

Halbleiter für Quantumcomputing: Wertschöpfung und chemischer Fingerabdruck von isotopenreinem Silicium-28

Owen C. Ernst, David Uebel, Roman Brendler, Anne Handschick-Ernst, Jörg Acker

Brandenburgische Technische Universität Cottbus-Senftenberg, Universitätsplatz 1, 01968 Senftenberg

Kurzfassung

Isotopenreine Halbleiter wie Silicium-28 (^{28}Si) nehmen eine Schlüsselposition als Materialplattform für Zukunftstechnologien wie dem Quantencomputing ein. Ihre Wertschöpfungskette ist jedoch komplex und teuer. Da der Anreicherungsprozess in Silicium-28-Tetrafluorid ($^{28}\text{SiF}_4$) stattfinden muss und dieses industriell nur schwer nutzbar ist, sind chemische Umwandlungsverfahren zu $^{28}\text{SiH}_4$ oder andere Silane notwendig. Zwar existiert eine Handvoll chemischer Methoden für die Umwandlung, jedoch besitzen diese individuellen chemische Fingerabdrücke, welche in den weiteren Verarbeitungsschritten zum Quantenbauteil problematisch sind. Die hohen Anforderungen der Halbleiterindustrie und der Quantentechnologie stellt zudem die Analytik vor große Herausforderungen. So kommen gasanalytische Methoden bei der sehr hohen benötigten Reinheit an ihre Nachweisgrenze. Die komplexe Wertschöpfung von ^{28}Si und $^{28}\text{SiH}_4$ führen zu extrem hohen Marktpreisen von aktuell über 1'000 EUR/g. Im ersten Teil dieser Arbeit wird die Wertschöpfungskette für ^{28}Si vorgestellt. Im zweiten Teil werden die Ergebnisse eigener chemischer Umwandlungsexperimente von $^{28}\text{SiF}_4$ zu $^{28}\text{SiH}_4$ gezeigt. Bereits vor der chemischen Aufreinigung konnte eine sehr gute Gasreinheit von <50 ppm erreicht werden, womit die Ergebnisse aus der Literatur reproduziert und z.T. übertroffen werden könnten.

Abstract

Isotopically pure semiconductors such as silicon-28 (^{28}Si) play a key role as a material platform for future technologies such as quantum computing. However, their value chain is complex and expensive. Since the enrichment process must take place in silicon-28 tetrafluoride ($^{28}\text{SiF}_4$), which is difficult to use industrially, chemical conversion processes to $^{28}\text{SiH}_4$ or other silanes are necessary. Although there are a handful of chemical methods for conversion, these have individual chemical fingerprints that are problematic in the further processing steps to produce quantum components. The high demands of the semiconductor industry and quantum technology also pose major challenges for analytics. Gas analysis methods, for example, reach their detection limits due to the very high purity required. The complex value chain of ^{28}Si and $^{28}\text{SiH}_4$ leads to extremely high market prices of currently over EUR 1,000/g. The first part of this study presents the value chain for ^{28}Si . The second part shows the results of our own chemical conversion experiments from $^{28}\text{SiF}_4$ to $^{28}\text{SiH}_4$. Even before chemical purification, a very good gas purity of <50 ppm was achieved, thus reproducing and exceeding the results from the literature.

1 Einleitung

Isotopenreine Materialien besitzen veränderte chemische und physikalische Eigenschaften, welche sie für verschiedene technische Anwendungen interessant machen. Als zunehmend relevantes Beispiel ist das ^{28}Si -Isotop zu nennen. ^{28}Si besitzt die höchste jemals gemessene thermische Wärmeleitfähigkeit eines Dielektrikums [1]. Mit 450 W/cmK bei 21 K übersteigt der Wert die Leitfähigkeit von natürlichem Silizium (^{nat}Si) um den Faktor 10. Dies macht den Halbleiter für die Tieftemperaturphysik und mikroelektronische Bauteile mit hoher Wärmeentwicklung attraktiv. Weitere Anwendungen ergeben sich aus der um 58 meV verschobenen Bandlücke [2]. Hochenergetische Messungen zeigen eine präzisere Feinstruktur der nicht-phononischen Photolumineszenzlinien gebundener Exzitonen, die sich bspw. aus B-Dotierung ergeben. Die verbesserte Feinstruktur im Photolumineszenzspektrum kann für Exzitonprozesse in isotopisch reinen Materialien mit hoher Auflösung genutzt werden, bspw. in der Quantensensorik. Darüber hinaus besitzt ^{28}Si entscheidende Bedeutung als Materialplattform für das Spin-Quantencomputing und die Spintronik [3-5]. Hierfür werden ^{28}Si -Heterostrukturen

verwendet, an deren Grenzfläche 2-dimensionale Elektronengase (2DEG) oder Lochgase (2DHG) entstehen, in denen Landungsträgerspinzuständen vereinzelt, manipuliert, gemessen und schlussendlich als Qubits verwendet werden können. Die Isotopenreinheit der Materialplattform ist entscheidend, da Kernspins von ungeradzahligem Isotopen wie ^{29}Si mit den Landungsträgerspins über Fermi-Kontakt-Wechselwirkung interagieren und die Dekohärenzzeit maßgeblich senken. Geradzahlige Isotope wie ^{28}Si sind dagegen Kernspin-frei ($I=0$). Man spricht auch vom „Spin-Vakuum“. Bei einer Absenkung des ^{29}Si -Gehalts von 100 % auf 1 ppm kann eine Dekohärenzzeitsteigerung von $T_2=20 \mu\text{s}$ auf $T_2=60 \text{s}$ erfolgen [6].

Silicium-Spin-Qubits auf 300-mm-Wafern zeigen bereits heute hohe Fidelity-Werte von >99% (two-qubit control fidelity and measurement fidelity), wodurch die prinzipielle Skalierbarkeit des Ansatzes gezeigt ist [7]. Die Kohärenz der Systeme ist jedoch auch heute auf $T_2^{\text{echo}} \approx 100\text{-}800 \text{ms}$ begrenzt [6-9]. Grund hierfür ist die geringe aktuelle Materialqualität von isotopenreinem ^{28}Si .

Die Wertschöpfungskette für ^{28}Si ist komplex und teuer. Sie erfordert aufwendige Anreicherungs- und chemische Umwandlungsverfahren, die einen chemischen Fingerabdruck hinterlassen. Die einhergehenden Verunreinigungen

senken die Kohärenzzeit der Ladungsträger [6,10]: T_2^{echo} -Zeit sinkt bei Donor-Konzentrationen $C_E=1.2 \times 10^{14} / \text{cm}^3$ bei 1 ppm ^{29}Si von 60 s auf 200 ms ab. Es fehlen instrumentelle Methoden zur kostengünstigen Aufreinigung und Sicherstellung der chemischen und isotopischen Reinheit. Bis 2022 wurde Material über individuelle F&E-Kanäle aus Russland beschafft. Aufgrund der geopolitischen Spannungen und Handelsrestriktionen stellt sich seitdem ein Liefer- und Materialengpass ein. Für industrielle Hersteller sind die schlechte Verfügbarkeit und die eingeschränkte Materialqualität ein technisches und wirtschaftliches Problem. Nichtsdestotrotz wird das wenige verfügbare Material für hohe Preise $> 1'000 \text{ EUR/g}$ gehandelt.

Die limitierte Verfügbarkeit von ^{28}Si wird von der Transatlantic Quantum Community (TQC) seit 2025 als eine „key vulnerability“ eingestuft. Der Bericht *Critical Vulnerabilities in the Quantum Computing Supply Chain within the NATO Alliance* (2025) empfiehlt “[to] Develop an understanding of the key requirements needed to support the fabrication of semiconductor spin systems, including any specialized requirements for the successful integration of isotopically pure ^{28}Si into the process flow”.

In dieser Arbeit geben wir einen Überblick über die komplexe Wertschöpfungskette für isopenreine Halbleiter und die bisherigen Synthesemethoden. Darüber hinaus wird eine neue Methode zur lokal selektiven, laser-gestützten Prüfabscheidung vorgestellt, mit der die chemische und isotopische Reinheit von ^{28}Si bereits im Präkursorgas ohne großen Materialverlust zugänglich gemacht wird.

Dies eröffnet erstmals die Möglichkeit zu Produktion von reproduzierbar electronic grade ^{28}Si , welche die Anforderungen der Halbleiterindustrie erfüllt.

2 Technischer Überblick

2.1 Wertschöpfungskette

2.1.1 Isotopische Anreicherung

Es existiert eine Bandbreite von physikalischen Methoden zur isotopischen Anreicherung [11]. Wirtschaftlich konnten sich bisher nur Gegenstromzentrifugen durchsetzen.

In Gaszentrifugen wird die Isotopenanreicherung durch die Nutzung der massenabhängigen Trägheit von Molekülen erreicht. Die Isotopentrennung findet in rotierenden Zylindern statt. Ein in die Zylinder eingeleitetes Gas, z. B. SiF_4 , wird einer permanenten Beschleunigung ausgesetzt. Die resultierende Trägheitskraft F kann anhand der folgenden einfachen Beziehung

$$F = Mv^2r^{-1}$$

(M – Molmasse; v – Umlaufgeschwindigkeit; r – Radius des Zylinders) berechnet werden und sorgt für die Isotopentrennung.

Die Anreicherung wird in der Regel in SiF_4 durchgeführt, da es als eine von wenigen Si-Verbindungen die chemischen und physikalischen Anforderungen erfüllt [12,13]:

- i. Der Dampfdruck der Substanz muss 5–10 mmHg ($\cong 0,7\text{--}1,3 \text{ kPa}$) überschreiten, da die Anreicherung eine stabile gasförmige Quelle erfordert.

- ii. Für eine ausreichende Anreicherung darf die Molekülmasse der Moleküle nicht weniger als 40 u betragen. Höhere Molekülmassen sind in der Regel mit höheren Anreicherungsraten und einem geringeren Energieverbrauch verbunden.
- iii. Die anzureichernde Substanz muss eine ausreichend hohe thermische Stabilität aufweisen.
- iv. Es sollte keine chemische Reaktion zwischen den Molekülen anzureichernden Substanz oder mit Anreicherungskammer stattfinden.

Moderne Gaszentrifugen, auch bekannt als ZIPPE- oder KAMENEV-Zentrifugen, bestehen aus hohen, vertikal rotierenden Zylindern. In der Regel bestehen sie aus kohlenstofffaserverstärktem Stahl mit einem Zylinderradius von 5 cm und können Drehzahlen von 750 ms^{-1} und mehr erreichen [14]. Hohe Drehzahlen werden nicht mehr durch einfache Elektromotoren erreicht, sondern durch ein rotierendes Magnetfeld, das den Zylinder selbst in Drehung versetzt. Auf ein Molekül SiF_4 wirkt eine Kraft von bis zu 12.000 eVm ($>1.000.000 \text{ g}$). Dem wirkt ein Druckgefälle zwischen dem gegen die Zylinderwand komprimierten Gas und dem an der Drehachse erzeugten Vakuum entgegen. Ist der Druck an der Wand aufgrund hoher Umwälzgeschwindigkeiten zu hoch, kann das Gas an den Wänden der Zentrifuge kondensieren.

In der Gegenstromzentrifuge entsteht zusätzlich zum Gasstrom von innen nach außen ein vertikaler Druckunterschied, der die Moleküle nahe der Drehachse nach unten (oder oben) drückt. Durch Erhitzen des Zylinderkopfes und Veränderung der Geometrie des Zylinderinneren kann ein Gegenstrom erzeugt werden, der die inneren Druckunterschiede aufrechterhält oder sogar verstärkt. Dieser Strom führt zu horizontalen Zonen innerhalb des Zylinders. In jeder Zone findet eine horizontale Anreicherung von innen (leichte Moleküle) nach außen (schwere Moleküle) statt. Aufgrund des vertikalen Druckunterschieds werden die schweren Moleküle langsam in die darüber (oder darunter) liegende Zone abgegeben, während die leichten Moleküle in die entgegengesetzt liegende Zone wandern. Der Anreicherungsgrad steigt mit jeder zusätzlichen Zone. Daraus ergeben sich zwei Strategien. Zum einen können viele kurze Zentrifugen miteinander verbunden werden. Der Anreicherungsgrad kann durch die Reihenschaltung der Zentrifugen erhöht werden, und der Durchsatz kann durch Parallelschaltung gesteigert werden. Diese technische Lösung ist sehr flexibel und lässt sich schnell an veränderte Systemparameter oder Produkthanforderungen anpassen. Die zweite Strategie basiert auf einer geringen Anzahl hoher Zentrifugen. Dadurch lassen sich viele Anreicherungs-zonen innerhalb eines Zylinders realisieren. Dadurch läuft der Prozess schneller und erfordert weniger wartungsintensive Einzelkomponenten. Außerdem wird die Kontamination durch Zylinderwände und Gasleitungen minimiert. Die Herausforderung bei dieser Methode ist die Stabilität der hohen Zylinder. Beim Anlaufen der Rotationsmotoren müssen die Biegefrequenzen der Zylinder überwunden werden. Zylinder, die länger als 1 m sind, laufen Gefahr, sich kritisch zu verformen, wenn sie nicht durch spezielle Federkonstruktionen stabilisiert werden.

Urenco Ltd. ist der weltweit größte Hersteller von isotopisch reinen Materialien und setzt dabei ausschließlich auf Gegenstromgaszentrifugen. Nur die Anreicherungsanlagen der russischen TVEL Fuel Company, einer Tochtergesellschaft der staatlichen Atomenergoprom-Gruppe, verfügen über eine ähnliche Produktionskapazität.

Sowohl Urenco als auch TVEL haben nachgewiesen, dass sie $^{28}\text{SiF}_4$ auf eine isotopische Reinheit von bis zu 99,9999 % anreichern können.

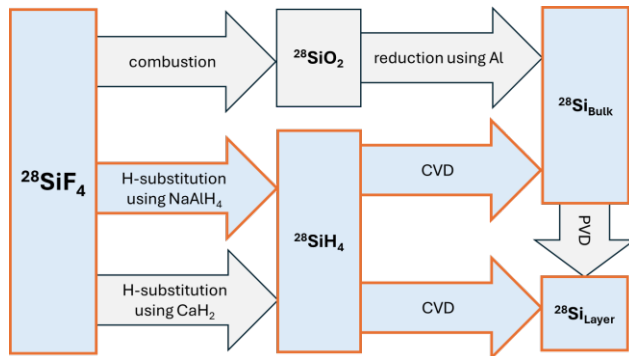


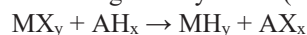
Bild 1 Umwandlungsrouen von $^{28}\text{SiF}_4$.

2.1.2 Chemische Umwandlung

$^{28}\text{SiF}_4$ ist für die meisten industriellen Prozesse ungeeignet [11]. Der Grund liegt u.a. in der außergewöhnlich hohen negativen Standardbildungsenthalpie (<-1500 kJ/mol [15]) des Moleküls. Die Si-F-Bindung gilt als die stärkste bisher gemessene Einfachbindung. Industriell benötigt werden verschiedene Silan-Spezies wie Monosilan SiH_4 oder Trichlorsilan HSiCl_3 als CVD-Präkursoren.

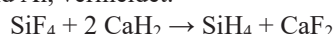
Die Umwandlung von inerten Fluoriden in isotopisch reine Halbleiterpräkursoren stellt eine besondere Herausforderung dar (**Bild 1**). Die chemische Reduktion von Siliciumtetrafluorid wird seit den 1960er Jahren als Verfahren zur Herstellung von SiH_4 untersucht.

Möglich ist die quantitative Umwandlung von Halbmetallhalogeniden (MX_y) in ihre Wasserstoffverbindungen (MH_y) unter Verwendung von Hydriden (AH_x).



In frühen Forschungsarbeiten wurden Umwandlungen mit gelösten Alkalihydriden durchgeführt, die Aluminium (Al), Lithium (Li), Natrium (Na) oder Kombinationen davon enthielten. Diese Hydride müssen vorhergehend in organischen Lösungsmitteln wie Dimethylether, Diethylenglykol oder Tetrahydrofuran gelöst werden, wodurch C-Verunreinigungen entstehen [16,17].

Alternativ kann festes Calciumhydrid (CaH_2) zur Reduktion verwendet wurde. Der Vorteil dieser Methode liegt in ihrer Einfachheit, da sie nur $^{28}\text{SiF}_4$ und CaH_2 umfasst und somit die Einführung kritischer Verunreinigungen, insbesondere C und Al, vermeidet.



2.1.3 Abscheidung

Für die Synthese von ^{28}Si -Volumenfestkörpern wird die $^{28}\text{SiH}_4$ in angepassten Siemens-Ofen thermisch zersetzt. Die Reaktionsbedingungen wie Temperatur und Druck

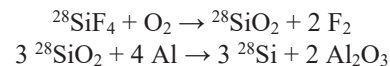
sind entscheidend für die Qualität und die Struktur der gewachsenen Schicht und ermöglichen die Bildung von polykristallinem Silizium [18]. ^{28}Si -Einkristalle können im Anschluss bspw. über Zonenschmelzverfahren erhalten werden. Diese Methode wurde zur Herstellung größerer Mengen ^{28}Si für das Avogadro-Projekt genutzt [19,20]. Bemerkenswert ist, dass zuvor mit dem CaH_2 -Verfahren erhebliche Mengen (5 kg) an $^{28}\text{SiH}_4$ hergestellt wurden.

Für Quantensysteme wird ^{28}Si als dünne Schichten in Heterostack benötigt. $^{28}\text{SiH}_4$ wird hierbei als Präkursor für Niederdruck-CVD-Prozesse verwendet. Epitaktisches Wachstum ist bei 650 °C und einem Druck von 20 mbar möglich, wodurch sich eine Schicht aus ^{28}Si auf einem Siliziumwafer mit natürlicher Isotopenzusammensetzung bilden kann. Mit diesem Verfahren können Epitaxieschichten mit einem Durchmesser von über 300 mm hergestellt werden [7,21].

2.2 Chemische Reinheit

Die Anreicherung von $^{28}\text{SiF}_4$ ist bereits heute industriell möglich und Material auf dem Weltmarkt für Preise <500 EUR/g erhältlich. Herausforderung ist die chemische Umwandlung des Fluorids zu $^{28}\text{SiH}_4$ und ^{28}Si [11].

Erste Versuche begannen 1958 in den USA [22]. Die Hauptstrategie bestand in der Umwandlung von $^{28}\text{SiF}_4$ zu $^{28}\text{SiO}_2$ und der anschließenden Reduktion mit Al-Pulver bei 1100 °C



Die Methode wurde um 1994 in einer amerikanisch-russisch-deutschen Kooperation wiederbelebt.[20] $^{28}\text{SiO}_2$ stammte aus dem Oak Ridge National Laboratory (ORNL) und dem russischen Nationalen Metrologieinstitut (NMI). Bemerkenswert ist, dass das NMI-Material aufgrund hoher Verunreinigungen unbekannter Herkunft verworfen wurde, während das ORNL-Material in Zusammenarbeit zwischen der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt (PTB) und Wacker-Chemitronic in Deutschland mit der oben beschriebenen Al-Methode reduziert wurde. Die resultierenden ^{28}Si -Kristalle mit einer Masse von 300 g wiesen hohe Verunreinigungswerte mit C ($1,3 \times 10^{17}$ cm $^{-3}$), O ($1,1 \times 10^{16}$ cm $^{-3}$) und B (10^{18} cm $^{-3}$) auf.

Bei Experimenten Ende der 1990er Jahre, wurde die Reduktion mit Lithiumaluminiumhydrid (LiAlH_4) oder Natriumaluminiumhydrid (NaAlH_4) genutzt. Die dabei entstehenden Fluorsalze verschlammten jedoch das Lösungsmittel, was die Umsetzung und Skalierung dieser Verfahren technisch erschwert. Darüber hinaus führt das Lösungsmittel organische Lösungsmittel ein, die als Kohlenstoffquellen – elektrisch aktive Donatoren in Silizium – wirken können. Ebenfalls wirkt Al im Si elektrisch aktiv, was eine aufwendige Reinigung erforderlich macht. Es wurden Ausbeuten von über 99 % berichtet [16].

Fortschritte wurden mit einem damals neuartigen Ansatz erzielt, bei dem festes Calciumhydrid (CaH_2) zur Reduktion verwendet wurde. Da das verwendete $^{28}\text{SiF}_4$ aufwendig in der Beschaffung und kostspielig ist, spielt die Effizienz eine wichtige Rolle – d. h. die Umwandlung von ^{28}Si aus dem Rohmaterial in das Zielmaterial. Für den CaH_2 -

Ansatz wurden Wirkungsgrade von bis zu 90 % angegeben. Voltaix, ein amerikanisches Chemieunternehmen, das das CaH₂-Verfahren einsetzt, erreicht jedoch nur Wirkungsgrade von 66 %.

Reinheitswerte werden in den meisten Fällen nur für abgeschiedenen ²⁸Si-Festkörper (dünne Schichten oder Volumenkristalle) veröffentlicht. Die im Festkörper anwendbaren Charakterisierungsmethoden wie SIMS und FTIR besitzen i.d.R. um Größenordnungen bessere Nachweisgrenzen als Gasanalysemethoden. Jedoch kann die im Festkörper gemessene chemische Reinheit nur bedingt als Maß für den chemischen Fingerabdruck der chemischen Umwandlung zu ²⁸SiH₄ dienen, da die Abscheidung des Gases einen hohen Aufreinigungseffekt besitzt.

Die wenigen Studie, die Gas- und Festkörperreinheit vorstellen, zeigen, dass Gasverunreinigungen von 100 ppm nur noch mit <1 ppm im Festkörper auftreten.

3 Ergebnisse & Diskussion

In eigenen Versuchen wurden die Ergebnisse aus der Literatur reproduziert. Durch Reduktion mit Alkalihydriden konnte ²⁸SiH₄ mit Ausbeute von >90% dargestellt werden. Ausbeute und Selektivität der Reaktion ließen sich mithilfe von zwei Maßnahmen verbessern:

- i. Die Reaktion muss stark gekühlt (<-20°C) werden, um der exothermen Natur entgegenzuwirken,
- ii. Die Reaktionslösung muss stark verdünnt werden (<0.2 M), um Verschlämzung zu verhindern.

Diese Maßnahmen führen jedoch auch zu einer signifikanten Erhöhung der Reaktionszeit (> 7 d) und einer schlechteren Skalierbarkeit des Prozesses.

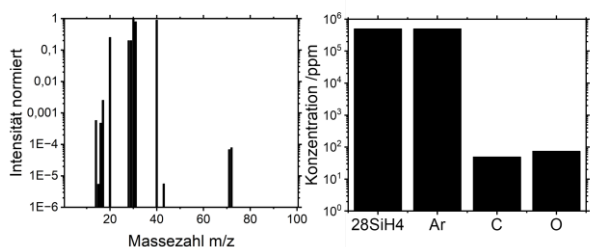


Bild 2 Gas-MS-Spektren der ²⁸SiH₄-Proben.

Bereits ohne die Nutzung der etablierten Aufreinigungsverfahren der Reinstgasindustrie, konnten mit dieser Methode gute Verunreinigungswerte von C (50 ppm $\hat{=}$ 5 \times 10¹⁷ cm⁻³) und O (100 ppm $\hat{=}$ 1 \times 10¹⁸ cm⁻³) erhalten werden (**Bild 2**). Aufgrund der zusätzlich aufreinigenden Wirkung der Abscheidungsverfahren, sind resultierende Festkörperwerte im \leq ppm-Bereich zu erwarten.

Eine Herausforderung stellt die Quantifizierung der Gasqualität nach Reinigung dar. Herkömmliche Messmethoden wie Gas-Massenspektrometrie stoßen bei Konzentrationen < 1 ppm an ihre Nachweisgrenzen. Für CVD-Prozesse spielt nicht nur die Konzentration an Verunreinigungen eine Rolle, sondern auch wie effektiv sich diese während des CVD-Prozesses abscheiden. So bringt CO₂ als C-Quelle weniger kritische Verunreinigungen ein als CH₄, da die Abscheiderate des CH₄ um ein Vielfaches höher ist.

Um niedrigere Nachweisgrenzen im ppb-Bereich oder besser zu erreichen, werden Prüfabscheidungen durchgeführt,

bei denen ein Teil der Präkursoren nach der Synthese in spezialisierten CVD-Anlagen zu Feststoff abgeschieden wird. Dieser Feststoff soll mittels Feststoffanalytik, etwa Sekundär-Ionen-Massenspektrometrie (SIMS), auf Reinheit geprüft werden.

4 Fazit & Ausblick

Im labortechnischen Aufbau wurde hochreines ²⁸SiH₄-Gas erzeugt, welches abgeschiedene Festkörper mit niedrigen Verunreinigungen im ppm Bereich verspricht. Diese Reinheit ist mit dem Literaturvergleich im Einklang, allerdings noch nicht genügend hoch für die direkte Verarbeitung zu Quantencomputern. Daher müssen Verbesserungen sowohl in der Prozesstechnik als auch in der Analytik vorangetrieben werden.

In der Halbleiter- und Reinstgastechnik haben sich verschiedene Aufreinigungsverfahren etabliert. Diese müssen prozesstechnisch an den chemischen Fingerabdruck der ²⁸Si-Wertschöpfungskette angepasst werden, um chemische Reinheiten von << 1 ppm und isotopische Reinheiten von > 5N zu gewährleisten.

Die resultierende Reinheit liegt unter der Nachweisgrenze der meisten gasanalytischen Methoden wie Gas-Massenspektrometer. Es werden innovative, materialsparende Methoden benötigt mit geringeren Nachweisgrenzen benötigt. Dies betrifft insbesondere CVD-Prüfabscheidung zum Festkörper und folgendes HR-SIMS. Selektive Laserabscheidung zu schnellen und materialsparenden Prüfabscheidung befindet sich an der BTU Cottbus-Senftenberg bereits in der Entwicklung.

5 Literatur

- [1] A. V Inyushkin et al., J Appl Phys, vol. 123, no. 9, p. 095112, 2018
- [2] D. Karaiskaj et al., Phys Rev Lett, vol. 86, no. 26, pp. 6010–6013, 2001
- [3] B. E. Kane, Nature, vol. 393, no. 6681, pp. 133–137, 1998
- [4] O. C. Ernst et al., Zeitschrift für Kristallographie-Crystalline Materials, vol. 237, no. 4–5, pp. 191–200, 2022.
- [5] Y. Liu et al., J Cryst Growth, vol. 593, p. 126733, 2022
- [6] W. M. Witzel et al., “Phys Rev Lett, vol. 105, no. 18, p. 187602, 2010.
- [7] P. Steinacker et al., Nature, vol. 646, no. 8083, pp. 81–87, Oct. 2025,
- [8] G. Scappucci et al., MRS Bull, vol. 46, no. 7, pp. 596–606, 2021
- [9] A. M. J. Zwerver et al., “Nat Electron, vol. 5, no. 3, pp. 184–190, 2022
- [10] K. M. Itoh and H. Watanabe, MRS Commun, vol. 4, no. 4, pp. 143–157, 2014
- [11] O. C. Ernst et al., Molecules, vol. 29, no. 17, p. 4222, 2024.
- [12] E. V. Levin et al., Atomic Energy, vol. 77, no. 4, pp. 760–767, 1994
- [13] V. D. Borisevich and E. V. Levin, Sep Sci Technol, vol. 36, no. 8–9, pp. 1697–1735, 2001,
- [14] D. Kushner, IEEE Spectr, vol. 50, no. 3, pp. 48–53, 2013,
- [15] P. Sukkaew, et al., ECS Journal of Solid State Science and Technology, vol. 5, no. 2, pp. P27–P35, 2016
- [16] P. G. Semnikov et al., J Radioanal Nucl Chem, vol. 306, no. 1, pp. 21–30, 2015
- [17] G. G. Devyatkykh et al., Doklady Chemistry, vol. 391, no. 4/6, pp. 204–205, 2003
- [18] W. L. M. Weerts, et al., J Electrochem Soc, vol. 145, no. 4, p. 1318, 1998.
- [19] E. W. Becker et al., Atomwirtschaft, vol. 11, 1979.
- [20] P. Becker et al., Meas Sci Technol, vol. 20, no. 9, p. 092002, 2009,
- [21] V. Mazzocchi et al., J Cryst Growth, vol. 509, pp. 1–7, 2019
- [22] J. P. Gordon and K. D. Bowers, Phys Rev Lett, vol. 1, no. 10, pp. 368–370, 1958