quantenkapazität bei verschiedenen Gleichspannungen zu bestimmen, bei denen die jeweiligen Zustände der Quantenpunkte mit Elektronen besetzt werden (vergl. Abb. 4.13). Tabelle 4.5 fasst die Ergebnisse zusammen, die durch Auswertungen analog der in Abb. 4.16 für die Gleichspannungen  $-0,4\text{V}$ ,  $-0,18\text{V}$ ,  $0\text{V}$  und  $0,17\text{V}$  ermittelt wurden. Dabei zeigten sich entgegen der Erwar-

tung keine signifikanten Unterschiede in den Werten der Quantenkapazität, welche für  $-0,18\text{V}$  (zwischen dem Laden des zweiten s- und des ersten p-Niveaus) deutlich geringer sein sollte, als für  $-0,4\text{V}$  oder  $0,17\text{V}$ . Auch die Größen der Tunnelwiderstände, die sich durch die Impedanzauswertungen ergeben, oszillieren in einer Weise, die nicht der Tunneldynamik aus dem Kapazitätsspektrum entspricht. Die Werte aus den Impedanzmessungen weichen dabei jeweils um etwa einen Faktor 4 – 5 von den in Kap. 4.2 bestimmten Werten ab.

**Tabelle 4.5:** Ergebnisse für die Schaltelemente aus den Impedanzauswertungen für die Probe 11210 mit einer Tunnelbarriere von  $40\text{nm}$ . Im unteren Teil sind Vergleichswerte aus der Kapazitätsmessung gezeigt.

Impedanz-messung	-0,4V (s <sub>2</sub> -Niveau)	-0,18V	0V	0,17V
$R$	$7,7 \cdot 10^6 \Omega$	$1,3 \cdot 10^7 \Omega$	$8,9 \cdot 10^6 \Omega$	$1,4 \cdot 10^7 \Omega$
$C_q$	3,4pF	3,0pF	2,9pF	2,8pF

Kapazitäts-messung	s <sub>2</sub> -Niveau
$R$	$3,2 \cdot 10^7 \Omega$
$C_q$	13,4pF

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass die Werte für die Quantenkapazität  $C_q$  und den Tunnelwiderstand  $R$  aus den Impedanzmessungen etwa eine Größenordnung von den aus den Kapazitätsmessungen gewonnenen abweichen. Letztere erscheinen jedoch sicherer, da die Kapazitätsmessungen eine erprobtere Methode zur Bestimmung dieser Größen darstellen. Mögliche Ursachen für die Abweichungen in der Impedanzauswertung ergeben sich durch das nicht physikalisch zu kalkulierende Einwirken des Constant Phase Elements, wie es in der Schaltung (siehe Abb. 4.14) verwendet werden musste. Ohne das CPE würde die Datenanpassung merklich schlechter, so dass keine Anpassungsrechnung mehr vorgenommen werden könnte. Die Werte für  $R$  und  $C_q$  sind offensichtlich im dargestellten Gesamtsystem zu klein, als dass sie zuverlässig mit dieser Auswertungs methode bestimmt werden könnten. Die kleinen Änderungen in diesen die Tunneldynamik bestimmenden Werten für unterschiedliche Gleichspannungen können nicht in befriedigender Weise aufgelöst werden.

## 4.5 Kapazitätsmessungen im Magnetfeld

Im Folgenden werden die Ergebnisse von Kapazitätsmessungen im Magnetfeld gezeigt. Die Proben befanden sich dazu in einem Kryostaten, mit welchem Magnetfelder von bis zu 11T erzeugt werden konnten. Die Ausrichtung der Proben erfolgte zum Einen senkrecht zum Feld, zum Anderen parallel dazu. Die Bezeichnungsweise ist in Abb. 4.19 dargestellt. Ein senkrecht angelegtes Magnetfeld bedeutet, dass die Feldlinien senkrecht zur Tunnelrichtung der Elektronen verlaufen, und somit auch senkrecht zur Wachstumsrichtung der Quantenpunkte (Abb. 4.19a). Ein parallel angelegtes Feld dagegen ist parallel zur Tunnelrichtung ausgerichtet und somit auch entlang der Wachstumsrichtung der Quantenpunkte (Abb. 4.19b).

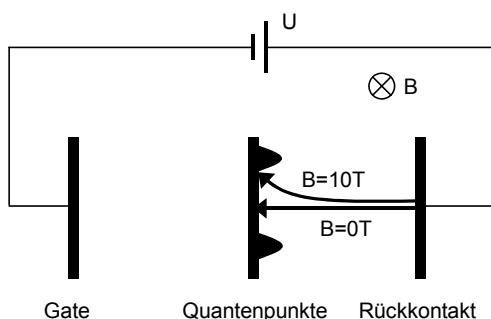


**Abbildung 4.19:** Symbole für die Magnetfeldrichtung. a) Magnetfeld senkrecht zur Tunnelrichtung der Elektronen b) Magnetfeld parallel zur Tunnelrichtung der Elektronen

### 4.5.1 Senrektes Magnetfeld

Außer der in Kap. 4.2 gezeigten Beeinflussung der Tunneldynamik über frequenzabhängige CV-Messungen stellt das Anlegen eines Magnetfeldes senkrecht zur Tunnelrichtung der Elektronen eine weitere Möglichkeit dar, Einfluss auf die Tunnelvorgänge zu nehmen.

Die Magnetfeldabhängigkeit des Tunnelns lässt sich in einem semiklassischen Bild erklären. Ohne angelegtes Magnetfeld ( $B = 0\text{T}$  in Abb. 4.20) tunneln die Elektronen zwischen Rückkontakt und Quantenpunkten auf geradem Weg hin- und her.



**Abbildung 4.20:** Schematische Darstellung der Kondensatorstruktur für das Tunnelverhalten der Elektronen unter Einfluss eines senkrechten Magnetfelds. Ohne Magnetfeld ( $B=0\text{T}$ ) tunneln die Elektronen auf gerader Strecke zu den Quantenpunkten und zurück, mit Magnetfeld ( $B=10\text{T}$ ) dagegen bewirkt die Lorentz-Kraft gekrümmte Elektronenbahnen, so dass sich effektiv eine größere Tunnelbarriere ergibt.

Mit einem zur Tunnelrichtung senkrecht angelegtem Magnetfeld jedoch werden die Elektronen auf Grund der Lorentz-Kraft so abgelenkt, dass sie gekrümmte Bahnen beschreiben (schematisch dargestellt für  $B = 10\text{T}$  in Abb. 4.20). Durch diesen Verlauf der Ladungsträger ergibt sich somit eine effektive Vergrößerung der Tunnelbarriere, so dass bei einer gegebenen Frequenz die Tunnelvorgänge mit ansteigendem Magnetfeld negativ beeinflusst werden.

Im Gegensatz zu den frequenzabhängigen Messungen, bei denen die Auswirkung auf die Tunneldynamik durch ein geändertes Antwortverhalten des Ersatzschaltbildes erklärt wurde (siehe Kap. 2.1.8 und Kap. 4.2.1), handelt es sich im Fall eines angelegten Magnetfeldes also um eine Änderung der Probeneigenschaften selbst. Dabei wird die Lokalisierung der Elektronen auf Grund der Bahnkrümmung der Ladungsträger bei steigendem Magnetfeld erhöht und damit die Tunnelbarriere effektiv verbreitert.

Diese Wegverlängerung in Tunnelrichtung ( $z$ -Richtung) hat dabei gleichermaßen Auswirkung auf alle Zustände, sowohl die unteren, als auch die oberen Energieniveaus. Durch die effektive Wegverlängerung wird die Besetzung aller elektronischen Zustände mit steigendem Magnetfeld mehr und mehr verhindert.

Für eine quantitative Beschreibung kann mittels der Transfer-Hamiltonian-Methode der Effekt des Magnetfeldes auf das Potenzial der Elektronen beschrieben werden. So wird durch das Magnetfeld die Wellenfunktion im Quantenpunkt auf Grund der starken Lokalisierung nicht verändert, die Wellenfunktion im Rückkontakt dagegen wird stark beeinflusst.

Das Potenzial der Elektronen im Rückkontakt erhält durch das Magnetfeld einen Zusatzterm  $\varphi'$  der Form [Luyken99b]

$$\varphi_B(z) = \varphi(z) + \varphi'(z) = \varphi(z) + \frac{m_e^* \omega_c^2}{2} \left( z - \frac{l_c^2 p_y}{\hbar} \right), \quad (4.5)$$

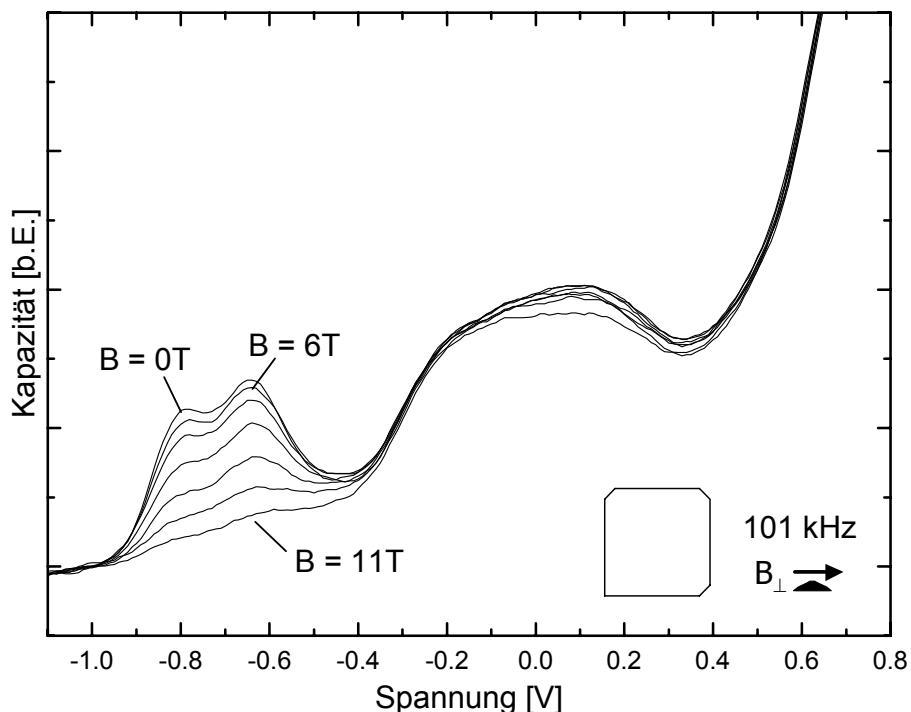
wobei

$$l_c = \sqrt{\frac{\hbar}{m_e^* \omega_c}} \quad (4.6)$$

die charakteristische Länge im Magnetfeld ist. Eine merkliche Erhöhung der Tunnelzeiten ist zu erwarten, sobald sich die Tunnelwahrscheinlichkeit deutlich verringert. Dies ist der Fall, sobald  $\varphi'(z)$  in die Größenordnung von  $\varphi(z)$  kommt.

Ohne Magnetfeld und bei einer gegebenen (nicht zu hohen) Frequenz ist es den Elektronen möglich, dynamisch die entsprechenden elektronischen Zustände in Abhängigkeit der Gatespannung zu besetzen. Dies ist zu sehen in Abb. 4.21, in der eine Schar von Kapazitätskurven dargestellt ist, die alle bei der gleichen Frequenz von  $101\text{kHz}$ , aber unterschiedlicher Magnetfeldstärke aufgenommen wor-

den sind. Die oberste Kurve in dem Diagramm zeigt den Kapazitätsverlauf für  $B = 0\text{T}$  mit noch deutlich ausgeprägten Lademaxima der s-Niveaus bei  $-0,8\text{V}$  und  $-0,6\text{V}$  Gleichspannung und dem breiten Maximum der p-Niveaus in dem Bereich zwischen  $-0,3\text{V}$  und  $+0,3\text{V}$ .

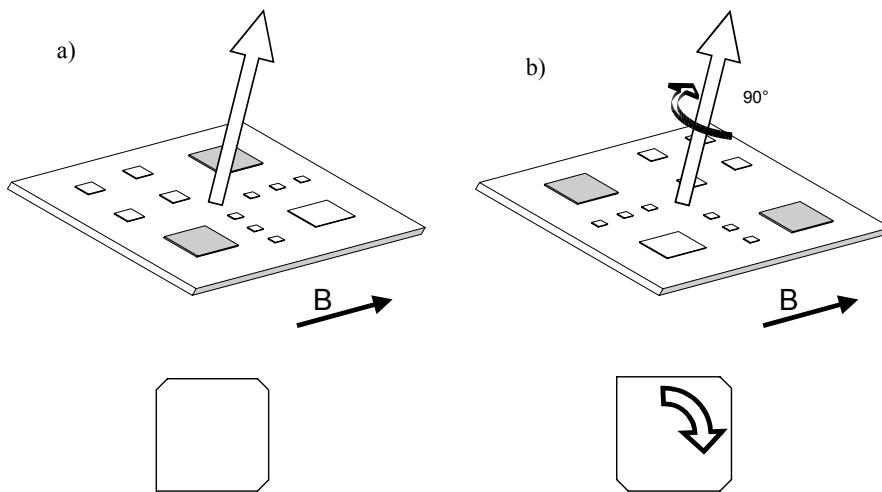


**Abbildung 4.21:** Magnetfeldabhängige Kapazitätsspektren für Felder von 0 bis 11T für 11194 bei 101kHz. Die Kurven bei 1 bis 5T wurden der Übersichtlichkeit halber weggelassen. Die Gateelektrodenfläche beträgt  $4,1 \cdot 10^4 \mu\text{m}^2$ . Die Unterdrückung der Tunnelmechanismen mit steigender Feldstärke ist für die beiden s-Niveaus deutlich zu sehen und ab 11T auch erkennbar für die p-Niveaus.

Gesteigert wurde das Magnetfeld dann in 1T-Schritten, wobei in Abb. 4.21 der Übersichtlichkeit halber nur die weiteren Kurven für 6 – 11T gezeigt sind. Mit steigendem Magnetfeld sieht man hier ebenso wie bei der frequenzabhängigen Spektroskopie in Kap. 4.2.1 eine „Unterdrückung“ der Tunnelprozesse für die s-Niveaus bis hin zu flach verlaufenden Kurven für  $B = 11\text{T}$ . Für die p-Niveaus stellt man erst ab einem Magnetfeld von 11T eine merkliche Auswirkung auf die Tunneldynamik fest. Das heißt, wie erwartet wird mit steigendem Magnetfeld zuerst das Tunneln in die s-Niveaus negativ beeinflusst, dann später auch das Tunneln in die p-Niveaus.

Weiterhin würde man bei symmetrischen Quantenpunkten erwarten, dass mit steigendem Magnetfeld die Besetzung der ununterscheidbaren p-Zustände gleichförmig verhindert wird. In Abb. 4.21 ist jedoch ein Symmetriebruch im Antwort-

verhalten der p-Niveaus zu erkennen. Offensichtlich sinkt das Kapazitätssignal und damit der Tunnelstrom in die energetisch höheren p-Niveaus zuerst ab, während die energetisch tiefer liegenden noch immer geladen werden. Aus diesem Grund wurden experimentelle Messungen durchgeführt, bei denen die Proben im Magnetfeld um jeweils  $90^\circ$  rotiert wurden, um die Auswirkung auf die Kapazitätskurven zu analysieren. Wenn bei den Quantenpunkten tatsächlich Asymmetrien vorliegen, so müsste sich dies durch ein unterschiedliches Antwortverhalten der p-Zustände in Abhängigkeit der Probenausrichtung zeigen.

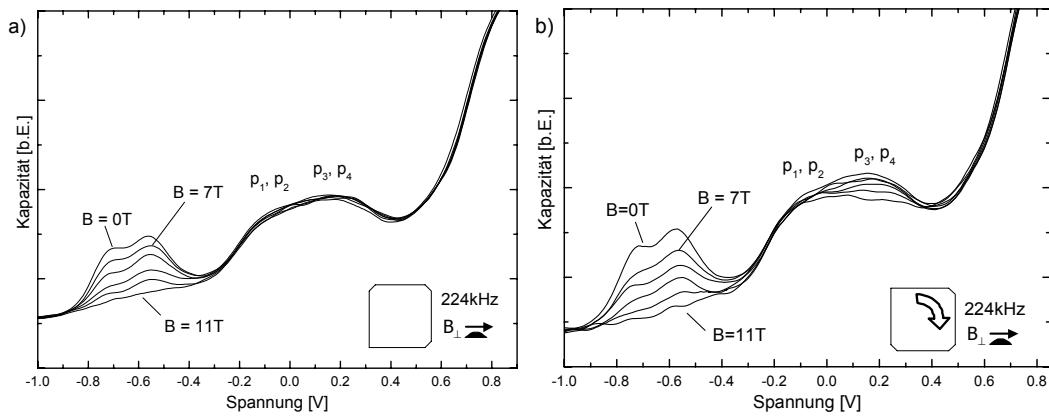


**Abbildung 4.22:** Rotation der Proben im Magnetfeld. Die Probe wurde in b) gegenüber a) um  $90^\circ$  in der Ebene des Magnetfeldes gedreht. Darunter sind die jeweiligen Symbole dargestellt, die zur Kennzeichnung der Rotation in den nachfolgenden Kapazitätsspektren verwendet werden.

Wie in Abb. 4.22 angedeutet, lag die Tunnelrichtung der Elektronen dabei immer senkrecht zum Magnetfeld, während die Proben um jeweils  $90^\circ$  in der Ebene des Magnetfeldes rotiert wurden. Da alle anderen Parameter wie Frequenz, Magnetfeldstärke und angelegte Spannung für jeweils verglichenen Kurvenscharen gleich gehalten worden sind, lassen sich die Änderungen in den Kapazitätsspektren eindeutig auf die Probenrotation zurückführen.

Abb. 4.23 zeigt zwei Kapazitätssmessungen an der Probe 11194 in Abhängigkeit eines Magnetfeldes von 0 bis 11T, wobei der Übersichtlichkeit halber die Kurven für 1 bis 6 T weggelassen wurden. Die Probe hat eine Tunnelbarriere von  $d_1 = 35\text{nm}$  und einen Abstand der Quantenpunkte zur Oberfläche von 210nm, was einen Hebelarm von  $\lambda = 7$  ergibt. Die Frequenz wurde zu 224kHz gewählt und eine Wechselspannung von 5mV angelegt. In der Abbildung sind bei dem breiten Maximum der p-Niveaus die Zustandspaare  $p_1, p_2$  (energetisch tiefer liegend) und  $p_3, p_4$  (energetisch höher liegend) eingezeichnet.

Während bei der ursprünglichen Probenausrichtung in Abb. 4.23a selbst für die stärksten Felder lediglich eine Beeinflussung der s-Niveaus zu sehen ist und die p-Niveaus nahezu unbeeinflusst bleiben, hat der Kapazitätsverlauf der rotierten Probe in Abb. 4.23b bezüglich der p-Zustände einen deutlich anderen Charakter. Hier sieht man deutlich, wie das Tunneln in die energetisch höheren p-Niveaus ( $p_3, p_4$ ) mit steigendem Magnetfeld unterdrückt wird, während die energetisch niedrigeren p-Niveaus ( $p_1, p_2$ ) keine Beeinflussung zeigen.



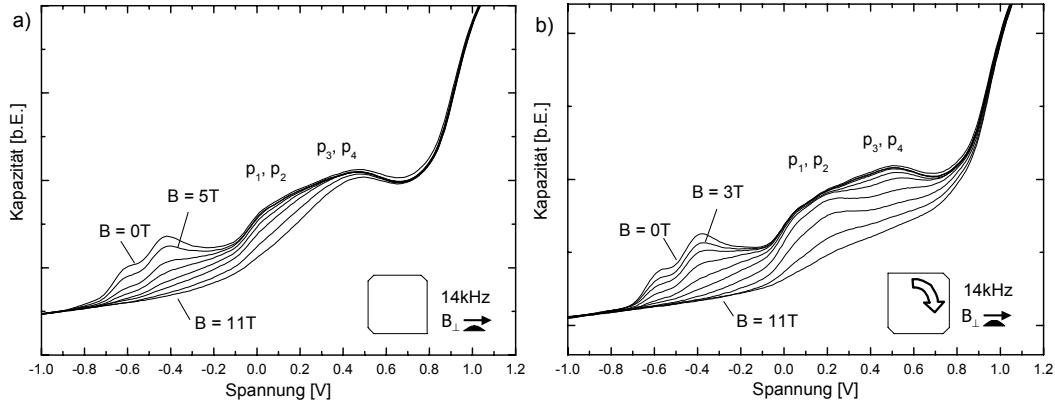
**Abbildung 4.23:** a) Kapazitätsspektren der Probe 11194 in Abhängigkeit des Magnetfeldes bis zu 11T bei 224kHz. b) Spektren der gleichen Probe bei gleichen Parametern, aber mit um  $90^\circ$  in der Ebene des Magnetfeldes rotierter Geometrie. Zu sehen ist ein deutlicher Unterschied im Besetzen der p-Zustände bei Drehung der Proben.

Analoge Messungen wurden auch für das Probenmaterial 11210 durchgeführt und sind in Abb. 4.24 gezeigt. Während die unterschiedliche Beeinflussung der p-Niveaus bei der oben gezeigten Probe andeutungsweise zu sehen war, konnte man bei 11210 einen sehr viel deutlichere Abhängigkeit der Kapazitätsspektren von der Probenrotation feststellen.

Die verwendete Frequenz betrug hier jeweils 14kHz und die Wechselspannung 5mV. Im Gegensatz zur obigen Probe beträgt hier die Tunnelbarriere  $d_1 = 40\text{nm}$  und der Abstand der Quantenpunkte zur Oberfläche ist 240nm groß, was einen Hebelarm von  $\lambda = 7$  ergibt. Wegen der größeren Tunnelbarriere wurde hier eine niedrigere Frequenz der Wechselspannung verwendet.

In der ursprünglichen Ausrichtung (Abb. 4.24a) zeigt sich zuerst einmal eine deutliche „Unterdrückung“ der Tunnelmechanismen in die s-Niveaus und dann ab Magnetfeldern von 7T auch für die p-Niveaus, wobei sich eindeutig das Kapazitätssignal der energetisch tieferen ( $p_1, p_2$ ) verringert.

Die rotierte Probe in Abb. 4.24b zeigt dagegen bezüglich der p-Niveaus ein genau umgekehrtes Verhalten. Hier sind es die energetisch höheren p-Niveaus ( $p_3, p_4$ ), die zuerst eine Magnetfeldabhängigkeit zeigen, während das Tunneln in die  $p_1, p_2$ -Niveaus länger erhalten bleibt.



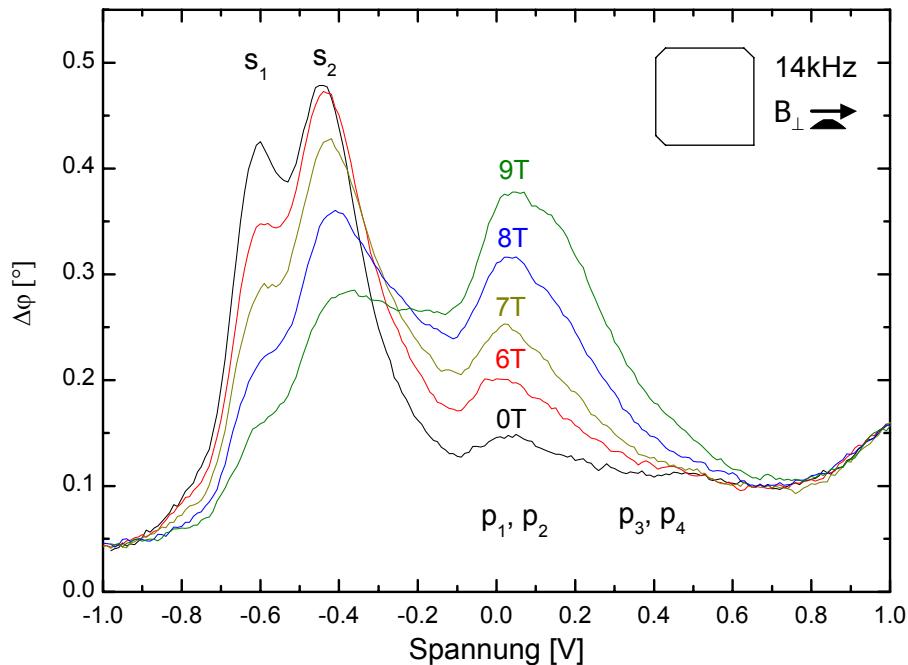
**Abbildung 4.24:** a) Kapazitätsspektren der Probe 11210 in Abhängigkeit des Magnetfeldes bis zu 11T für das Material 11210 bei 14kHz b) Spektren der gleichen Probe mit um  $90^\circ$  in der Ebene des Magnetfeldes rotierter Geometrie. Während in a) deutlich die Besetzung der energetisch tiefenren  $p_1, p_2$ -Niveaus abnimmt, ist es in b) umgekehrt zuerst die Besetzung der energetisch höheren  $p_3, p_4$ -Niveaus, die mit steigendem Magnetfeld verhindert wird. Erst ab ca. 8T verringert sich auch das Kapazitätssignal für  $p_1, p_2$ .

Noch deutlicher als in den Kapazitätsspektren zeigen sich die oben dargestellten Unterschiede in der Auftragung der Phasenlage, da diese, wie bereits bei den frequenzabhängigen Messungen ausgeführt, ein empfindlicheres Messsignal in Bezug auf die Tunneldynamik darstellt. Die Niveaus  $p_1, p_2$  und  $p_3, p_4$  können hier besser aufgelöst, und so die Auswirkung der Rotation auf die verschiedenen elektronischen Zustände deutlicher dargestellt werden.

Für die Kapazitätsmessungen an der Probe 11210 aus Abb. 4.24a ist in Abb. 4.25 die jeweilige Phasenänderung  $\Delta\varphi$  für  $B = 0\text{T}, 6\text{T}, 7\text{T}, 8\text{T}$  und  $9\text{T}$  aufgetragen. Die Reihenfolge der Unterdrückung der Tunnelvorgänge in die unterschiedlichen Niveaus ist dabei in dieser Auswertung noch deutlicher zu sehen, als in den Kapazitätsspektren. Die negative Beeinflussung der Tunnelmechanismen ist dabei wie in Kap. 4.2.1 als eine Änderung im Phasensignal zu sehen.

Eingezeichnet sind dazu in der Auftragung der Phasenänderung die Lagen der energetischen Niveaus  $s_1, s_2$ , sowie  $p_1, p_2$  und  $p_3, p_4$ , wie sie in den Kapazitätsverläufen zu sehen sind.

Bezüglich der p-Niveaus ist hier noch deutlicher zu sehen, wie die Tunnelmechanismen asymmetrisch mit wachsendem Magnetfeld beeinflusst werden. So zeigt sich eine deutliche Phasenänderung ab 6T für das energetisch niedriger liegende Zustandspaar  $p_1, p_2$ , während für  $p_3, p_4$  keine Beeinflussung zu sehen ist.



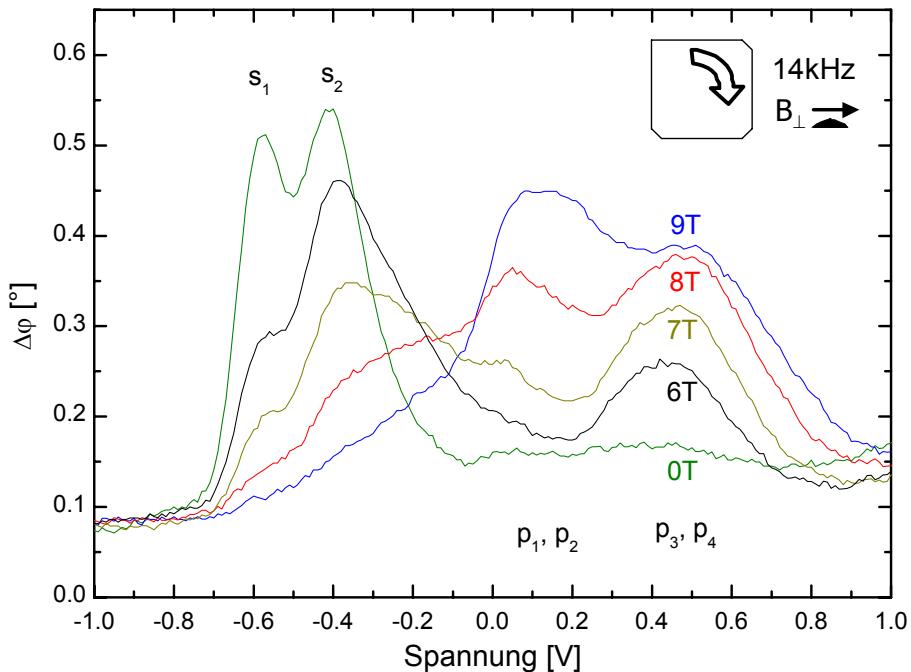
**Abbildung 4.25:** Auftragung der Phaseninformation in Abhängigkeit von der Gatespannung für die Kapazitätskurven der Probe 11210 aus Abb. 4.24a. Deutlich zu erkennen ist die Phasenänderung mit steigendem Magnetfeld bei den Spannungswerten zwischen  $-0,1\text{V}$  und  $0,2\text{V}$ , bei denen die  $p_1, p_2$ -Zustände besetzt werden. Für  $p_3, p_4$  dagegen zeigt sich kein Magnetfeldeinfluss.

Für die um  $90^\circ$  rotierte Probe ist die Phasenänderung der Kapazitätssmessung aus Abb. 4.24b in Abb. 4.26 dargestellt. In dieser Ausrichtung ergibt sich eine deutliche Phasenänderung ab 6T für die energetisch höheren Niveaus  $p_3, p_4$ , während die Phase für  $p_1, p_2$  noch keine Veränderung zeigt.

Ab 7T beginnt sich die Phase auch für die  $p_1, p_2$ -Niveaus zu ändern, doch bis zu einer Feldstärke von 8-9T ist die Phasenänderung für die höheren Niveaus stärker. Ab 8T beginnt sich der Unterschied zwischen  $p_1, p_2$  und  $p_3, p_4$  zu verringern, nun beginnt auch das Tunneln der Elektronen in die energetisch tieferen p-Zustände abzunehmen. Ab 9T wird dann auch das dynamische Besetzen der  $p_{1,2}$ -Niveaus verhindert, analog dem Kapazitätsspektrum in Abb. 4.24b.

Zusammenfassend lässt sich also sagen, dass die laterale Ausrichtung der Quantenpunktproben im senkrecht angelegten Magnetfeld einen starken Einfluss

bezüglich des Tunnelverhaltens in die höheren Zustandsniveaus hat. Sowohl die Kapazitätsspektren, als auch die Auswertungen der Phaseninformation zeigen ein deutlich asymmetrisches Verhalten in Bezug auf die Besetzung der p-Zustände in den Quantenpunkten. Dies konnte nachgewiesen werden durch Kapazitätsmessungen an jeweils einer Probe mit identisch gehaltenen Messparametern bei Drehung der Quantenpunkte um  $90^\circ$  im Magnetfeld.



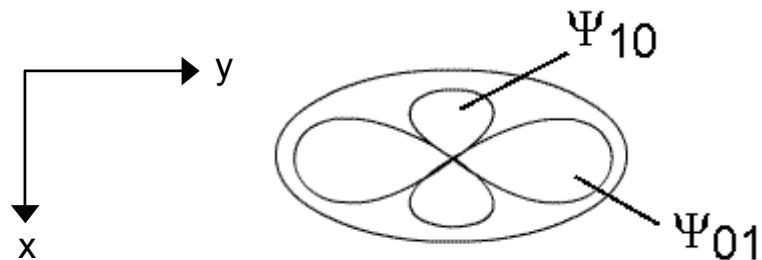
**Abbildung 4.26:** Auftragung der Phaseninformation in Abhängigkeit von der Gatespannung für die Kapazitätskurven der Probe 11210 aus Abb. 4.24b. Zuerst ändert sich die Phase bei Spannungswerten der energetisch höheren p-Niveaus, dann ab 7-8T erst für die energetisch niedrigeren Niveaus  $p_1, p_2$ .

Die Diskussion der Rotationsabhängigkeit im Magnetfeld ist auf den nachfolgenden Seiten dargestellt.

### Diskussion der Rotationsabhängigkeit

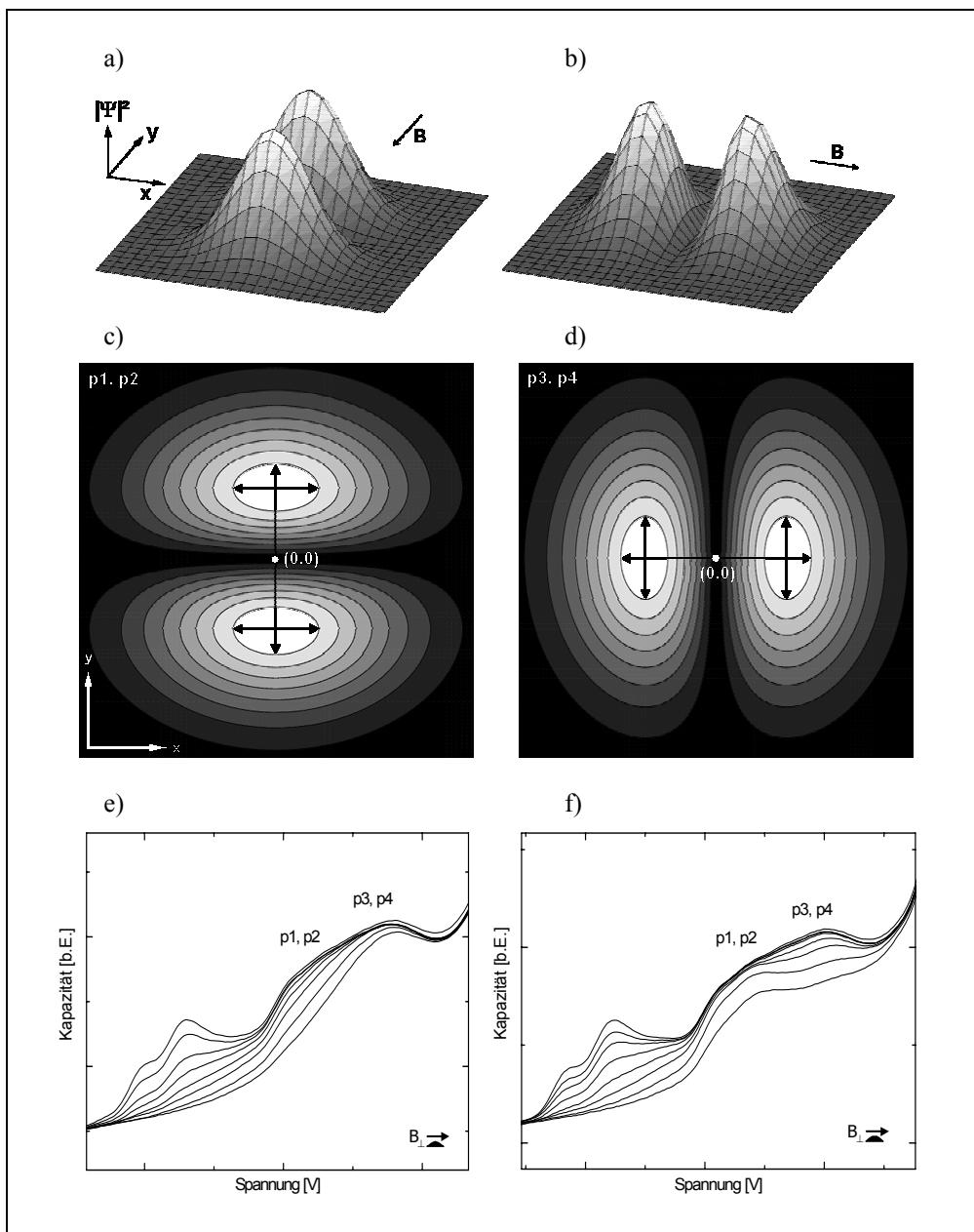
Nachdem bereits die grundlegenden physikalischen Gründe für die Magnetfeldabhängigkeit des Tunnelns durch eine effektive Wegverlängerung in z-Richtung erklärt worden sind, soll nun auf das unterschiedliche Verhalten der Elektronen in der Besetzung der p-Zustände in Abhängigkeit der Probenrotation eingegangen werden. Wie oben dargelegt, sollte die Magnetfeldabhängigkeit gemäß Gl. (4.4) auf alle Energiezustände gleich wirken, d.h., sowohl die Besetzung der s-, als auch der p-Niveaus beeinflussen.

Die Tatsache, dass in Abb. 4.24a die energetisch tieferen p-Niveaus ( $p_1, p_2$ ) zuerst beeinflusst werden, während es in Abb. 4.24b für die um  $90^\circ$  gedrehte Probe die energetisch höheren Niveaus ( $p_3, p_4$ ) sind, lässt auf eine ovale Form der Quantenpunkte (im Querschnitt) schließen. Dies ist schematisch in Abb. 4.27 gezeigt.



**Abbildung 4.27:** Schematische Darstellung eines ovalen Quantenpunkts (äußere Ellipse, Maßstab übertrieben). Zusätzlich sind die Orbitale der elektronischen Wellenfunktionen  $\Psi$  eingezeichnet, welche wegen der ovalen Form der Quantenpunkte in einer Richtung stärker eingeschränkt sind. Dadurch zeigen sich je nach Ausrichtung der Quantenpunkte im Magnetfeld Unterschiede im Besetzen der Zustände, wie es in den Kapazitätsspektren (siehe Abb. 4.24a und b) zu sehen ist.

Die ovale Form der Quantenpunkte ist nicht die physikalische Voraussetzung für das unterschiedliche Antwortverhalten der p-Niveaus auf das Magnetfeld. Die physikalische Ursache ist die elliptische Form der elektronischen Wellenfunktionen, wie es weiter unten dargestellt ist. Allerdings führt die leicht ovale Form der Quantenpunkte zu einem Bruch in der Rotationssymmetrie, wobei die Symmetrie bezüglich zweier senkrecht aufeinander stehender Achsen erhalten bleibt (im vorliegenden Fall sind dies die  $[1,-1,0]$ - und  $[1,1,0]$ -Kristallachsen, siehe [Fricke95]). Die ovale Form ermöglicht es nun,  $\Psi_{01}$  den energetisch tiefer liegenden Zuständen  $p_1, p_2$  und  $\Psi_{10}$  den energetisch höher liegenden Zuständen  $p_3, p_4$  zuzuordnen.



**Abbildung 4.28:** a) und b) Dreidimensionale Darstellung der Aufenthaltswahrscheinlichkeiten der Elektron-Wellenfunktionen  $\Psi(x,y)$  für die  $p$ -Zustände  $p_1, p_2$  (links) und  $p_3, p_4$  (rechts). c) und d) zeigen Konturauftragungen der darüber dargestellten Wellenfunktionen, wobei hellere Grauwertstufen höhere Aufenthaltswahrscheinlichkeit markieren. Pfeile markieren die Ablenkung der Elektronen von der Mitte  $(0,0)$ . In e) und f) sind noch einmal die Messkurven mit der jeweiligen Auswirkung des Magnetfeldes zuerst auf die Zustände  $p_1, p_2$  (links), bzw. auf  $p_3, p_4$  (rechts) gezeigt.

Die Auswirkung des Magnetfelds auf die p-Zustände kann in einem semiklassischen Bild erklärt werden. In Abb. 4.28a und b sind schematisch die Aufenthalts wahrscheinlichkeiten  $|\Psi|^2$  für die Elektron-Wellenfunktionen dargestellt. Die Wellenfunktionen für die Zustände im linken Bild sind mit  $p_1, p_2$  bezeichnet, die rechts gezeigten mit  $p_3, p_4$ . Abb. 4.28c und d zeigen jeweils die Konturauftragung der darüber dargestellten Aufenthalts wahrscheinlichkeiten in der lateralen Ebene (x,y). Hellere Graustufen geben dabei eine höhere Wahrscheinlichkeitsdichte an. Eingezeichnet sind dazu Pfeile, die eine Ablenkung der Elektronen von der Mitte (0,0) markieren.

Liegt nun ein Magnetfeld in der Richtung an, wie es in Abb. 4.28a dargestellt ist, so erfahren die in z-Richtung tunnelnden Elektronen eine Ablenkung durch die Lorentzkraft in x-Richtung. Sie verlassen somit bezüglich der  $p_1, p_2$ -Zustände schneller den Bereich hoher Aufenthalts wahrscheinlichkeiten wegen deren elliptischen Form, die in Abb. 4.28c zu sehen ist. Damit wird das Tunneln in die energetisch niedrigeren  $p_1, p_2$ -Zustände negativ beeinflusst, was sich in Abb. 4.28e in Form einer Abnahme im Kapazitätssignal für diese Zustände zeigt.

Ist die Magnetfeldrichtung dagegen wie in Abb. 4.28b dargestellt, so erfahren die in z-Richtung tunnelnden Elektronen eine Ablenkung durch die Lorentzkraft in y-Richtung. Dadurch verlassen die Elektronen in diesem Fall bezüglich der  $p_3, p_4$ -Zustände schneller den Bereich hoher Aufenthalts wahrscheinlichkeiten, wie in Abb. 4.28d zu sehen ist. Für diese Magnetfeldrichtung wird also die Tunneldynamik in die energetisch höheren  $p_3, p_4$ -Zustände negativ beeinflusst. Die Auswirkung in den Kapazitätssmessungen ist noch einmal in den Abb. 4.28f zu sehen.

Zur Erweiterung des Bildes können die Impulsbeiträge der tunnelnden Elektronen betrachtet werden. Durch die Einwirkung der Lorentzkraft, die ein senkrecht angelegtes Magnetfeld auf die tunnelnden Elektronen hat, bekommen sie einen zusätzlichen Impuls  $k_y$  in der (x,y)-Ebene:

$$k_y = \frac{eB}{\hbar} \Delta z = \frac{1}{l_c^2} \Delta z, \quad (4.7)$$

wobei

$$l_c = \sqrt{\frac{\hbar}{eB}} \quad (4.8)$$

die charakteristische Länge des Einschlusspotenzials ist und  $\Delta z$  der effektiv zurückgelegte Tunnelweg in z-Richtung.

Dieser zusätzlich aufgenommene Impuls unterstützt die Tunnelmechanismen in die Zustände mit größerem Impuls und wirkt damit entgegen den für die Tunneldynamik negativen Magnetfeldbeitrag, der in Abb. 4.20 gezeigt wurde.

Eine Erhöhung des Impulses in y-Richtung (Magnetfeld in x-Richtung) unterstützt daher das Tunneln in die Zustände  $p_1, p_2$ , da diese bezüglich y einen höheren

ren Impuls besitzen als  $p_3, p_4$ . Hierbei wurde angenommen, dass die Elektronen des Rückkontakt mit  $k_x = k_y = 0$  verlassen [Davies98].

Eine genaue Diskussion des hier beobachteten „Austastens“ der Wellenfunktion mit Hilfe eines senkrecht angelegten Magnetfelds findet sich in [Vdovin00] [Levin01] und Referenzen dort.

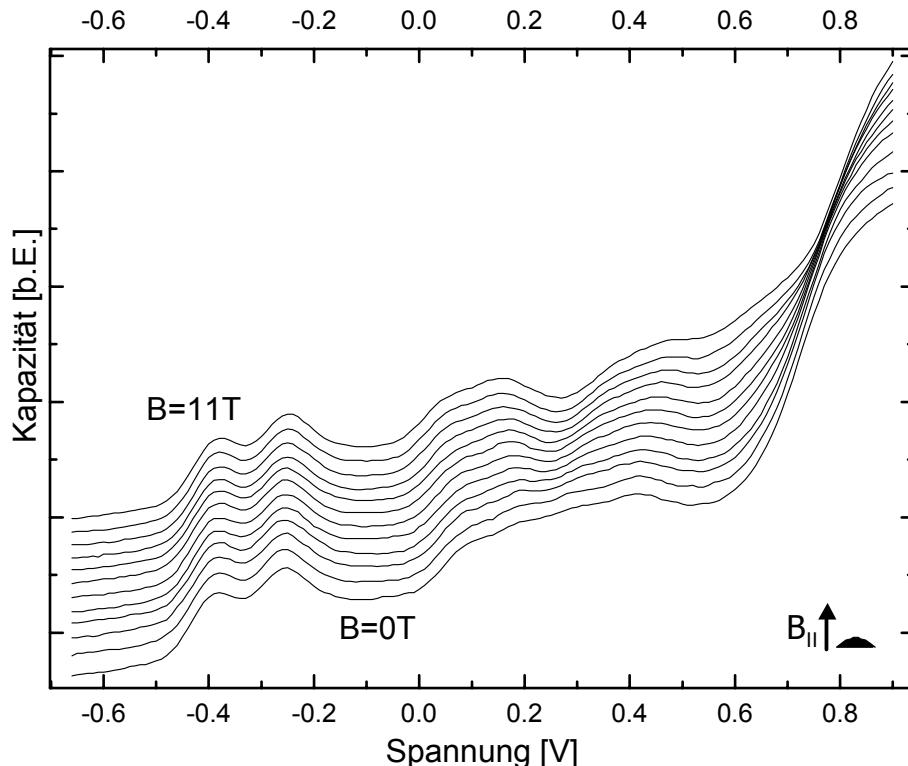
Zusammenfassend lässt sich sagen, dass durch Kapazitätsmessungen im senkrechten Magnetfeld unterschiedliche Auswirkungen auf die Besetzung der p-Zustände in Abhängigkeit der Quantenpunkt-Ausrichtung im Magnetfeld festgestellt werden konnten. Dies begründet sich durch die elliptische Form der Aufenthaltswahrscheinlichkeiten für die p-Elektronen-Wellenfunktionen. Die Tatsache, dass dieses Phänomen an den hier untersuchten Quantenpunkten festgestellt werden konnte, lässt auf eine Asymmetrie der Quantenpunkte in der (x,y)-Ebene schließen. Eine leicht ovale Form von Quantenpunkten zeigte sich bereits in früheren Arbeiten durch Infrarotmessungen [Fricke95]. Dort zeigten polarisationsabhängige Transmissionsmessungen einen Unterschied in den Hauptachsen der Quantenpunkte von circa 0,5nm.

### 4.5.2 Paralleles Magnetfeld

Durch Anlegen eines zur Tunnelrichtung der Elektronen parallelen Magnetfelds bleibt die Tunneldynamik unbeeinflusst. Zu erwarten sind aber eine kleine diamagnetische Verschiebung und Aufspaltung der untersten beiden Niveaus mit steigendem Magnetfeld, sowie eine orbitale Zeeman-Aufspaltung der p-Niveaus.

Die Kapazitätsmessungen bei parallelem Magnetfeld wurden für das Probenmaterial 11157 vorgenommen, da es, wie in Kapitel 4.1.2 gezeigt, besonders homogene Quantenpunkte enthielt, so dass die Zeeman-Aufspaltung der p-Zustände für alle vier Niveaus einzeln ausgewertet werden kann.

Die CV-Messungen an 11157 sind in Abb. 4.29 gezeigt. Die einzelnen Messkurven wurden zur besseren Übersicht gegeneinander vertikal verschoben. Variiert wurde das Feld zwischen 0 und 11T.



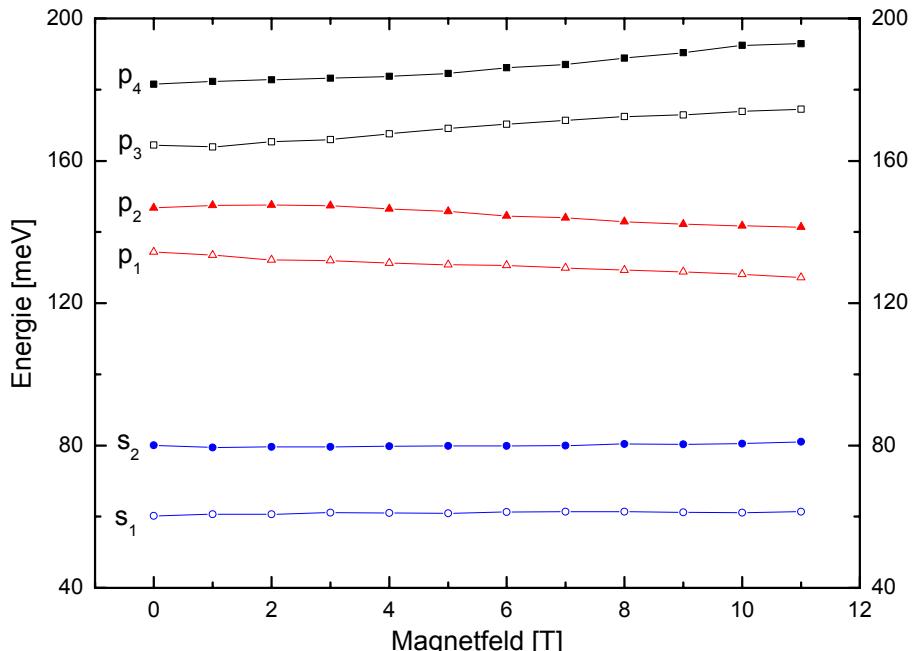
**Abbildung 4.29:** Kapazitätsspektren für die Probe 11157 für Magnetfelder von 0 bis 11T bei 3,9kHz. Die einzelnen Kurven wurden der Übersichtlichkeit halber gegeneinander vertikal verschoben.

Die Lademaxima der p-Schale spalten, wie in Abb. 4.29 ersichtlich, mit steigendem Magnetfeld in zwei Maximapaares auf. Dabei sinkt das Paar der Niveaus  $p_1$  und  $p_2$  mit steigendem Magnetfeld in der Energie, das Paar der Niveaus  $p_3$  und  $p_4$  dagegen steigt in der Energie (siehe weiter unten). Diese charakteristische Zeeman-Aufspaltung wird im Folgenden quantitativ ausgewertet.

Im Gegensatz zu den p-Niveaus werden die s-Niveaus kaum bei den hier angelegten Feldern bis 11T beeinflusst. Sie zeigen nur eine sehr leichte diamagnetische Verschiebung zu höheren Energien hin.

Mit den in Abb. 4.29 gewonnenen Dispersionsdaten der Lademaxima in Abhängigkeit des Magnetfeldes ist es möglich, ein Energieniveaudiagramm der untersuchten Quantenpunkte darzustellen.

Dazu werden zuerst die Spannungswerte mit der Hebelarmbeziehung (Gl. (3.2)) in Energieniveaus umgerechnet. Diese sind in Abb. 4.30 in Abhängigkeit des Magnetfeldes aufgetragen.



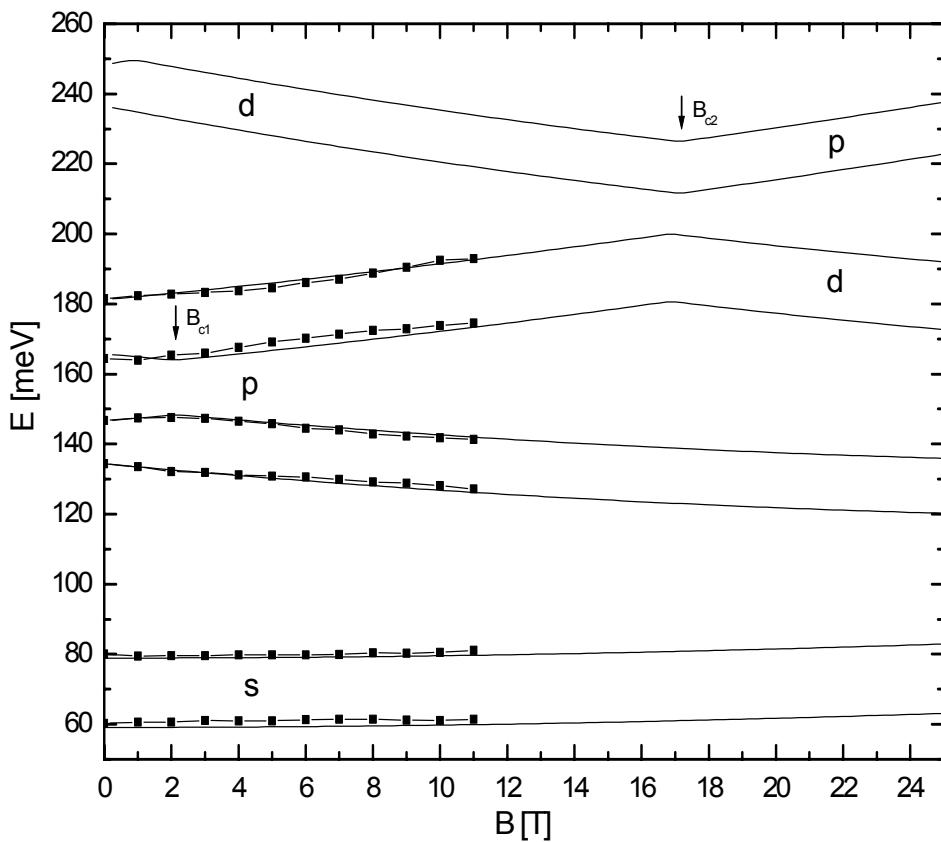
**Abbildung 4.30:** Aufspaltung der Lademaxima aus den Kapazitätskurven in Abb. 4.29 für die Probe 11157. Die Spannungsskala wird dazu mit der Hebelarmbeziehung in Energiebeträge umgerechnet und die energetische Lage der Zustände  $s_1$ ,  $s_2$  und  $p_1$  bis  $p_4$  in Abhängigkeit des Magnetfeldes aufgetragen.

Es zeigt sich wie oben beschrieben eine nur sehr leichte Abhängigkeit der s-Niveaus vom Magnetfeld, mit einer nur sehr geringen Verschiebung zu höheren Energien für starke Felder. Bei den Niveaus der p-Schale dagegen zeigt sich in Abb. 4.30 für hohe Felder eine deutliche Aufhebung der Entartung des Drehimpulses. Die p-Niveaus, die zu niedrigeren Energien hin verschoben werden, sind die mit Drehimpuls  $l = -1$ , die Niveaus dagegen, die zu höheren Energien verschoben werden, die mit Drehimpuls  $l = +1$ .

### Energieniveaudiagramm – Vergleich mit theoretischen Kurven

Das oben gezeigte Energieniveaudiagramm ist in Abb. 4.31 zusammen mit den theoretischen Dispersionskurven aus Kap. 2.1.5 aufgetragen. Für die dort gezeigten theoretischen Kurven ist die Coulombblockade der p-Zustände den experimentell gemessenen Parametern angepasst worden, wobei die Werte  $\hbar\omega_0 = 59,1\text{meV}$  für die Quantisierungsenergie, die effektive Masse zu  $m_e^* = 0,063m_e$  und die Coulombblockade der s-Niveaus zu  $e^2/C = 19,8\text{meV}$  gewählt wurden.

Der Vergleich ist in Abb. 4.31 gezeigt, mit einer guten Übereinstimmung der experimentellen Daten mit dem Kurvenverlauf aus der Theorie.



**Abbildung 4.31:** Aufspaltung der Lademaxima wie in Abb. 4.30, hier jedoch aufgetragen im Vergleich mit dem theoretischen Verlauf der Dispersionskurven, wie sie in Kap. 2.1.5 gezeigt wurden.

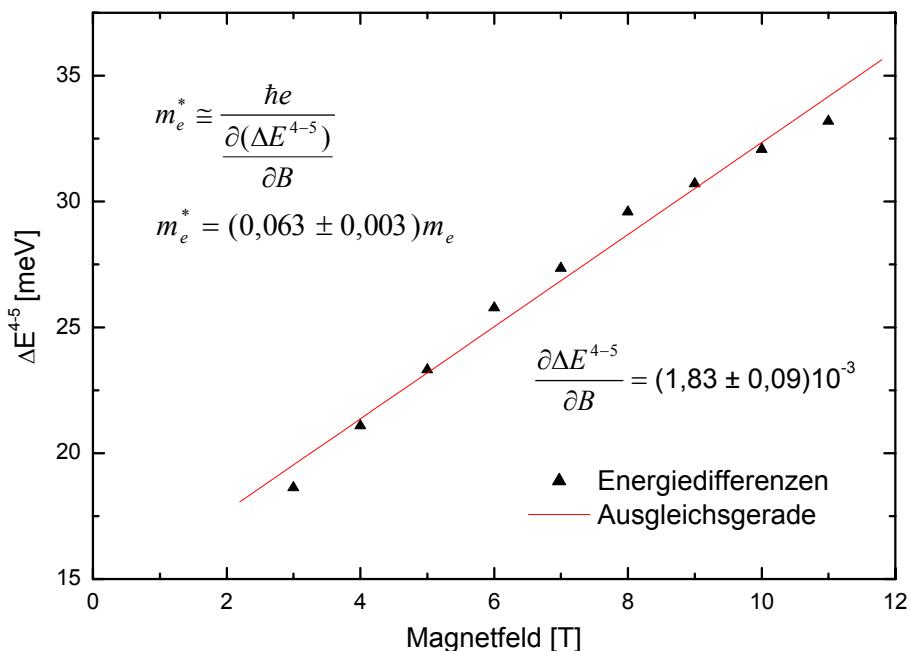
Obwohl die Auswertung der Lademaxima für die p-Zustände mit einer gewissen Ungenauigkeit auf Grund der Verbreiterung behaftet ist, stimmen die experimentellen Daten in guter Genauigkeit mit den berechneten Kurven überein. Ansatzweise ist sogar eine Änderung der Magnetfelddispersion gemäß den Hund'schen Regel im Bereich zwischen 1 und 2T zu erkennen. Die Theorie hatte einen Wert

von  $B_{c2} = 2,1\text{T}$  vorhergesagt (siehe Kapitel 2.1.5). Ein Erfüllen der Hund'schen Regel und der Änderung in der Magnetfelddispersion wäre ein weiterer Hinweis auf die Symmetrie der Quantenpunkte für das Material 11157. Das Material 11157 war wegen der guten Auflösung der p-Niveaus (vergleiche Abb. 4.2) für die Messungen mit parallelem Magnetfeld gewählt worden. Das Quantenpunktmaterial 11157 scheint daher eine größere Homogenität zu zeigen als 11210, welches in Kap. 4.5.1 behandelt wurde.

Erfüllt ist in Abb. 4.31 auch die Abhängigkeit der Coulombblockade von der Besetzungszahl im Quantenpunkt; in der Abbildung ist eine erhöhte Coulombblockade zwischen dem Laden des zweiten und dritten p-Niveaus auf Grund der Austausch-Wechselwirkung zu erkennen.

### Effektive Masse der Elektronen

Die effektive Masse der Elektronen im Quantenpunkt lässt sich aus den Dispersionsdaten der p-Schale ermitteln (vergleiche Kapitel 2.1.6). Die Energiedifferenzen zwischen dem zweiten und dritten p-Niveau, d.h. den Elektronen Nr. 4 und 5 im Quantenpunkt, skalieren für hohe Felder annähernd linear mit dem Magnetfeld. Die Methode stellt somit eine Mittelwertbildung der Aufspaltung über einen Magnetfeldbereich dar. Gewählt wurde für die lineare Datenanpassung in Abb. 4.32 der Bereich  $3 < B < 11\text{T}$ .



**Abbildung 4.32:** Auswertung der effektiven Masse aus der Energieaufspaltung zwischen dem zweiten und dritten p-Zustand für das Material 11157. Es wurde ein Magnetfeldbereich von 3 bis 11T gewählt und eine lineare Datenanpassung (durchgezogene Linie) für die Messwerte der Aufspaltung vorgenommen.

Nach Gleichung (2.17) folgt für die effektive Masse

$$m_e^* \cong \frac{\frac{\hbar e}{\partial(\Delta E^{4-5})}}{\partial B}.$$

Die Steigung der Ausgleichsgeraden ergibt sich zu

$$\frac{\partial(\Delta E^{4-5})}{\partial B} = (1,83 \pm 0,09) \cdot 10^{-3} \frac{eV}{T}$$

und daraus folgt für die effektive Masse des Probenmaterials 11157 ein Wert von

$$m_e^* = (0,063 \pm 0,003)m_e.$$

Das Materialsystem der Quantenpunkte ist InAs. Überraschenderweise ergibt sich eine große Abweichung der errechneten effektiven Masse von der von InAs ( $m_e^*(\text{InAs}) = 0,022m_e$ ). Der gemessene Wert liegt eher im Bereich der effektiven Masse der Elektronen in GaAs, welche  $m_e^*(\text{GaAs}) = 0,067m_e$  beträgt.

Tabelle 4.6 gibt sowohl die Literaturwerte der effektiven Masse für einige Materialien an, als auch einige Werte aus experimentellen Messungen, wobei der Wert in der vierten Zeile der in dieser Arbeit gemessene ist. Es sind auch einige Werte für  $m_e^*$  angegeben, die in anderen Arbeiten über Ferninfrarot-Messungen ermittelt worden sind.

**Tabelle 4.6:** Einige Literaturwerte der effektiven Masse  $m_e^*$  in Einheiten von  $m_e$  für die angegebenen Materialien. Die vierte Zeile gibt den gemessenen Wert für die InAs-Quantenpunkte des Materials 11157.

Material	effektive Masse [ $m_e$ ]	Methode	Quelle
GaAs	0,067	Literatur	[Adachi85]
InAs	0,022	Literatur	[Adachi92]
AlAs	0,150	Literatur	[Adachi85]
11157 (InAs)	$0,063 \pm 0,003$	Kap.spektr.	diese Arbeit
MC 24 (InAs)	0,075	Kap.spektr.	[Fricke95]
MC 27 (InAs)	$0,057 \pm 0,007$	Kap.spektr.	[Miller98]
2DEG (InAs)	0,048	Kap.spektr.	[Ruß02]
MC 24 (InAs)	$0,08 \pm 0,003$	Infrarotsp.	[Fricke96a]
MC 27 (InAs)	$0,08 \pm 0,01$	Infrarotsp.	[Miller98]

Generell liegen alle Werte, die durch Kapazitätsspektroskopie ermittelt wurden, 20 – 30% unter den mit optischen Messungen gewonnenen Werten. Es ist zwar vorhersagbar, dass die Werte aus der Infrarotspektroskopie abweichen sollten, da in diesem Anregungsbereich die Elektron-Elektron-Wechselwirkung keinen Einfluss auf die effektive Masse hat. Allerdings sollte sich dann eher eine Verkleinerung von  $m_e^*$  aus den optischen Messungen ergeben.

Der Vergleich der Werte aus der Kapazitätsspektroskopie wiederum zeigt bisher nicht verstandene Abweichungen, die eine exakte Reproduzierbarkeit von  $m_e^*$  verhindern. Allerdings besitzen die untersuchten Proben MC24, MC27 und 11157 auch leichte Unterschiede in der Struktur (vergl. Tabellen im Anhang). Zudem sind die Abweichungen der effektiven Massen aus [Fricke95] und [Miller98] zu dem in dieser Arbeit bestimmten Wert von  $m_e^*$  (InAs) =  $(0,063 \pm 0,003)m_e$  mit 10 - 20% nicht allzu groß.

Insbesondere der Vergleich mit der effektiven Masse  $m_e^*$  (InAs) =  $0,048m_e$ , die für das System mit 2DEG ermittelt worden ist [Ruß02], ist nur begrenzt anzustellen, weil die Fermi-Energie im zweidimensionalen Rückkontakt oszilliert und damit auch die Lademaxima, aus deren Lage die effektive Masse bestimmt wird.

Die generelle Abweichung aller experimentell ermittelten effektiven Masse vom Literaturwert für InAs (vergl. Tab. 4.6) wird im Folgenden diskutiert. Die Tatsache, dass der Wert für die effektive Masse der Elektronen eher mit dem für GaAs übereinstimmt, kann damit erklärt werden, dass die InAs-Quantenpunkte mit GaAs umgeben sind. Die Wellenfunktionen der Elektronen in den InAs-Quantenpunkten dringen unterhalb der Leitungsbandkante stark ins umgebende GaAs ein [Peeters96], so dass sich der Wert der effektiven Masse erhöht. Möglich ist sogar eine Verschiebung der Elektronen vom InAs ins GaAs auf Grund der starken wachstumsbedingten Verspannung (siehe Kap. 3.1) in diesem Materialsystem.

# **Kapitel 5**

## **Zusammenfassung und Ausblick**

Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich mit der Untersuchung von selbstorganisierten InAs-Quantenpunkten, die in einer MISFET-artigen Struktur eingebettet sind. Analysiert werden Eigenschaften wie Form, Größe, Dichte, Monodispersität und Symmetrie der Quantenpunkte, wofür die beiden Messmethoden der Kapazitäts- und Impedanzspektroskopie verwendet werden. Durch rasterkraftmikroskopische Messungen werden Bilder von an der Probenoberfläche befindlichen Quantenpunkten erstellt.

Die Tunneldynamik der Elektronen wird mit frequenzabhängiger Kapazitätsspektroskopie in einem Bereich von einigen hundert Hz bis 250kHz untersucht. Betrachtet werden vor allem Quantenpunktproben, die eine ausreichend große Tunnelbarriere von 35 – 40nm besitzen und somit eine entsprechende Frequenzabhängigkeit zeigen. Dabei werden die Ladezeiten des ersten und des zweiten in die Quantenpunkte tunnelnden Elektrons bestimmt. Die Größe der Tunnelbarriere stellt einen wichtigen Probenparameter dar, mit dem die Tunnelzeiten wegen der exponentiellen Abhängigkeit von der Barrierenbreite in einem weiten Bereich beim Wachsen der Proben eingestellt werden können. Technologisch kann dies genutzt werden für die Realisierung von schnellen Schaltelementen oder auch von nichtflüchtigen Speicherbausteinen, bei denen eine kontrollierte Lokalisation von Ladungsträgern im Quantenpunkt zu extrem hohen Speicherdichten bei sehr geringem Stromverbrauch führen könnte.

Zur weiteren Untersuchung der Tunneldynamik wird die Methode der Impedanzspektroskopie verwendet, insbesondere, um die modellhafte Vorstellung des Probensystems in Form eines Ersatzschaltbildes zu analysieren. Eines der Ziele dieser Arbeit war es, die Anwendbarkeit dieser zur Kapazitätsspektroskopie komplemen-

tären Messmethode in Bezug auf die untersuchten Probensysteme zu prüfen. Dazu werden die Tunnelmechanismen in einem weiten Frequenzbereich untersucht, um Aussagen über die Werte von Tunnelwiderstand und Quantenkapazität treffen zu können. Es hat sich gezeigt, dass zwar eine befriedigende Datenanpassung mit dem gezeigten Ersatzschaltbild vorgenommen werden konnte, dass aber die Auflösbarkeit in der Auswertung der Impedanzdaten für die untersuchten Quantenpunktproben nicht ausreichte, um zuverlässige Aussagen über die quantitativen Werte des Ersatzschaltbildes zu machen.

Die Kapazitätsmessungen im senkrecht zur Tunnelrichtung angelegten Magnetfeld zeigen eine Beeinflussung der Tunneldynamik durch die senkrecht zur Flussrichtung wirkende Lorentzkraft. Der Einfluss, der sich für alle Zustände zeigt, wird erklärt durch eine effektive Verbreiterung der Tunnelbarriere.

In der Besetzung der p-Zustände wird in diesem Zusammenhang eine Asymmetrie in Bezug auf die Beeinflussung der Tunnelmechanismen beobachtet. Kapazitätsmessungen an Proben, deren geometrische Ausrichtung in der Ebene des Magnetfelds um jeweils  $90^\circ$  gedreht wird, bestätigen eine Rotationsabhängigkeit des Magnetfeldeinflusses. Zur Auswertung wird dabei sowohl das Kapazitätssignal selbst, als auch die Phaseninformation herangezogen. Der Bruch der Rotationssymmetrie wird erklärt durch eine ovale Form der Quantenpunkte, wie sie auch schon in früheren Arbeiten durch Infrarotmessungen gezeigt worden ist. Die ovale Form ermöglicht die Unterscheidbarkeit von energetisch tiefer liegenden zu energetisch höher liegenden Zuständen, während die Betrachtung des Impulsbeitrags auf einen die Tunnelmechanismen unterstützenden Magnetfeldeinfluss hinweist.

Eine weitergehende Betrachtung dieses „Austastens“ der Wellenfunktion mit Hilfe von senkrecht zur Tunnelrichtung angelegten Magnetfeldern wäre lohnenswert durch ein „*in-situ*“ Drehen der Proben in kleineren Schritten. Dadurch könnten zweidimensionale Abbilder der Aufenthaltswahrscheinlichkeiten von Elektronen in den Quantenpunkten gewonnen werden.

Durch Kapazitätsmessungen im parallelen Magnetfeld bis 11T wird die Zeeman-Aufspaltung der p-Zustände ermittelt. Durch Einsatz einer Probe mit besonders homogenen Quantenpunkten werden alle vier Lademaxima der p-Zustände aufgelöst und ausgewertet. Es wird ein Energieniveaudiagramm für alle elektronischen Zustände dargestellt, welches direkt verglichen wird mit dem theoretisch vorhergesagten Kurvenverlauf. Ansatzweise wird eine nichtmonotone Dispersion der Energieeigenwerte auf Grund der Hund'schen Regel gezeigt. Für die Quantisierungsenergie ergibt sich für das Probenmaterial 11157 ein Wert von  $\hbar\omega_0 = 59,1\text{meV}$  und die Coulombblockade der s-Niveaus wird zu  $e^2 / C = 19,8\text{meV}$  bestimmt. Aus der Aufspaltung des zweiten und dritten p-Zustands wird die effektive Masse der Elektronen zu  $m_e^* = (0,063 \pm 0,003)m_e$  ermittelt.

# Anhang A

## Heterostrukturen

Übersicht der Schichtenfolgen der in dieser Arbeit untersuchten Quantenpunktproben, die gewachsen wurden von Gilberto Medeiros-Ribeiro und Jorge Garcia an der University of California, Santa Barbara.

Schichten	Material	MC 23 [nm]	MC 24 [nm]	MC 27 [nm]	MC 30 [nm]	MC 35 [nm]	MC 36 [nm]
Cap	GaAs	4	4	2	2	2	4
Übergitter	AlAs/GaAs	116	116	100	88	168	176
Spacer	GaAs	30	30	30	30	30	30
Quantenpunkte	InAs	1,8 ML	1,8 ML	1,8 ML	1,8 ML	1,8 ML	1,8 ML
Tunnelbarriere $d_1$	GaAs	30	25	22	20	40	35
Rückkontakt (bc)	GaAs (Si dot.)	20	20	20	80	80	80
Spacer	GaAs	10	10	10	10	10	10
Übergitter	AlAs/GaAs	160	160	160	160	160	160
Buffer	GaAs	1000	1000	1000	1000	1000	1000
Abstand bc-cap $d_{total} (= d_1 + d_2)$		180	175	154	140	240	245
Hebelarm $\lambda (= d_{total} / d_1)$		6	7	7	7	6	7
$d_1$		30	25	22	20	40	35
$d_2$		150	150	132	120	200	210

Übersicht der Schichtenfolgen der in dieser Arbeit untersuchten Quantenpunktproben, die gewachsen wurden von Dirk Reuter und Peter Schafmeister an der Ruhr-Universität Bochum.

Schichten	Material	11060 [nm]	11061 [nm]	11157 [nm]	11190 [nm]	11194 [nm]	11210 [nm]
Quantenpunkte (Oberfläche)				1,8 ML			
Cap	GaAs	10	8	10	10	8	10
Übergitter	AlAs/GaAs	200	172	100	200	172	200
Spacer	GaAs	30	30	30	30	30	30
Quantenpunkte	InAs	1,8 ML	1,8 ML	1,8 ML	2,0 ML	2,0 ML	2,0 ML
Tunnelbarriere $d_1$	GaAs	40	35	25	40	35	40
Rückkontakt (bc)	GaAs (Si dot.)	20	20	300	20	20	20
Spacer	GaAs	400	400	-	400	400	400
Übergitter	AlAs/GaAs	120	120	80	120	120	120
Buffer	GaAs	50	50	50	50	50	50
Abstand bc-cap $d_{total} (= d_1 + d_2)$		280	245	165	280	245	280
Hebelarm $\lambda (= d_{total} / d_1)$		7	7	6,6	7	7	7
$d_1$		40	35	25	40	35	40
$d_2$		240	210	140	240	210	240

# Anhang B

## Verwendete Naturkonstanten und Materialparameter

**Tabelle B.1:** Verwendete Naturkonstanten

Bezeichnung	Symbol	Wert
Elementarladung	e	$1,602 \cdot 10^{-19}$ C
elektrische Feldkonstante	$\epsilon_0$	$8,854 \cdot 10^{-12}$ CV $^{-1}$ m $^{-1}$
Masse des freien Elektrons	$m_e$	$9,109 \cdot 10^{-31}$ kg
Elektronenvolt	eV	$1,602 \cdot 10^{-19}$ J
Boltzmann-Konstante	$k_B$	$1,381 \cdot 10^{-23}$ JK $^{-1}$
Planck-Konstante	$\hbar$	$1,055 \cdot 10^{-34}$ Js

**Tabelle B.2:** Einige Materialparameter für die in den Quantenpunktproben vorhandenen Halbleitermaterialien

Bezeichnung	Symbol	Wert	Einheit	Quelle
Dielektrizitätszahl	$\epsilon$ (GaAs)	13,18	-	[Samara83]
Dielektrizitätszahl	$\epsilon$ (AlAs)	10,06	-	[Samara83]
Dielektrizitätszahl	$\epsilon$ (InAs)	14,6	-	[Adachi92]
effektive Masse	$m_e^*$ (GaAs)	0,067	$m_e$	[Adachi85]
effektive Masse	$m_e^*$ (AlAs)	0,150	$m_e$	[Adachi92]
effektive Masse	$m_e^*$ (InAs)	0,022	$m_e$	[Adachi85]

## Anhang C

### C1. Herleitung von $\frac{C_1}{C_b} = \lambda$ .

Die Hintergrundkapazität  $C_b$  ist gegeben durch:

$$\frac{1}{C_b} = \frac{1}{C_1} + \frac{1}{C_2}. \quad (\text{A.1})$$

Umgeformt ergibt sich

$$C_b = \frac{C_1 C_2}{C_1 + C_2} = \frac{\frac{\varepsilon_0}{d_1} \cdot \frac{\varepsilon_0}{d_2}}{\frac{\varepsilon_0}{d_1} + \frac{\varepsilon_0}{d_2}} = \frac{\frac{\varepsilon_0^2}{d_1 d_2}}{\frac{\varepsilon_0 d_1 + \varepsilon_0 d_2}{d_1 d_2}} = \frac{\varepsilon_0}{d_1 + d_2}. \quad (\text{A.2})$$

Außerdem ist die geometrische Kapazität gegeben durch

$$C_1 = \frac{\varepsilon_0}{d_1}. \quad (\text{A.3})$$

Durch Kombination der Gleichungen A.2 und A.3 folgt damit

$$\frac{C_1}{C_b} = \frac{\varepsilon_0}{d_1} \cdot \frac{d_1 + d_2}{\varepsilon_0} = \lambda. \quad (\text{A.4})$$

## C2. Abschätzung von $C_q$

Im Folgenden wird eine Abschätzung der Quantenkapazität  $C_q$  dargestellt, mit der sich  $C_q$  bei Kenntnis des Hebelarms  $\lambda$  und des Differenzsignals  $\Delta C$  im betrachteten Lademaximum berechnen lässt.

Die Hintergrundkapazität  $C_b$  ist gegeben durch:

$$\frac{1}{C_b} = \frac{1}{C_1} + \frac{1}{C_2}. \quad (\text{A.5})$$

Auflösen nach  $C_1$  ergibt:

$$C_1 = \frac{C_2 C_b}{C_2 - C_b}. \quad (\text{A.6})$$

Für die Gesamtkapazität erhält man:

$$\frac{1}{C_{ges}} = \frac{1}{C_2} + \frac{1}{C_1 + C_q}. \quad (\text{A.7})$$

oder

$$C_{ges} = \frac{C_2(C_1 + C_q)}{C_1 + C_2 + C_q}. \quad (\text{A.8})$$

Das Differenzsignal am Lademaximum ist gleich dem Gesamtsignal  $C_{ges}$ , von dem die Hintergrundkapazität subtrahiert wird.

$$\Delta C = C_{ges} - C_b. \quad (\text{A.9})$$

Setzt man in Gl. (A.8) nun die Gl. (A.9) und den Wert für  $C_1$  ein (Gl. (A.6)), so folgt:

$$C_q = \frac{C_2^2 \Delta C}{\Delta C(C_2 - C_b) + (C_2 - C_b)^2}. \quad (\text{A.10})$$

Aus Gl. (A.6) folgt

$$C_2 - C_b = \frac{C_2 C_b}{C_1}, \quad (\text{A.11})$$

was eingesetzt in Gl. (A.10) ergibt:

$$C_q = \Delta C \frac{1}{\frac{\Delta C C_b}{C_1 C_2} + \left(\frac{C_b}{C_1}\right)^2} \approx \Delta C \left(\frac{C_1}{C_b}\right)^2 = \Delta C \lambda^2. \quad (\text{A.12})$$

Beispielsweise ergibt sich für das Probenmaterial MC35 mit  $C_1 = 133\text{pF}$ ,  $C_2 = 22,2\text{pF}$ ,  $\Delta C = 0,3\text{pF}$  und  $C_b = 19\text{pF}$  und  $\lambda = 6$ :

$$C_q \approx 10,8\text{pF},$$

wobei der Term  $\frac{\Delta C C_b}{C_1 C_2}$  eine Größenordnung kleiner ist als  $\left(\frac{C_b}{C_1}\right)^2$ , so dass sich ein geschätzter Fehler von 10% ergibt.

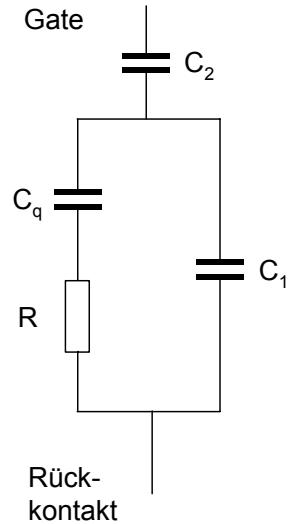
### C3. Gesamtipedanz der Ersatzschaltung

Reihenschaltung von  $C_q$  und  $R$ :

$$Z_1 = R - \frac{i}{\omega C_q}$$

Parallelschaltung von  $Z_1$  und  $C_1$ :

$$Z_2 = \frac{1}{i\omega C_1 + \frac{1}{R - \frac{i}{\omega C_q}}}$$



Die Gesamtipedanz  $Z_{ges}$  folgt dann aus der Reihenschaltung von  $Z_2$  mit  $C_2$ :

$$Z_{ges} = \frac{1}{i\omega C_1 + \frac{1}{R - \frac{i}{\omega C_q}}} - \frac{i}{\omega C_2}$$

Auf einen Nenner gebracht ergibt sich:

$$Z_{ges} = \frac{\omega RC_q(C_1 + C_2) - i(C_1 + C_2 + C_q)}{\omega C_2(C_1 + C_q + i\omega RC_q C_1)}$$

Nach Real- und Imaginärteil getrennt erhält man:

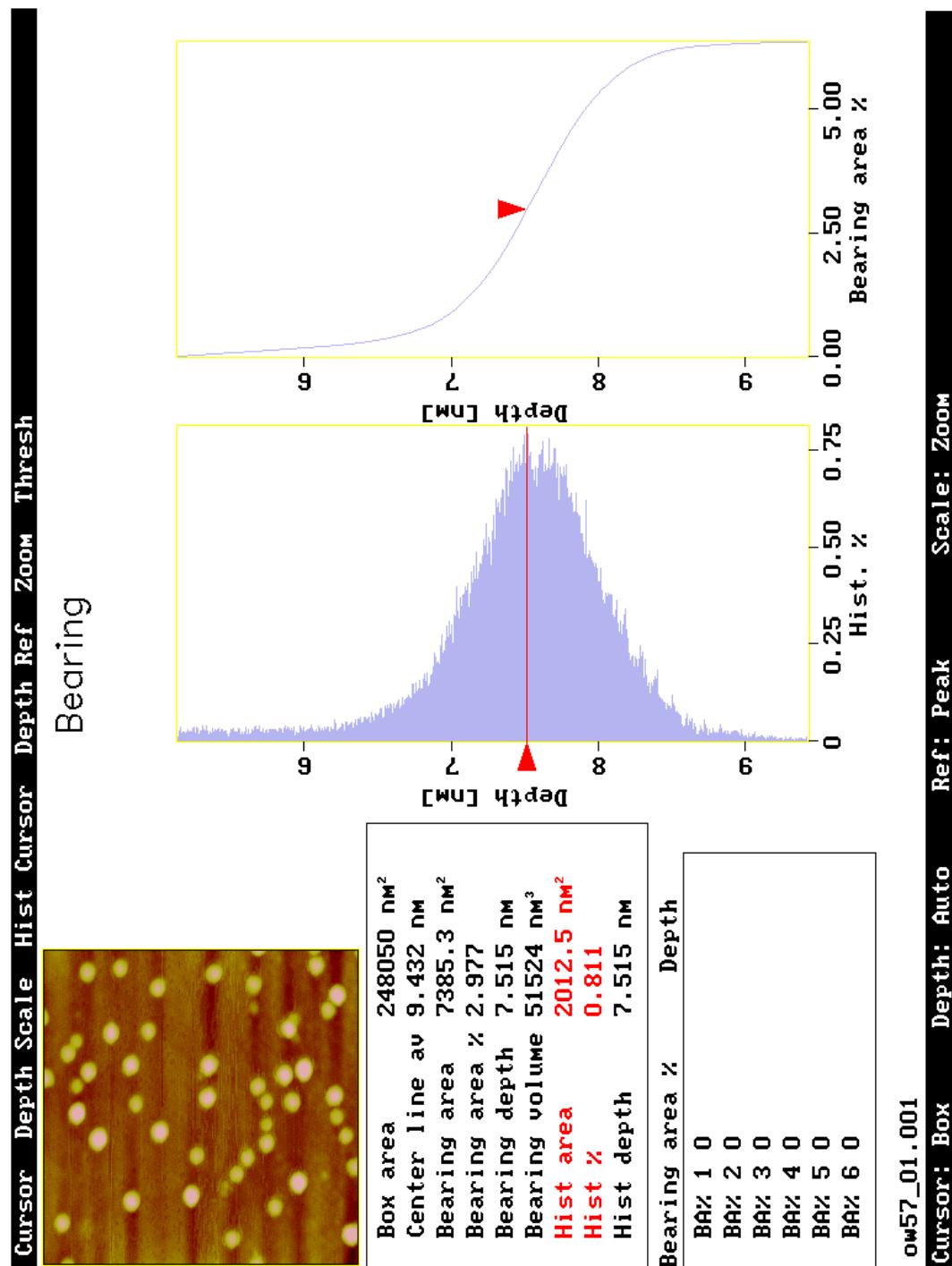
$$\operatorname{Re}(Z_{ges}) = \frac{RC_q^2}{(C_1 + C_q)^2 + (C_1 \omega RC_q)^2}$$

$$\operatorname{Im}(Z_{ges}) = -\frac{C_2(C_1 + C_q) + (C_1 + C_q)^2 + R^2 \omega^2 C_q^2 (C_1 C_2 + C_1^2)}{\omega C_2 [(C_1 + C_q)^2 + (C_1 \omega RC_q)^2]}.$$

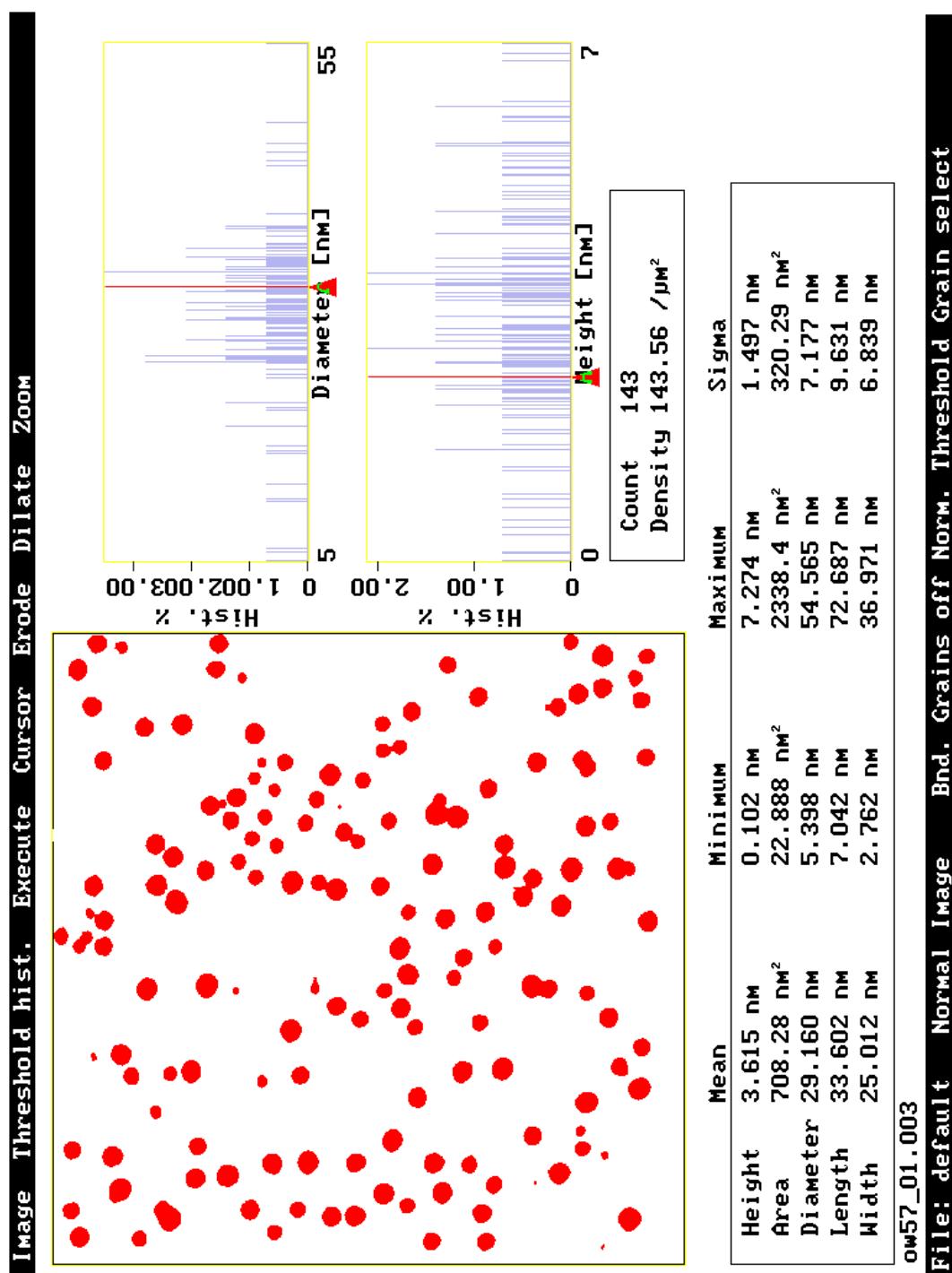
# Anhang D

## **AFM-Auswertungen**

Auf den folgenden zwei Seiten sind die Bildschirmkopien der Auswertungen mittels Rasterkraftmikroskopie (AFM) dargestellt. Untersucht wurde die Quantenpunktprobe 11157 mit zusätzlich an der Oberfläche aufgewachsenen Quantenpunkten.



**Abbildung D.1:** Komplette Bildschirmkopie zur AFM-Auswertung in Abb. 3.4. Die durchschnittliche Höhe der Quantenpunkte wurde für die Probe 11157 zu 7,5nm bestimmt.



**Abbildung D.2:** Komplette Bildschirmkopie zur AFM-Auswertung in Kap. 4.1.3. Die Quantenpunktdichte wurde für die Probe 11157 zu  $1,4 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$  bestimmt.

# Literaturverzeichnis

[Adachi85]

S. Adachi, J. Appl. Phys. **58**, R1, 1985

[Adachi92]

S. Adachi, *Physical Properties of III-V Semiconductor Compounds* (John Wiley & Sons, New York, 1992)

[Beenakker91]

C. W. J. Beenakker, Phys. Rev. B **44**, 1646 (1991)

[Darwin30]

C. G. Darwin, Proc. Cambridge Phil. Soc. **27**, 86 (1930)

[Davies98]

J. H. Davies, *The Physics of low-dimensional semiconductors* (Cambridge University Press, 1998)

[Fleig02]

J. Fleig, persönliche Mitteilung (2002)

[Fock28]

V. Fock, Z. Phys. **47**, 446 (1928)

[Fricke95]

M. Fricke, Diplomarbeit (LMU München, 1995)

[Fricke96a]

M. Fricke, A. Lorke, J. P. Kotthaus, G. Medeiros-Ribeiro, und P. M. Petroff, Eurephys. Lett. **36**, 197 (1996)

[Fricke96b]

M. Fricke, A. Lorke, M. Haslinger, J. P. Kotthaus, G. Medeiros-Ribeiro, und P. M. Petroff, *The Physics of Semiconductors*, M. Scheffler und R. Zimmermann, Eds. (World Scientific, Singapore 1996) pp. 1609-1612

[Gabrielli81]

C. Gabrielli, *Identification of Electrochemical Processes by Frequency Response Analysis*, Monograph Ref. 004/83 (Solartron Instrumentation Group, 1981)

[Kastner93]

M. Kastner, Physics Today **46**, 24 (1993)

[Knight69]

S. Knight, C. Paola, *Ohmic Contacts to Semiconductors* (B. Schwartz, 1969)

[Leonard94]

D. Leonard, K. Pond, und P. M. Petroff, Phys. Rev. B **50**, 11687 (1994)

[Levin01]

A. Levin, E.E. Vdovin, A. Patanè, L. Eaves, P.C. Main, Yu. N. Khanin, Yu. V. Dubrovskii, M. Henini, und G. Hill, Phys. Stat. Sol. (b) **224**, 715 (2001)

[Luryi88]

S. Luryi, Appl. Phys. Lett. **52**, 501 (1988)

[Luyken99a]

R. J. Luyken, A. Lorke, A. O. Govorov, J. P. Kotthaus, G. Medeiros-Ribeiro und P. M. Petroff, Appl. Phys. Lett. **74**, 2486 (1999)

[Luyken99b]

R. J. Luyken, Dissertation (LMU München, 1999)

[Macdonald87]

R. J. Macdonald, *Impedance Spectroscopy, Emphasizing Solid Materials and Systems* (John Wiley & Sons, New York, 1987)

[Medeiros97]

G. Medeiros-Ribeiro, F. G. Pikus, P. M. Petroff, und A. L. Efros, Phys. Rev. B **55**, 1568 (1997)

[Merkt91]

U. Merkt, J. Huser, und M. Wagner, Phys. Rev. B **43**, 7320 (1991)

[Miller98]

B.T. Miller, Dissertation (LMU München, 1998)

[Peeters96]

F. M. Peeters und V. A. Schweigert, Phys. Rev. B **53**, 1468 (1996)

[Ruß02]

M. Ruß, persönliche Mitteilung (2002)

[Samara83]

G. A. Samara, Phys. Rev. B **27**, 3494, 1983

[Schmidt97]

K. H. Schmidt, G. Medeiros-Ribeiro, J. Garcia, und P. M. Petroff, Appl. Phys. Lett. **70**, 1727 (1997)

[Tarucha96]

S. Tarucha, D. G. Austing, T. Honda, R. J. van der Hage und L. P. Kouwenhoven, Phys. Rev. Lett. **77**, 3613 (1996)

[Vdovin00]

E.E. Vdovin, A. Levin, A. Patanè, L. Eaves, P.C. Main, Yu. N. Khanin, Yu. V. Dubrovskii, M. Henini, und G. Hill, Science **290**, 122 (2000)

[Wiggers97]

H. Wiggers, Handbuch *VisFit / VisPlot* (1997)

[Warburton98]

R. J. Warburton, B. T. Miller, C. S. Dürr, C. Bödefeld, K. Karrai, und J. P. Kotthaus und G. Medeiros-Ribeiro, P. M. Petroff und S. Huant, Phys. Rev. B **58**, 16221 (1998)

[Wojs96]

A. Wojs und P. Hawrylak, Phys. Rev. B **53**, 10841 (1996)

# Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich herzlich bedanken bei den vielen Personen, die mir behilflich waren, die interessante und herausfordernde Forschung im Rahmen dieser Diplomarbeit zu betreiben.

Besonderen Dank möchte ich Herrn Prof. Dr. Axel Lorke aussprechen, der dieses Forschungsthema erst ermöglicht hat und der mir stets mit gutem Rat und wertvoller Hilfe und Kreativität zur Seite stand.

Herrn Dr. Hartmut Wiggers, der mich sehr bei den Impedanzmessungen unterstützt hat, und zudem freundlicherweise einen Teil der Messapparaturen und der Messzeit zur Verfügung gestellt hat.

Herrn Dr. Dirk Reuter und Herrn Peter Schafmeister der Ruhr-Universität Bochum danke ich für das Wachsen des sehr guten Probenmaterials, welches einen Großteil der Messungen in dieser Arbeit ermöglicht hat.

Herrn Dr. Hans J. Clemens und Herrn Quoc Thai Do danke ich für die Einweisung am Rasterkraftmikroskop. Für anregende Gespräche über elektrotechnische und physikalische Themen danke ich Herrn Dr. Cedrik Meier.

Ebenso großer Dank gebühren Alida Würtz, Thorsten Müller und Marco Ruß, die mich in die Reinraum-Präparationstechniken eingewiesen haben und die stets ein offenes Ohr für physikalische Fragestellungen hatten.

Herrn Burkhard Stahlmecke danke ich für seine freundliche Hilfe beim Masken-anfertigen am Elektronenstrahlschreiber.

Auch den Herren Mathias Bartsch und Jürgen Krusenbaum gilt mein Dank für gute Mitarbeit bezüglich der Elektronik und der technischen Zeichnungen.

Allen Mitarbeitern der feinmechanischen Werkstatt danke ich für das pünktliche Anfertigen vieler Kleinteile, die für die Probenmessung notwendig waren.

Besonders bedanke ich mich bei allen Mitgliedern unserer Arbeitsgruppe für die gute Zusammenarbeit und die schöne Zeit.

Nicht zuletzt bedanken möchte ich mich bei meiner ganzen Familie, insbesondere meinen Eltern, die mich bei allem sehr unterstützt haben.

Hiermit versichere ich, dass ich die Arbeit selbstständig verfasst, Zitate kenntlich gemacht und keine anderen als die hier angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt habe.

Duisburg, 27. September 2002