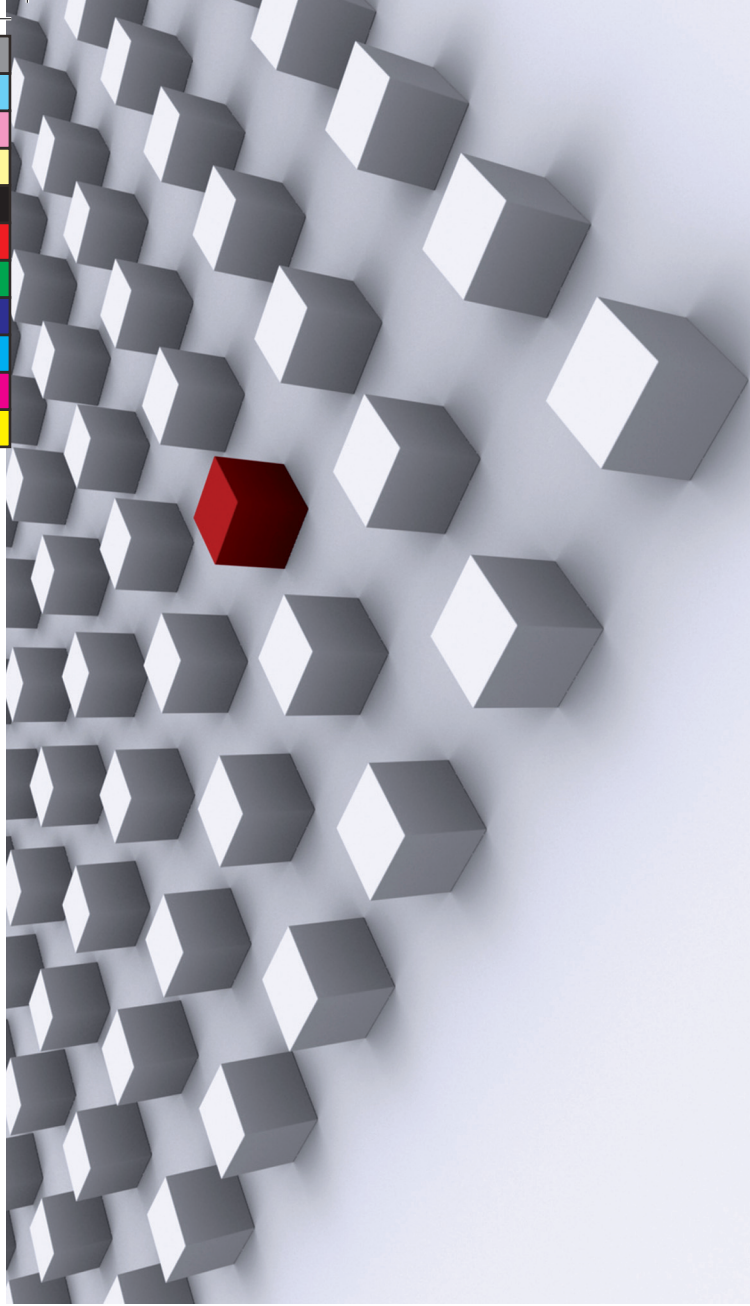




Elektronische Bauteile basieren seit langem auf der Verschiebung elektrischer Ladungen. Das junge Forschungsgebiet der Spinelektronik sucht nach Wegen, das quantisierte magnetische Moment der Ladungsträger, ihren Spins, auszunutzen, um neue Freiheitsgrade und Funktionen zu erschließen. Zur Erforschung grundlegender Fragestellungen der Spinelektronik geeignete Modellsysteme lassen sich in Halbleiterheterostrukturen realisieren.

Diese Arbeit gewährt Einblicke in die Entwicklung von Halbleiterheterostrukturen zur elektrischen Injektion spinpolarisierter Elektronen in ein zweidimensionales Elektronengas (2DEG) und stellt ein theoretisches Konzept vor, das den Nachweis der Spininjektion auf der Grundlage der den niederdimensionalen Systemen eigenen Quanteneffekte erbringt.

Der Band behandelt erstmals die vielversprechende Kombination von GaAs/AlGaAs-2DEG-Mehrschichtsystemen, die höchste kristalline Güte und Ladungsträgerbeweglichkeit aufweisen, mit Kontakten aus semimagnetischem ZnMnSe, das eine nahezu vollständige Polarisation der Elektronenspins ermöglicht. Die hier gezeigten Messungen des quantisierten Transports sind ein Novum in diesem Materialsystem.



Tobias Leeb

MBE-Wachstum von ZnMnSe

zur Spininjektion in

GaAs /AlGaAs-Heterostrukturen

Universitätsverlag Regensburg

Universitätsverlag Regensburg

Tobias Leeb

02
Physik
Dissertationsreihe



Universität Regensburg

Tobias Leeb



MBE-Wachstum von ZnMnSe
zur Spininjektion in
GaAs /AlGaAs-Heterostrukturen

MBE-Wachstum von ZnMnSe zur Spininjektion in GaAs /AlGaAs-Heterostrukturen

Dissertation zur Erlangung des Doktorgrades der Naturwissenschaften (Dr. rer. nat.)
der naturwissenschaftlichen Fakultät II - Physik der Universität Regensburg
vorgelegt von

Tobias Leeb

aus München

im Jahr 2007

Die Arbeit wurde von Prof. Dr. Werner Wegscheider angeleitet.

Das Promotionsgesuch wurde am 6.9.2007 eingereicht.

Das Kolloquium fand am 19.12.2007 statt.

Prüfungsausschuss: Vorsitzender: Prof. Dr. Tilo Wettig

1. Gutachter: Prof. Dr. Werner Wegscheider

2. Gutachter: Prof. Dr. Dieter Weiss

weiterer Prüfer: Prof. Dr. Franz J. Giessibl



Dissertationsreihe der Fakultät für Physik der Universität Regensburg, Band 2

Herausgegeben vom Präsidium des Alumnivereins der Physikalischen Fakultät:

Klaus Richter, Andreas Schäfer, Werner Wegscheider

Tobias Leeb

MBE-Wachstum von ZnMnSe

zur Spininjektion in

GaAs /AlGaAs-Heterostrukturen

Universitätsverlag Regensburg

Bibliografische Informationen der Deutschen Bibliothek.
Die Deutsche Bibliothek verzeichnet diese Publikation
in der Deutschen Nationalbibliografie. Detaillierte bibliografische Daten
sind im Internet über <http://dnb.ddb.de> abrufbar.

1. Auflage 2009

© 2009 Universitätsverlag, Regensburg

Leibnitzstraße 13, 93055 Regensburg

Konzeption: Thomas Geiger

Umschlagentwurf: Franz Stadler, Designcooperative Nittenau eG

Layout: Tobias Leeb

Druck: Docupoint, Magdeburg

ISBN: 978-3-86845-019-4

Alle Rechte vorbehalten. Ohne ausdrückliche Genehmigung des Verlags ist es
nicht gestattet, dieses Buch oder Teile daraus auf fototechnischem oder
elektronischem Weg zu vervielfältigen.

Weitere Informationen zum Verlagsprogramm erhalten Sie unter:
www.univerlag-regensburg.de

MBE-Wachstum von ZnMnSe zur Spininjektion in GaAs/AlGaAs-Heterostrukturen



DISSERTATION

zur Erlangung des Doktorgrades
der Naturwissenschaften
(Dr. rer. nat.)

der Naturwissenschaftlichen Fakultät II - Physik
der Universität Regensburg

vorgelegt von
Tobias Leeb
aus München

2007

Promotionsgesuch eingereicht am 06. September 2007.

Promotionskolloquium am 19. Dezember 2007.

Die Arbeit wurde angeleitet von Prof. Dr. Werner Wegscheider.

Prüfungsausschuss:

Vorsitzender:	Prof. Dr. Tilo Wettig
1. Gutachter:	Prof. Dr. Werner Wegscheider
2. Gutachter:	Prof. Dr. Dieter Weiss
weiterer Prüfer:	Prof. Dr. Franz J. Giessibl

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Eigenschaften von III-V und II-VI-Halbleitern	7
2.1	Gitterparameter	7
2.1.1	Kristallstruktur	7
2.1.2	Gitterkonstante - Gesetz von Vegard	8
2.1.3	Gitterfehlانpassung	9
2.2	Bandstruktur und elektronische Eigenschaften	12
2.2.1	Bandlücken	13
2.2.2	Dotierung und Metall-Isolator-Übergang	14
2.2.3	DX-Zentren in $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$	16
2.2.4	Kompensation	18
2.3	Grenzflächeneigenschaften	18
2.3.1	Oberflächenrekonstruktionen	19
2.3.2	Die ZnSe-GaAs-Heterogrenzfläche	23
3	Das zweidimensionale Elektronengas	25
3.1	Die GaAs/ $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Heterostruktur	26
3.2	Das 2DEG ohne externe Felder	28
3.3	Ladungstransport im 2DEG	31
3.4	Quantisierung im hohen magnetischen Feld	34
3.5	Quanten-Hall-Effekt im Randkanalmodell	38
3.6	Der Landauer-Büttiker-Formalismus	41
3.6.1	Equilibrierung zwischen benachbarten Randkanälen	46

4	Magnetische Eigenschaften von $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$	49
4.1	Das Mn^{++} -Ion und seine $3d^5$ -Schale	50
4.2	Die Magnetisierung von $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$	51
4.3	$sp-d$ -Austauschwechselwirkung	52
4.4	Zeeman-Aufspaltung und optische Übergänge	56
4.5	Spinpolarisation der Leitungsbandelektronen	58
4.6	Magnetowiderstand	59
4.7	$\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ als Spinaligner	62
5	Experimenteller Nachweis der Spininjektion - das Konzept	65
5.1	Spininjizierende Kontakte im Landauer-Büttiker-Formalismus	66
5.2	Einfluss der Spinequilibration auf Hall- und Längswiderstand	70
5.3	Nachweis der Spininjektion im Quanten-Hall-Regime	73
5.4	Die invertierte 2DEG-Struktur	78
5.4.1	Das oberflächennahe invertierte 2DEG	79
5.4.2	Das tiefliegende invertierte 2DEG	83
5.4.3	Die Injektorstruktur	84
6	Experimentelle Aufbauten und Methoden	89
6.1	Molekularstrahlepitaxie-Anlage	90
6.1.1	Allgemeines zur MBE	90
6.1.2	Epitaktische Wachstumsmodi	92
6.1.3	Aufbau der II-VI-MBE-Anlage	93
6.2	Reflexionsbeugung hochenergetischer Elektronen	97
6.3	Röntgendiffraktometer	104
6.4	Magnetotransportmessplatz	105
6.5	Photolumineszenzmessplatz	109
7	Experimentelle Untersuchungen an $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$	111
7.1	MBE-Wachstum und strukturelle Charakterisierung	111
7.1.1	Substratvorbehandlung, RHEED	111
7.1.2	Anwuchsprozess und in-situ Wachstumskontrolle	118

7.2	Ex-situ Charakterisierung von $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$	124
7.2.1	Röntgendiffraktometrie	124
7.2.2	Photolumineszenzmessungen	131
7.3	Elektrische Charakterisierung der Spinausrichter-Schichten	137
7.3.1	Dotierung von $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ mit n-Butylchlorid	138
7.3.2	Kontaktierung von n- $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$	139
7.3.3	Magnetotransportmessungen	145
8	$\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$-Kontakte auf 2DEG-Heterostrukturen	153
8.1	DMS-Kontakte auf oberflächennahen invertierten 2DEG	153
8.2	Optimierung der GaAs/ $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Heterostruktur	158
8.3	Implementierung der Injektorschicht	161
8.3.1	Funktion des Injektorprinzips in III-V-Komplettsystemen	170
8.4	Die (110)-Grenzfläche - eine Alternative	173
9	Zusammenfassung	177
	Liste der verwendeten Abkürzungen	183
	Abbildungsverzeichnis	185
	Tabellenverzeichnis	188
	Literaturverzeichnis	189
	Danksagung	201

Kapitel 1

Einleitung

Seit der Vorstellung des Germanium-Transistors [Bar49] wurde der technische Fortschritt maßgeblich von den rasanten Entwicklungen in der Halbleiter-Mikroelektronik getragen. Bauelemente zur Informationsverarbeitung und -speicherung streben einer wachsenden Komplexität mit einer sich stetig vervielfachenden Transistorenzahl entgegen, wobei sich die Komponenten eines integrierten Schaltkreises innerhalb eines Zeitraums von 18 bis 24 Monaten verdoppeln [Moo75]. Die Vervielfachung der Rechenleistung durch immer höhere Schaltfrequenzen führt ebenso wie die Forderung nach verringertem Stromverbrauch, geringerer Wärmeentwicklung sowie zunehmender Ausbeute und Kosteneffizienz zu stetig sinkenden Strukturgrößen. Der Miniaturisierung der Halbleiterstrukturen sind jedoch physikalische Grenzen gesetzt sind. So befinden sich die relevanten Abmessungen von Silizium-basierten Metalloxid-Halbleiter-Feldeffekttransistoren (Si-MOSFET, engl.: **M**etal **O**xide **S**emiconductor **F**ield **E**ffect **T**ransistor), wie zum Beispiel der Abstand von Source- und Drain-Kontakt oder die Dicke der Gate-Oxidschicht, inzwischen im Bereich weniger Nanometer. Auf dieser Längenskala treten in den MOSFETs vermehrt Leckströme auf, die die Funktion der Bauteile beeinträchtigen. Auch wenn es mit innovativen Ansätzen gelingt, diesen Problemen zu begegnen und die Grenzen immer weiter zu verschieben, wächst doch mit jeder neuen Generation verkleinerter Strukturen der erforderliche finanzielle Aufwand. Die Kosten für Halbleiter-Produktionsanlagen verdoppeln sich alle 4 Jahre [Til07].

Als Alternative zur traditionellen Elektronik, die ausschließlich auf der Ladung der Elektronen und Löcher basiert, nutzen die Magnetoelektronik und die Spinelektronik in erster Linie den Spin der Ladungsträger zur digitalen Verarbeitung und Speicherung von Information [Pri98]. Magnetoelektronische Bauelemente bestehen im Wesentlichen aus zwei ferromagnetischen Metallschichten, die durch eine unmagnetische Metall- oder eine isolierende Oxidschicht voneinander getrennt sind. Ihr Funktionsprinzip basiert darauf,

dass der Gesamtwiderstand des Bauteils empfindlich von der relativen magnetischen Ausrichtung der ferromagnetischen Metalle abhängt. Die Nutzung des Riesenmagnetowiderstandseffekts GMR (engl.: **G**iant **M**agnetoresistance, [Bai88], [Bin89]) und des Tunnelmagnetowiderstandseffekts TMR (engl.: **T**unneling **M**agnetoresistance, [Jul75], [Moo95]) in Sensormodulen und Leseköpfen von Festplatten hat der Magneto Elektronik bereits durchschlagende kommerzielle Erfolge beschert. In MRAM-Modulen (engl.: **M**agnetoresistive **R**andom **A**ccess **M**emory) steht ein hochintegrierter, nichtflüchtiger Arbeitsspeicher mit schnellen Schaltzyklen und einer langen Lebensdauer dazu bereit, in Konkurrenz mit herkömmlichen, kapazitiven RAM-Bausteinen zu treten.

Als Weiterentwicklung der Magneto Elektronik strebt die Spinelektronik nach der Integration magnetischer Materialien in die bereits weitgehend ausgereifte Halbleitertechnologie. Man profitiert dadurch nicht nur von der Variabilität der elektronischen Eigenschaften der Halbleiter, sondern auch von den im Vergleich zu Metallen um ein Vielfaches höheren Spindiffusionslängen und Spinlebensdauern ([Hae98], [Kik98]). Gelingt es, die ladungsbasierte Elektronik um die Kontrolle des Spinfreiheitsgrads der Elektronen zu erweitern, stößt man das Tor zu einer neuen Klasse aktiver mikroelektronischer Bauelemente auf. Spintransistoren vereinen einen nichtflüchtigen Datenspeicher und einen schnellen Datenprozessor in einem hochintegrierten, multifunktionalen Bauelement mit geringer Leistungsaufnahme. Eine besondere Inspiration erhielt die Forschung durch das Konzept des Spin-Feldeffekttransistors [Dat90]. In einem solchen Bauelement werden spinpolarisierte Elektronen aus dem ferromagnetischen Source-Kontakt in einen nichtmagnetischen, niederdimensionalen Leitungskanal injiziert, beim Transport durch diesen Kanal mit Hilfe einer Gate-Elektrode manipuliert und im ferromagnetischen Drain-Kontakt bezüglich ihrer Spinrichtung detektiert. Die Gate-Spannung steuert dabei nicht die Ausdehnung des Leitungskanals durch Ladungsverschiebungen, sondern beeinflusst über eine Änderung der durch das asymmetrische elektrische Feld hervorgerufenen Spin-Bahn-Wechselwirkung die Spinorientierung der stromtragenden Elektronen [Byc84]. Spin-FETs werden die Realisierung frei programmierbarer Datenprozessoren ermöglichen, in denen die Programmierung stromlos aufrecht erhalten, aber trotzdem sehr schnell rekonfigurierbar sein wird.

Eine zentrale Herausforderung in der Spinelektronik ist die elektrische Spininjektion. Ziel ist es, die spinpolarisierten Elektronen einer magnetischen Schicht durch das Anlegen einer elektrischen Spannung in eine benachbarte Schicht aus einem unmagnetischen Halbleiter zu transferieren [Win04]. Vielerlei Anstrengungen zur direkten Injektion aus ferromagnetischen Metallkontakten in Halbleiter erbrachten keine zufriedenstellenden Resultate ([Ham99], [Mon99]). Sowohl der extreme Unterschied der Leitfähigkeiten metallischer und halbleitender Materialien als auch der in metallischen Ferromagneten zur

Verfügung stehende Grad der Spinpolarisation stehen einer diffusiven Spininjektion in den Halbleiter im Wege [Sch00]. Durch die Einführung einer Tunnelbarriere zwischen Metall und Halbleiter konnte diese Fehlanpassung mittlerweile umgangen werden [Han02].

Ein Durchbruch auf dem Gebiet der Spininjektion gelang indessen mit Hilfe manganhaltiger, semimagnetischer Halbleiter DMS (engl.: **D**iluted **M**agnetic **S**emiconductors) auf der Grundlage von ZnSe ([Fie99], [Jon00]). Der Nachweis der elektrischen Injektion spinpolarisierter Ladungsträger in eine LED-Struktur erfolgte dabei auf optischem Wege durch die Analyse des zirkular polarisierten Elektrolumineszenzlichts. Ein rein elektrischer Nachweis einer elektrischen Spininjektion stellt jedoch nach wie vor eine große Herausforderung dar.

Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich daher mit der Entwicklung und der Herstellung geeigneter ZnMnSe/GaAs/AlGaAs-Halbleiterheterostrukturen für Experimente zum rein elektrischen Nachweis der Spininjektion. Dank seiner besonderen magnetischen Eigenschaften dient der semimagnetische Halbleiter ZnMnSe bei tiefen Temperaturen als Quelle nahezu vollständig spinpolarisierter Elektronen. Da sich Mangan isoelektronisch in den II-VI-Halbleiter einbaut, lässt sich dessen Leitfähigkeit durch Dotieren beeinflussen und an die der nichtmagnetischen III-V-Strukturen angleichen. Die GaAs/AlGaAs-Heterostrukturen beherbergen einen zweidimensionalen Leitungskanal von hoher Elektronenbeweglichkeit und haben die zusätzliche Aufgabe der elektrischen Anpassung an den ZnMnSe-Kontakt. Der Nachweis der elektrischen Spininjektion soll in dieser Arbeit nicht optisch, sondern auf rein elektrischem Wege anhand der Auswirkung der spinpolarisierte Ladungsträgerinjektion auf die Magnetotransporteigenschaften des nichtmagnetischen Leitungskanals geführt werden.

Die Herstellung sämtlicher Halbleiterheterostrukturen erfolgte mittels Molekularstrahlepitaxie, mit der sich die verschiedenen Materialien epitaktisch in sehr hoher struktureller Qualität aufeinander abscheiden lassen. Der besondere Vorteil dieser Technik liegt in der exakten Beeinflussung der stöchiometrischen Zusammensetzung und der atomlagengenauen Kontrolle der Grenzflächen. Zur Charakterisierung der Proben wurden die Reflexionsbeugung hochenergetischer Elektronen, die Röntgendiffraktometrie, magnetfeldabhängige Photolumineszenzmessungen sowie Magnetotransportmessungen herangezogen. Die Mikrostrukturierung fand mittels optischer Lithographietechniken und selektiven nasschemischen Ätzverfahren statt.

Im Anschluss an diese Einleitung stellt Kapitel 2 die grundlegenden strukturellen und elektronischen Eigenschaften der beteiligten II-VI- und III-V-Verbindungshalbleiter vor. Neben der Problematik der Gitterfehlanpassung der unterschiedlichen kristallinen Materialien, wird der Einfluss verschiedener Dotierkonzentrationen auf Bandstruk-

tur und Leitfähigkeitsregime der Halbleiter angesprochen. Ein besonderes Augenmerk gilt den Eigenschaften der (001)-Oberfläche von ZnSe und GaAs und der ZnSe/GaAs-Heterogrenzfläche.

Kapitel 3 gewährt einen Einblick in Methoden zur Herstellung zweidimensionaler Elektronengase (2DEG) und die gezielte Beeinflussung ihrer Eigenschaften in speziell entworfenen GaAs/AlGaAs-Heterostrukturen. Im Fokus steht darüber hinaus der Ladungstransport im 2DEG und seine Quantisierung in hohen Magnetfeldern. Die Erklärung des Quanten-Hall-Effekts im Randkanalmodell mündet in die Vorstellung des Landauer-Büttiker-Formalismus zur Beschreibung von Quanten-Hall-Systemen mit mehreren Kontakten. Ursachen und Auswirkungen einer ungleichen Stromverteilung auf die Randkanäle werden ebenso diskutiert wie Mechanismen, die zur Wiederherstellung des Gleichgewichts führen.

Die magnetischen Eigenschaften von ZnMnSe und ihre Relevanz für die Spinelektronik sind Gegenstand von Kapitel 4. Im Speziellen werden die Ursachen der *sp-d*-Austauschwechselwirkung und ihre Auswirkungen auf die Bandstruktur erörtert sowie die Konsequenzen für die optischen Übergänge, die Spinpolarisation der Leitungsbandelektronen und den Magnetowiderstand aufgezeigt.

Kapitel 5 stellt eine im Rahmen dieser Arbeit entwickelte, neuartige Methode vor, die den Nachweis der erfolgreichen elektrischen Spininjektion anhand des quantisierten Hallwiderstands führt [Her04]. Der Einfluss spinselektiver Kontakte wird ebenso wie die Auswirkungen der Spinequilibration zwischen Randkanälen mit Hilfe einfacher Wahrscheinlichkeitsmodelle in den Landauer-Büttiker-Formalismus eingearbeitet. Der spinerhaltende Transport von Elektronen innerhalb eines Materials oder über eine Grenzfläche hinweg erfordert eine hierfür geeignete Potentiallandschaft, die sich innerhalb einer Halbleiterheterostruktur gezielt vorgeben lässt. Anhand von Bandstrukturrechnungen werden verschiedene Entwürfe für GaAs/AlGaAs-Heterostrukturen vorgestellt und gemäß ihrer Eignung und technischen Realisierbarkeit detailliert diskutiert.

Kapitel 6 befasst sich mit grundlegenden Aspekten der Molekularstrahlepitaxie und hebt die Besonderheiten der institutseigenen Wachstumskammer für ZnSe und ZnMnSe hervor. Im weiteren Verlauf wird auf die verwendeten Methoden zur *in-situ* Kontrolle des Wachstums und zur *ex-situ* Charakterisierung der Proben eingegangen und der Aufbau eines eigens angefertigten kryostatischen Magnetotransportmessplatzes beschrieben.

Dem Wachstum und der Charakterisierung der ZnMnSe-Halbleiterschichten bezüglich ihrer strukturellen, magnetischen und elektrischen Eigenschaften ist Kapitel 7 gewidmet. Dabei erfahren Präparation und Analyse der Substratoberfläche vor dem Epitaxieprozess sowie die unmittelbaren Startbedingungen des ZnMnSe-Wachstums eine be-

sondere Aufmerksamkeit. Anschließend findet die Präsentation der aus Röntgendiffraktometrie und magnetfeldabhängiger Photolumineszenz gewonnenen Ergebnisse statt. Ein eigener Abschnitt trägt den elektrischen Eigenschaften der hergestellten ZnMnSe-Proben Rechnung. Hierin wird zunächst auf die spezielle Art der Dotierung, verschiedene Techniken zur Herstellung ohmscher Kontakte und materialelektive nasschemische Lithographieverfahren eingegangen, bevor die Resultate der magnetfeldabhängigen Widerstandsmessungen diskutiert werden.

Die Herstellung verschiedener Spininjektionsproben mit spinpolarisierenden DMS-Kontakten zu einem hochbeweglichen 2DEG ist Gegenstand von Kapitel 8. Es zeigt die Optimierung von Aufbau und Epitaxie der GaAs/AlGaAs-Heterostrukturen auf und berichtet von den Transportexperimenten zum Nachweis der Spininjektion. Darüber hinaus werden Untersuchungen an nichtmagnetischen III-V-Referenzproben vorgestellt und alternative Vorgehensweisen diskutiert.

Kapitel 9 liefert eine Zusammenfassung der theoretischen Methoden, der experimentellen Verfahrensweisen und der erzielten Resultate.

Kapitel 2

Eigenschaften von III-V und II-VI-Halbleitern

2.1 Gitterparameter

2.1.1 Kristallstruktur

Halbleiter lassen sich unter geeigneten Zuchtbedingungen in einkristalliner Form herstellen. Die einzelnen Atome sind über makroskopische Distanz streng periodisch angeordnet. Elementhalbleiter der IV. Hauptgruppe des Periodensystems wie z.B. Silizium oder Germanium kristallisieren in der kubischen Diamantstruktur. Die rein kovalenten Bindungen erfolgen über vier sp^3 -hybridisierte Atomorbitale und bilden daher reguläre Tetraeder mit einem Bindungswinkel von 109° . Bei der Zinkblende- oder Sphalerit-

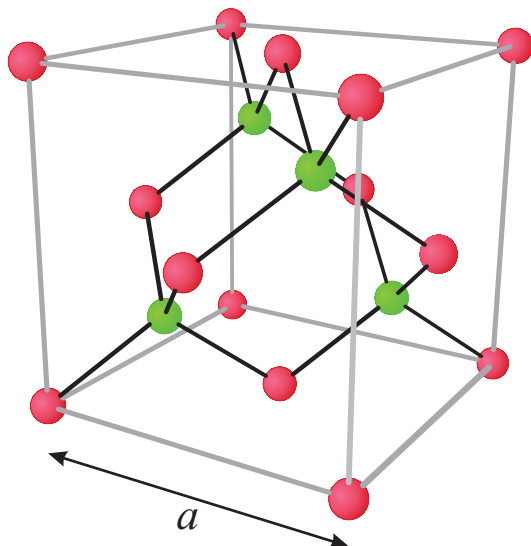


Abbildung 2.1.

Einheitszelle der Zinkblendestruktur: Rote und grüne Kugeln stellen die Atomsorte (Kationen, Anionen) des jeweiligen Untergitters dar. Die kubische Gitterkonstante a bezeichnet den Abstand zweier gleichartiger Atome entlang der Würfelkante.

struktur vieler Verbindungshalbleiter der III. und V. Hauptgruppe tritt durch die unterschiedliche Elektronegativität der Elemente ein ionischer Bindungsanteil auf, der sich in II-VI-Halbleitern noch verstärkt. Verwendet man Halbleiterheterostrukturen für optische und elektronische Anwendungen, sind Materialien mit direkter Bandlücke besonders geeignet, bei denen es meist genügt, die Bandeigenschaften im Zentrum der Brillouin-Zone zu betrachten. Diese Eigenschaft besitzen auch die auf GaAs (Galliumarsenid) und ZnSe (Zinkselenid) basierenden Halbleiterstrukturen, die im Verlauf dieser Arbeit untersucht werden.

2.1.2 Gitterkonstante - Gesetz von Vegard

Die binären Verbindungshalbleiter GaAs und ZnSe kristallisieren in der kubischen Zinkblendestruktur. Diese Struktur ist aus zwei kubisch flächenzentrierten (fcc) Raumgittern aufgebaut, die um ein Viertel der Raumdiagonale gegeneinander verschoben sind (Abbildung 2.1). Je ein Untergitter ist mit einem Kation (II, III) bzw. Anion (V, VI) belegt, das im Zentrum eines regelmäßigen Tetraeders sitzt, dessen Ecken von der jeweils anderen Atomsorte besetzt sind. Aus der Bindungslänge b ergibt sich die Gitterkonstante zu $a = \frac{4}{\sqrt{3}} b$. Tabelle 2.1 listet die Werte der Gitterkonstanten der in der Arbeit verwendeten Materialien auf. Die starke relative Elektronegativität der Anionen bewirkt, dass die Elektronenwolken aus ihrer zentralen Position zwischen den Atomen in Richtung der Anionen verschoben werden. Somit besitzt die Bindung einen ionischen Anteil, der beim GaAs 31%, beim ZnSe sogar 63% beträgt [Phi73].

Die Zinkblendestruktur besitzt kein Inversionszentrum, da die beiden fcc-Untergitter von verschiedenen Atomsorten belegt sind. Man beschreibt deshalb die Symmetrie des Kristalls durch die Raumgruppe T_d . Die fehlende Inversionssymmetrie des Kristallgitters liefert einen Beitrag zur Spin-Bahn-Wechselwirkung, die die Spinrelaxation von Elektronen, die sich durch den Kristall bewegen, erheblich beeinflusst [Dre55].

Die große Vielseitigkeit der Verbindungshalbleiter zeigt sich bei der Herstellung ternärer oder quaternärer Mischkristalle. So lässt sich durch anteiligen Einbau von Aluminium statt Gallium in GaAs die Bandlücke über weite Bereiche durchstimmen, während sich die Gitterkonstante nur minimal ändert. Die Materialkombination GaAs/ $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ ist deshalb eine ideale Wahl für das *band gap engineering* von III-V-Übergitter- und Quantentrogstrukturen. Ersetzt man in ZnSe einen geringen Prozentsatz der Zn-Atome durch Beryllium bzw. einige Se-Atome durch Schwefel, kann die Gitterkonstante des II-VI-Halbleiters perfekt an das meist als Substrat verwendete GaAs angepasst werden. Durch Zusatz des 3d-Übergangsmetalls Mangan (Mn) entstehen *verdünnte magnetische Halbleiter* (DMS, von engl.: **D**iluted **M**agnetic **S**emiconductors), deren magnetische Eigenschaften zahlreiche Arbeiten zur Halbleiter-Spintronik motivieren.

Verbindung	Gitterkonstante a [Å]	Gitterfehlانpassung f [%]
GaAs	5,6533	Substrat
AlAs	5,6614	-0,143
ZnSe	5,6687	-0,272
BeSe	5,1520 [Lan99]	9,73
MnSe	5,93	-4,67

Tabelle 2.1. Gitterkonstanten der verwendeten binären Halbleiter in Zinkblendestruktur und deren Gitterfehlانpassung (vgl. Abschnitt 2.1.3) gegenüber dem als Substrat verwendeten GaAs bei Raumtemperatur.

Nach dem Gesetz von Vegard lässt sich die Gitterkonstante a_{12} der ternären Halbleiter linear aus den Gitterkonstanten a_1 und a_2 der binären Ausgangsmaterialien interpolieren [Veg21]:

$$a_{12} = (1 - x) a_1 + x a_2 . \quad (2.1)$$

Dabei ist x der Anteil des Halbleiters mit der Gitterkonstanten a_2 am Mischkristall. Im Folgenden ist die Abhängigkeit der Gitterkonstante vom Anteil x des beigemischten Materials für ausgewählte Verbindungen angegeben. Während allerdings $\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x\text{As}$

$$a(\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x\text{As}) = 5,6533 \text{ Å} + 0,0081 \text{ Å } x \quad [\text{Ada94}],$$

$$a(\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}) = 5,6687 \text{ Å} + 0,2613 \text{ Å } x \quad [\text{Lan99}].$$

im gesamten Kompositionsbereich die Zinkblendestruktur beibehält, liegt $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ lediglich für $x < 0,30$ als Zinkblendekristall vor. Für höhere Mn-Konzentrationen von $0,30 \leq x \leq 0,57$ kristallisiert $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ in Wurzitstruktur.

2.1.3 Gitterfehlانpassung

Das epitaktische Wachstum in der modernen Dünnschichttechnologie ist dadurch gekennzeichnet, dass sich die Atome einer auf ein Substrat gewachsenen Schicht wie die Substratatomte anordnen. Bei der Heteroepitaxie unterscheiden sich Schichtmaterial und Substrat in ihrer chemischen Zusammensetzung und ihren strukturellen Parametern. Der relative Unterschied der Gitterkonstanten zwischen Schichtmaterial a_l und Substrat a_s wird durch die Gitterfehlانpassung $f(T)$ beschrieben:

$$f(T) := \frac{a_s(T) - a_l(T)}{a_l(T)} . \quad (2.2)$$

Bedingt durch die oft unterschiedlichen thermischen Ausdehnungskoeffizienten von Substrat und Schichtmaterial, ist auch die Gitterfehlانpassung temperaturabhängig.

Die geringe Gitterfehlانpassung von AlAs oder ZnSe auf GaAs ermöglicht *pseudomorphes* bzw. *kohärentes* Wachstum durch Anpassung der lateralen Gitterkonstante des Schichtmaterials a_l an die Gitterkonstante a_s des um viele Größenordnungen dickeren Substrats ($d(\text{GaAs}) \cong 500 \mu\text{m}$). Es kommt zu einer maximalen lateralen Verspannung, die je nach Vorzeichen von f tensil ($f > 0$) oder kompressiv ($f < 0$) ist. Für kleine Schichtdicken ist der aufgewachsene Film vollkommen elastisch verspannt und die Gitterfehlانpassung ist gleich der biaxialen Verzerrung der Schicht, gegeben durch

$$\varepsilon_{\parallel} = \frac{a_{\parallel} - a_l}{a_l} . \quad (2.3)$$

Dabei bezeichnet a_{\parallel} die verspannte Schichtgitterkonstante in der Ebene der Grenzfläche. Die Deformation der Schicht in der Wachstumsebene (ε_{\parallel}) verursacht aufgrund elastischer Effekte eine tetragonale Verzerrung (ε_{\perp}) der Schicht entlang der Wachstumsrichtung. Die Gitterkonstanten der Schicht parallel (a_{\parallel}) und senkrecht (a_{\perp}) zur Wachstumsebene weichen von der Gitterkonstante im entspannten Zustand (a) ab.

Die Verspannungsenergie steigt bei pseudomorphem Wachstum linear mit der Schichtdicke an, bis ab einer *kritischen Schichtdicke* h_c der laterale Gitterabstand durch Einbau von Anpassungsversetzungen zu relaxieren beginnt. Verschiedene theoretische Modelle ([Mat74], [Hu91]) finden zwischen der kritischen Schichtdicke h_c und der Gitterfehlانpassung f eine Abhängigkeit von $h_c \propto |f^{-1}|$. Experimentelle Ergebnisse geben für das Wachstum von ZnSe auf GaAs eine kritische Schichtdicke zwischen 130 nm [Pre98] und 250 nm [Rei96] an. Der Einbau von Anpassungsversetzungen erfolgt in Zinkblendkristallen im Allgemeinen durch Abgleiten von Teilbereichen des Kristalls auf $\{111\}$ -Ebenen aus ihrer Ausgangslage. Zwei benachbarte $\{111\}$ -Netzebenen gleiten dabei um einen Translationsvektor, den so genannten *Burgers-Vektor* \vec{b} , ab. Der Gleitprozess nukleiert an der Oberfläche und setzt sich in Richtung Grenzfläche fort. Er endet im Kristall an einer linienförmigen Fehlordnung, die entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung verläuft, wobei die Verspannung dazu senkrecht in der Wachstumsebene abgebaut wird. Die *Versetzungslinien* werden charakterisiert durch ihre Richtung \vec{u} und den Winkel, den sie mit dem Burgers-Vektor \vec{b} einschließen. Versetzungen mit $\vec{b} \perp \vec{u}$ werden als Stufenversetzungen bezeichnet, für $\vec{b} \parallel \vec{u}$ liegt eine Schraubenversetzung vor.

Der Abgleitprozess entlang einer $\langle 110 \rangle$ -Richtung produziert eine Mischform aus Stufen- und Schraubenversetzung, bei der Burgers-Vektor und Versetzungslinie einen Winkel von 60° bilden. Der Winkel zur Grenzfläche beträgt 45° . Im System ZnSe auf GaAs bilden diese so genannten 60° -Versetzungen die Hauptursache für den Verspannungsabbau (vgl. Abbildung 2.2). Die Versetzungsbildung in der kompressiv verspannten

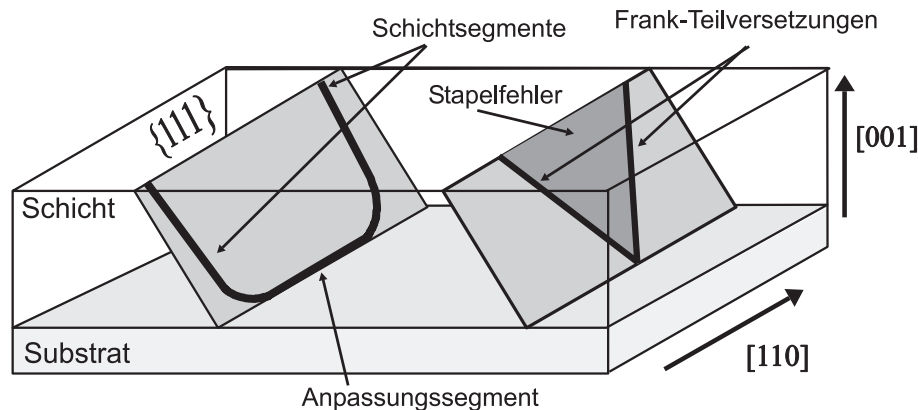


Abbildung 2.2. Schematische Darstellung von Versetzungen in ZnSe.

ZnSe-Schicht lässt sich anschaulich als Entfernen einer $\{111\}$ -Netzebene interpretieren. Hierbei wird Verspannung nur durch die Projektion des Burgers-Vektors auf die Grenzfläche abgebaut. Die senkrecht zur Grenzfläche orientierte Vektorkomponente bewirkt keinen Verspannungsabbau, sondern lediglich eine Deformation der Netzebenen.

Entspricht der Burgers-Vektor einer Versetzung einem Gittervektor, spricht man von einer *perfekten* Versetzung. Bei Teilversetzungen ist der Burgers-Vektor kein Gittervektor, weshalb sie Stapelfehler in der Gleitebene, d.h. Abweichungen von der Stapelfolge $abcabc\dots$ von $\{111\}$ -Ebenen, erzeugen. Ein Stapelfehler wird dabei von zwei Teilversetzungen begrenzt, die das Stapelfehlerband von den ungestörten Kristallbereichen trennen. Bei Shockley-Teilversetzungen liegt der Burgers-Vektor in der $\{111\}$ -Ebene. Sie können aus perfekten 60° -Versetzen dissoziieren und sind deshalb gleitfähig. Der Burgers-Vektor von Frank-Teilversetzungen liegt nicht in einer $\{111\}$ -Gleitebene. Sie können deshalb nicht zur Oberfläche abgleiten und zum Verspannungsabbau beitragen. Frank-Teilversetzungen begrenzen einzelne Stapelfehler und entstehen bereits beim Wachstum an der Grenzfläche zwischen Substrat und Schicht. Ihre Bildung ist stark von der Beschaffenheit der Substratoberfläche und des Nukleationsprozesses beim Schichtwachstum abhängig [Kas97].

Eine weitere Möglichkeit der Verspannungsrelaxation ist die Bildung von Inseln an der Kristalloberfläche bei Systemen mit großer Gitterfehlانpassung. Im Falle kompressiver Verspannung können Inseln nicht nur in Wachstumsrichtung expandieren, sondern zusätzlich durch laterale Ausdehnung die Verspannung an der Oberfläche reduzieren. Häufig setzt dieser Mechanismus bereits ein, wenn die Verspannungsenergie noch nicht zur Versetzungsbildung ausreicht, und führt zu einer gesteigerten Oberflächenrauigkeit [Guh90]. Der Anstieg an Oberflächenenergie wird dabei durch die Absenkung der Verspannungsenergie überkompensiert. Dieses Verhalten lässt sich zur Herstellung selbstorganisierter Quantenpunkte ausnutzen.

2.2 Bandstruktur und elektronische Eigenschaften

Für ein tieferes Verständnis der optischen und elektronischen Eigenschaften von Halbleitern sowie für das *band gap engineering* von Halbleiterheterostrukturen ist die Kenntnis der elektronischen Bandstruktur nötig. Die impulsabhängige Energie der Kristallelektronen lässt sich durch Linearkombination der Atomorbitale der Kationen und Anionen des Verbindungshalbleiters nähern. Die chemische Bindung kommt in den sp^3 -Hybridorbitalen der s - und p -artigen Valenzelektronen benachbarter Ionen zustande. Das energetisch tiefste Leitungsband geht aus den antibindenden Σ -Orbitalen hervor und hat deshalb s -artigen Charakter. Die bindenden Π -Orbitale haben p -artigen Charakter und bilden das energetisch höchstgelegene Valenzband.

Abbildung 2.3 zeigt die in [Ber91] berechnete Bandstruktur von ZnSe und eine schematische Darstellung der Dispersionsrelation $E(k)$ in der Umgebung des Γ -Punktes bei $k = 0$. Dabei bezeichnen L, Γ , X, U und K Punkte hoher Symmetrie in der Brillouin-Zone. Das unterste, s -artige Leitungsband ist zweifach spinentartet ($J = \frac{1}{2}$) und besitzt am Γ -Punkt, im Zentrum der Brillouin-Zone, die Darstellung Γ_6 gemäß der T_d -Symmetrie des Kristalls. Die Dispersionsrelation $E(k)$ kann in der Umgebung des Γ -Punktes näher

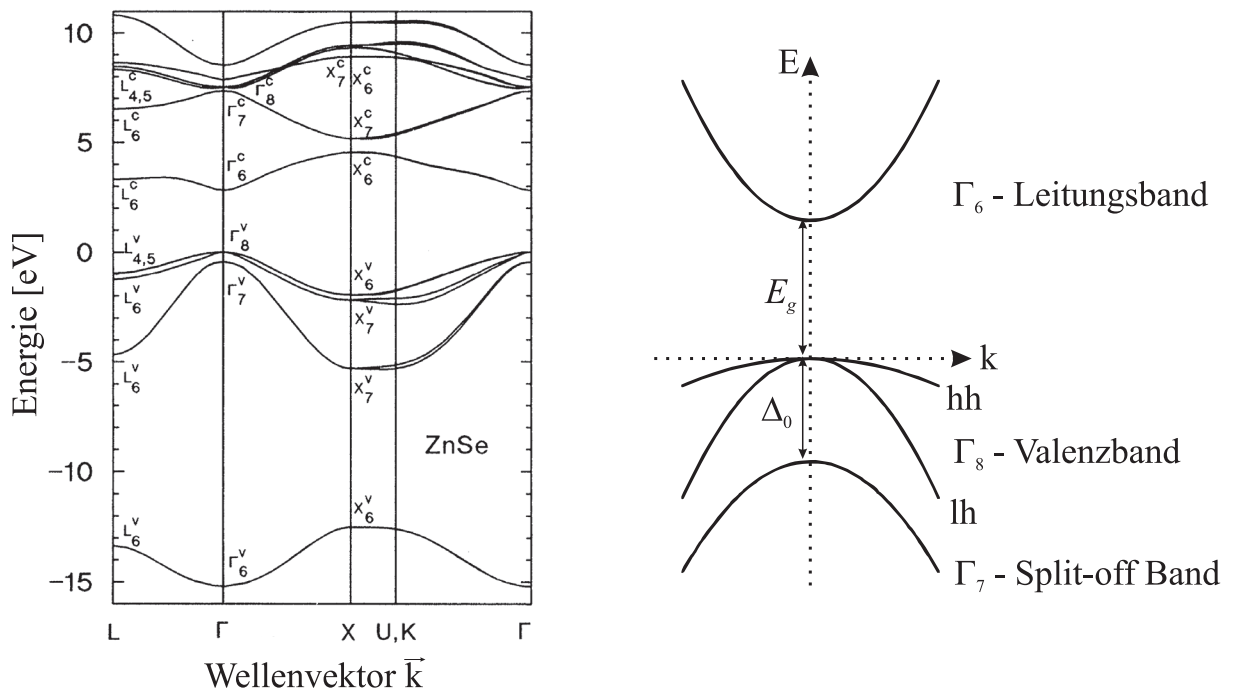


Abbildung 2.3. Links: Bandstruktur von ZnSe nach [Ber91]. Rechts: Schematische Darstellung der Bandstruktur in der Nähe des Γ -Punktes.

rungsweise als parabolisch angenommen werden,

$$E(k) = E_{\Gamma_6} + \frac{\hbar^2 k^2}{2m_e^*}, \quad (2.4)$$

wobei man den Einfluss des periodischen Kristallpotentials auf die quasifreien Elektronen durch eine effektive Masse m_e^* berücksichtigt. Tabelle 2.2 führt die effektiven Massen der hier betrachteten Halbleiter in Einheiten der Ruhemasse für Elektronen m_0 auf. Das Valenzband ist unter dem Einfluss der Spin-Bahn-Wechselwirkung in ein vierfach ($J = \frac{3}{2}$, Γ_8) und ein zweifach ($J = \frac{1}{2}$, Γ_7) entartetes Band aufgespalten. Das vierfach entartete Γ_8 -Band spaltet abseits vom Γ -Punkt in zwei Bänder mit unterschiedlicher Krümmung auf, dem *heavy hole* (*hh*) Band ($m_J = \pm \frac{3}{2}$) und dem *light hole* (*lh*) Band ($m_J = \pm \frac{1}{2}$). Das Γ_7 -Band ist energetisch um Δ_0 abgesenkt und wird als *split off* Band bezeichnet.

2.2.1 Bandlücken

Bei den *direkten* Halbleitern GaAs und ZnSe zeigt die Dispersionsrelation am Γ -Punkt ein Minimum im Leitungsband und ein Maximum im Valenzband. Der energetische Abstand E_g zwischen Γ_6 - und Γ_8 -Band ist die Größe der fundamentalen Bandlücke, eine charakteristische Eigenschaft von Halbleitern, die elektronische und optische Eigenschaften wesentlich beeinflusst. Bei anderen Verbindungen wie AlAs oder BeSe sowie den Elementhalbleitern Si und Ge treten Leitungsbandminimum und Valenzbandmaximum bei unterschiedlichen Wellenvektoren auf. Man spricht hier von *indirekten* Halbleitern. Wie zuvor die Gitterkonstante lässt sich bei ternären Verbindungshalbleitern

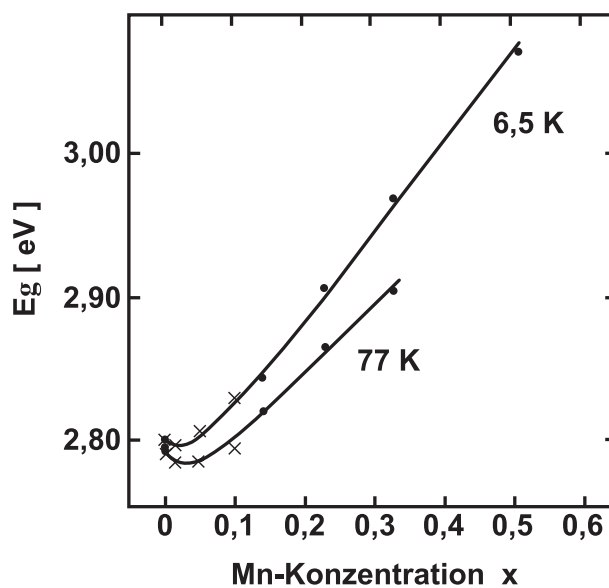


Abbildung 2.4.

Variation der Bandlücke von $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ mit dem Mn-Gehalt x für verschiedene Temperaturen (nach [Byl86]).

auch die Bandlücke durch Interpolation aus den Werten der binären Ausgangsmaterialien gewinnen. In Mischkristallen mit statistischer Verteilung der Substituenden zeigt E_g allerdings aufgrund von struktureller Relaxation und Fluktuationen in der Zusammensetzung des Halbleiters eine nichtlineare Abhängigkeit vom Kristallpotential. Die Abschätzung der Bandlücke in Abhängigkeit von der Zusammensetzung des Mischkristalls hat deshalb keinen linearen Verlauf, sondern weist einen zusätzlichen, quadratischen Term auf, der das so genannte *bowing* beschreibt. Bei den in der vorliegenden Arbeit verwendeten Materialsystemen ergibt sich die kompositionsabhängige Gap-Energie wie folgt: Während nun die Bandlücke von $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ monoton ansteigt, zeigt die Energie-

$$E_g(\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x\text{As}) [\text{eV}] = 1,52 + 1,36x + 0,22x^2 \quad (0 \leq x \leq 0,43) \quad [\text{Ada94}],$$

$$E_g(\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}) [\text{eV}] = 2,820 - 0,145x + 4,073x^2 \quad (0 \leq x \leq 0,13) \quad [\text{Twa83}].$$

lücke von $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$, wie in Abbildung 2.4 zu erkennen ist, bei einem Mn-Gehalt von etwa 2% ein Minimum und erreicht bei etwa 5% den Wert von ZnSe. Dieses Verhalten ist für den Einbau von Mn^{++} -Ionen in viele binäre II-VI-Halbleiter typisch und korreliert mit einem Maximum der kompositionsabhängigen magnetischen Suszeptibilität [Byl86]. Seine Ursache ist eine Austauschwechselwirkung zwischen der *sp*-Bandstruktur und den halb besetzten, im Grundzustand spinpolarisierten *3d*-Orbitalen der Mn^{++} -Ionen.

2.2.2 Dotierung und Metall-Isolator-Übergang

Eine zentrale Eigenschaft von Halbleitern ist, dass sich ihre elektrischen und optischen Eigenschaften durch Dotierung in weiten Bereichen einstellen lassen. Die vorliegende Arbeit befasst sich ausschließlich mit n-leitenden Materialien, in denen die Dotierung mit Donatoren erfolgt. ZnSe wird meist mit Halogenatomen wie Iod oder Chlor dotiert, die das Selen substituieren. Der Einbau von Cl in ZnSe führt allerdings zu einer Reduktion der strukturellen Qualität des Kristalls. Die lokale Verspannung in der Umgebung der Cl-Atome behindert die Gleitfähigkeit von Kristallversetzungen und führt somit zu einem Anstieg der Versetzungsdichte beim Wachstum von ZnSe:Cl auf GaAs [Kal96]. Bei GaAs erfolgt die n-Dotierung mit Silizium, das sich bei geeigneten Bedingungen auf Gallium-Plätzen einbaut.

Das Donatoratom hat in seiner Einbauposition im Wirtskristall ein überzähliges Valenzelektron, das aufgrund der Coulomb-Abschirmung durch innere Schalen und den umgebenden Wirtskristall nur schwach an das Donator-Atom gebunden ist und ein

Verbindung	$m_e^* [m_0]$	$\varepsilon_r(0)$	$n_C [cm^{-3}]$
GaAs	0,067	12,8	2×10^{16}
$Al_xGa_{1-x}As$ ($x < 0,41$)	$0,067 + 0,083x$	$12,8 - 2,84x$	$2 \times 10^{17} (x = 0,1)$
ZnSe	0,16	8,6	7×10^{17}

Tabelle 2.2. Effektive Masse in Einheiten der Ruhemasse für Elektronen m_0 , statische relative Dielektrizitätskonstante und kritische Dichte für den Mott-Übergang der in der Arbeit verwendeten Verbindungen [Lan99].

energetisches Niveau knapp unterhalb der Leitungsbandunterkante des Halbleiters einnimmt. Der energetische Unterschied zwischen Störstellenniveau und Leitungsbandkante wird als Aktivierungsenergie des Donators bezeichnet. Um das Überschusselektron des Chlor-Atoms in das Leitungsband von ZnSe zu heben sind 27 meV nötig, die Aktivierungsenergie von Silizium in GaAs beträgt 6 meV [Lan99]. Man spricht deshalb von flachen Störstellen. Bei geringen Dotierkonzentrationen sind diese Elektronen lokalisiert und können durch eine Wellenfunktion ähnlich der des atomaren Wasserstoffs beschrieben werden. Durch thermische Anregung können sie in delokalisierte Leitungsbandzustände angehoben werden.

Bei zunehmender Dotierung verringert sich der räumliche Abstand zwischen den Donatoren, bis oberhalb einer kritischen Dotierkonzentration n_C der *Mott-Metall-Isolator-Übergang* stattfindet [Mot56]. Die Wellenfunktionen der lokalisierten Elektronen nähern einander an, bis sie schließlich ab der Konzentration n_C überlappen und sich ein schmales *Störstellenband* ausbildet, das vom Leitungsband energetisch abgespalten ist [Ser83]. Geht man davon aus, dass jedes Störstellenatom ein Elektron liefert, ist dieses Band aufgrund der Spinartung höchstens halb gefüllt. In der Tat konnte in n-GaAs eine metallische Leitung im Verunreinigungsband beobachtet werden [Rom90], während auf der „isolierenden“ Seite des Mott-Übergangs eine thermisch aktivierte *Hopping*-Leitung zwischen den lokalisierten Elektronenzuständen vorherrscht [Vaz94]. Bei noch höheren Fremdatomdichten von ungefähr $5n_C$ [Rom90] verschmilzt das Verunreinigungsband mit dem Leitungsband zu einer Bandstruktur, die aus einem Bereich über den ganzen Kristall ausgedehnter Zustände und einem niederenergetischen „Schwanz“ von lokalisierten Zuständen besteht.

Die Lage des Schwerpunktes und die Breite des Störstellenbands werden im Wesentlichen von der Aktivierungsenergie der Störstellen im Wirtshalbleiter und der Konzen-

tration der Dotieratome bestimmt und hängen somit stark von den Wachstumsbedingungen ab. Für die kritische Dotierkonzentration des Metall-Isolator-Übergangs findet man die Abschätzung:

$$\begin{aligned} n_C &\approx (0,25/a_D)^3 && [\text{Mot61}], \\ a_D &= a_B \frac{\varepsilon_r}{m_e^*} = \frac{4\pi\varepsilon_0\hbar^2}{e^2} \frac{\varepsilon_r}{m_e^*} && [\text{Kit99}]. \end{aligned} \tag{2.5}$$

Der Donator-Radius a_D wird durch einen entsprechend korrigierten Bohrschen Radius a_B dargestellt, die Abschirmeffekte des umgebenden Halbleitermaterials werden dabei durch die relative Dielektrizitätskonstante $\varepsilon_r(0)$ und die effektive Masse des Leitungsbandes m_e^* mit einbezogen. In Tabelle 2.2 sind Werte für hier behandelte Halbleitermaterialien aufgeführt.

Der Mott-Metall-Isolator-Übergang wird nicht nur durch strukturelle Eigenschaften des Halbleiters, sondern auch durch äußere Einflüsse wie mechanische Beanspruchung oder Magnetfelder beeinflusst. Ist eine Probe im Bereich der kritischen Dotierung n_C dotiert, so führt bereits ein kleines äußeres Magnetfeld zur Aufhebung der Lokalisierung durch Quanteninterferenzen [Alt88]. Es findet ein Isolator-Metall-Übergang statt, indem die Energie delokalisierte Zustände unter die Fermienergie absinkt. Bei hohen Magnetfeldern wird die räumliche Ausdehnung der Wellenfunktionen der Elektronen stark eingeschränkt. Der Grad der Lokalisierung wird dadurch erhöht und der Halbleiter durchläuft einen Metall-Isolator-Übergang [Mal89]. Man spricht in diesem Zusammenhang auch von einem magnetischen Ausfrieren der Ladungsträger.

2.2.3 DX-Zentren in $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$

Die Leitfähigkeit eines dotierten Halbleiters wird bei tiefen Temperaturen im Wesentlichen von Elektronen bestimmt, die von flachen Störstellen abgegeben werden. Durch den Einbau von Fremdatomen können aber auch energetisch tiefer liegende Störstellen entstehen, die zwar thermisch nicht mehr anregbar sind, wohl aber unter Einstrahlung von Photonen ionisiert werden können. Meist rekombinieren diese tiefen Störstellen nach kurzer Zeit wieder mit Elektronen aus dem Leitungsband. Sie führen so zu unerwünschten Effekten wie nicht-strahlender Rekombination oder dem Verlust freier Ladungsträger. Im Falle von Silizium-dotiertem $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ beobachtet man jedoch bei Temperaturen unterhalb von 150 K eine Unterdrückung dieser Rekombination und die optisch angeregten Ladungsträger bleiben langfristig erhalten.

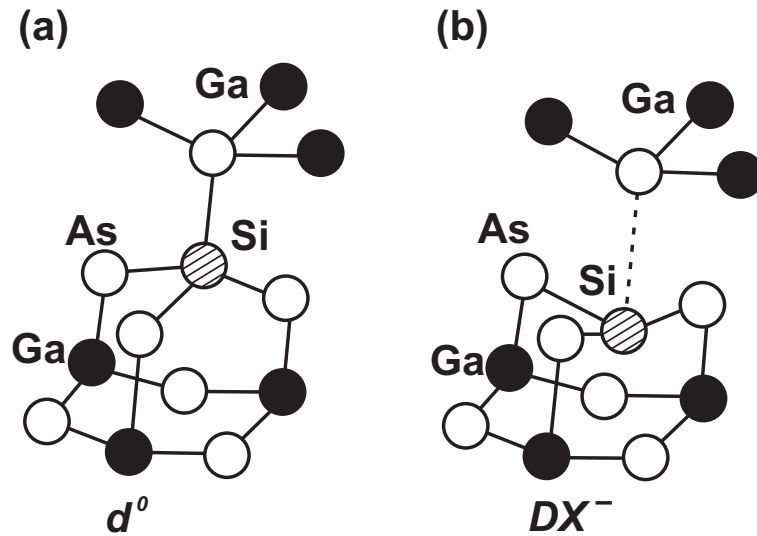


Abbildung 2.5. Schematische Darstellung der Einbaulage von Si in ein GaAs-Gitter an Stelle eines Ga-Atoms (aus [Cha89]). Neben der symmetrischen Lage (a) mit tetraedischer Koordination tritt auch eine asymmetrische Gleichgewichtslage (b) auf, die als DX-Zentrum bezeichnet wird und unter Umständen energetisch günstiger ist.

Wie in Abbildung 2.5 schematisch dargestellt ist, kann der Einbau von Silizium-Atomen auf Gallium-Plätzen in $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ in mehreren Konformationen erfolgen, die sich in ihrer Energie unterscheiden und durch eine Potentialbarriere getrennt sind. Eine symmetrische Einbaulage wird für Al-Konzentrationen $x \leq 0,2$ energetisch favorisiert und führt zu flachen Störstellen. Bei einem höheren Al-Anteil ist eine Konfiguration energetisch günstiger, bei der eine Bindung des Si-Atoms zum Kristallgitter aufgebrochen ist und das Gitter lokal verzerrt ist. Diese asymmetrische Gleichgewichtslage wird als DX-Zentrum bezeichnet und führt zu tiefen Störstellen. Das Energieminimum eines DX-Zentrums wird dabei erst durch Aufnahme eines weiteren Elektrons erreicht, wodurch der Defekt negativ geladen ist [Cha89].

Werden DX-Zentren durch Einstrahlen von Photonen ($E \approx 1 \text{ eV}$) angeregt, können sie entweder in symmetrische Zustände relaxieren oder unter Aussenden von Licht in den Grundzustand rekombinieren. Während der erstgenannte Prozess zu einer Erhöhung der Dichte freier Ladungsträger führt, ist letzterer bei tiefen Temperaturen nicht möglich, da die thermische Energie nicht ausreicht, den Wechsel der räumlichen Lage des Si-Atoms zu ermöglichen. Das Beleuchten des Halbleiters bewirkt somit eine *persistente Photoleitfähigkeit* (PPC, von engl.: **P**ersistent **P**hoto **C**onductivity), solange die Probe bei Temperaturen unterhalb von 150 K gehalten wird. In n-leitendem ZnSe würde die Bildung von DX-Zentren zu metastabilen Zuständen mit einer Energie oberhalb der Leitungsbandunterkante führen und wird deshalb nicht beobachtet [Cha94].

2.2.4 Kompensation

Die Dotierbarkeit von Halbleitern hat eine obere Grenze, die je nach Materialsystem davon abhängt, wie effektiv das Donatoratom auf die gewünschte Position im Kristall eingebaut werden kann. Bei sehr hohen Konzentrationen etwa von Si in GaAs kann Si auf As-Plätze gelangen und wirkt dort als Akzeptor, der den Zugewinn an freien Ladungsträgern wieder kompensiert. Ebenso werden bei starker Cl-Dotierung in ZnSe akzeptorartige Vakanzen an benachbarten Zn-Plätzen induziert, man spricht von $\text{Cl}_{\text{Se}}\text{-V}_{\text{Zn}}$ -Komplexen. Dieser Mechanismus tritt verstärkt auch bei ternären Materialien auf. In $\text{Zn}_{1-x}\text{Mg}_x\text{Se:Cl}$ wird mit steigendem Magnesiumgehalt nicht nur der Einbau von Cl auf Se-Plätzen forciert, sondern auch die Bildung von $\text{Cl}_{\text{Se}}\text{-V}_{\text{Zn}}$ -Komplexen, die zu verstärkter Kompensation führen. Da sich zudem mit steigendem Magnesiumgehalt auch die Bandlücke vergrößert, wird die maximal erreichbare Ladungsträgerdichte gegenüber ZnSe:Cl verringert [Yan02]. Auch in $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ bleibt die maximale Ladungsträgerdichte deutlich unterhalb der für ZnSe üblichen Werte [Gra04].

2.3 Grenzflächeneigenschaften

Im Gegensatz zu Halbleitern, die in Diamantstruktur kristallisieren (z. B. Si, Ge), bilden Zinkblendehalbleiter aufgrund ihrer mehratomigen Basis polare Oberflächen aus. Besonders deutlich wird dies im Vergleich des Spaltverhaltens. Kristalle spalten bevorzugt an den Ebenen, entlang denen die Bindungsenergie am geringsten ist. Die Bindungsenergie zwischen Kristallebenen wächst mit sinkender Bindungslänge und wachsender Zahl der Bindungen zwischen den Atomen benachbarter Ebenen. Im Vergleich von $\{111\}$ -, $\{110\}$ - und $\{100\}$ -Ebenen der Diamantstruktur fällt auf, dass $\{100\}$ -Grenzflächenatome, anders als $\{111\}$ - oder $\{110\}$ -Grenzflächenatome, doppelt zur nächsten Lage gebunden sind, während wiederum die Bindungslängen zwischen benachbarten $\{110\}$ -Ebenen kürzer sind als im Falle von $\{111\}$ -Ebenen. Folglich sind bei Silizium die natürlichen Spaltebenen die $\{111\}$ -Ebenen.

Ein anderes Bild ergibt die Betrachtung der Zinkblendestruktur der III-V und II-VI Halbleiter, bei denen die Polarität und Elektronendichte der Oberflächen mit einbezogen werden müssen [Ada94]. Hier bestehen die $\{100\}$ -Ebenen abwechselnd vollständig aus Kationen oder Anionen, weshalb die Bindungen zwischen benachbarten Netzebenen ebenso wie zwischen benachbarten $\{111\}$ -Ebenen immer vom Kation zum Anion (oder umgekehrt) reichen. Aus diesem Grund ist die Elektronendichte zwischen zwei Netzebenen nicht symmetrisch, sondern in Richtung der Anionen verschoben, woraus eine zusätzliche elektrostatische Anziehung zwischen diesen beiden Netzebenen resul-

tiert. Diese Anziehungskraft erschwert die Separation eines Zinkblendekristalls entlang seiner $\{111\}$ -Ebenen. Im Gegensatz dazu sind die $\{110\}$ -Ebenen aus einer gleichen Anzahl von Kationen und Anionen zusammengesetzt und es wirken zwischen benachbarten Ebenen keine elektrostatischen Kräfte. Zinkblendehalbleiter spalten deshalb bevorzugt entlang der $\{110\}$ -Ebenen.

2.3.1 Oberflächenrekonstruktionen

An der freiliegenden Kristalloberfläche eines Zinkblendegitters fehlen in einer Richtung die Bindungspartner. Aus der obersten Lage der kovalent gebundenen Atome ragen nicht abgesättigte Bindungorbitale (engl. dangling bonds). Unkompensierte Ladung an der Oberfläche erzeugt ein elektrisches Feld im Kristall und stellt einen energetisch ungünstigen Zustand dar [Pas89]. Durch Ladungstransfer und Bildung wechselseitiger Bindungen zwischen benachbarten Oberflächenatomen kann diese Energie abgesenkt und eine neutrale und stabile Oberfläche gebildet werden. Meist geht diese Wechselwirkung mit einer Verschiebung der Atome aus ihrer eigentlichen Position einher. Der als Oberflächenrekonstruktion bekannte Prozess bewirkt eine Symmetriebrechung und eine Vergrößerung der Elementarzelle an der Oberfläche.

Die Bezeichnungsweise von Oberflächenrekonstruktionen orientiert sich an der Wood'schen Notation [Woo64]. Um die veränderte Elementarmasche einer $(m \times n)$ -rekonstruierten Oberfläche darzustellen, muss der eine Basisvektor m -mal, der andere Basisvektor n -mal erweitert werden. Befindet sich im Zentrum einer $(m \times m)$ -Masche ein Gitterpunkt, lautet die Bezeichnung der Oberflächenrekonstruktion $c(m \times m)$.

An der (001)-Oberfläche eines Zinkblendekristalls sind pro Atom zwei der sp^3 -Orbitale nicht abgesättigt. Für den II-VI-Halbleiter ZnSe bedeutet dies, dass pro Zn-Atom ein unabgesättigtes Orbital und pro Se-Atom drei Orbitale aus der Festkörperoberfläche herausragen. Die Elektronenzählregel besagt nun, dass die freien Orbitale kationischer Atome entleert und die dangling bonds anionischer Atome gefüllt werden [Pas89]. Abbildung 2.6 skizziert die Anordnung der obersten Atomlagen für zwei unterschiedliche Rekonstruktionen der ZnSe(001)-Oberfläche. Bei einer Se-Stabilisierung der ZnSe(001)-Oberfläche ergibt sich eine (2×1) -Rekonstruktion. Von den beiden dangling bonds eines Se-Atoms wird eines durch Dimerisation mit einem benachbarten Se-Atom abgesättigt, das andere durch Ladungstransfer gefüllt (vgl. Abb. 2.6a). Die Oberfläche ist mit einer vollständigen Monolage von Se-Dimeren bedeckt. Da alle dangling bonds gefüllt sind, herrscht Neutralität und es kann sich kein Oberflächendipol ausbilden. Die resultierende Elementarmasche besitzt in $[1\bar{1}0]$ -Richtung die doppelte, senkrecht dazu die gleiche Länge wie eine nicht-rekonstruierte Elementarmasche. Eine Zn-reiche Oberfläche ist

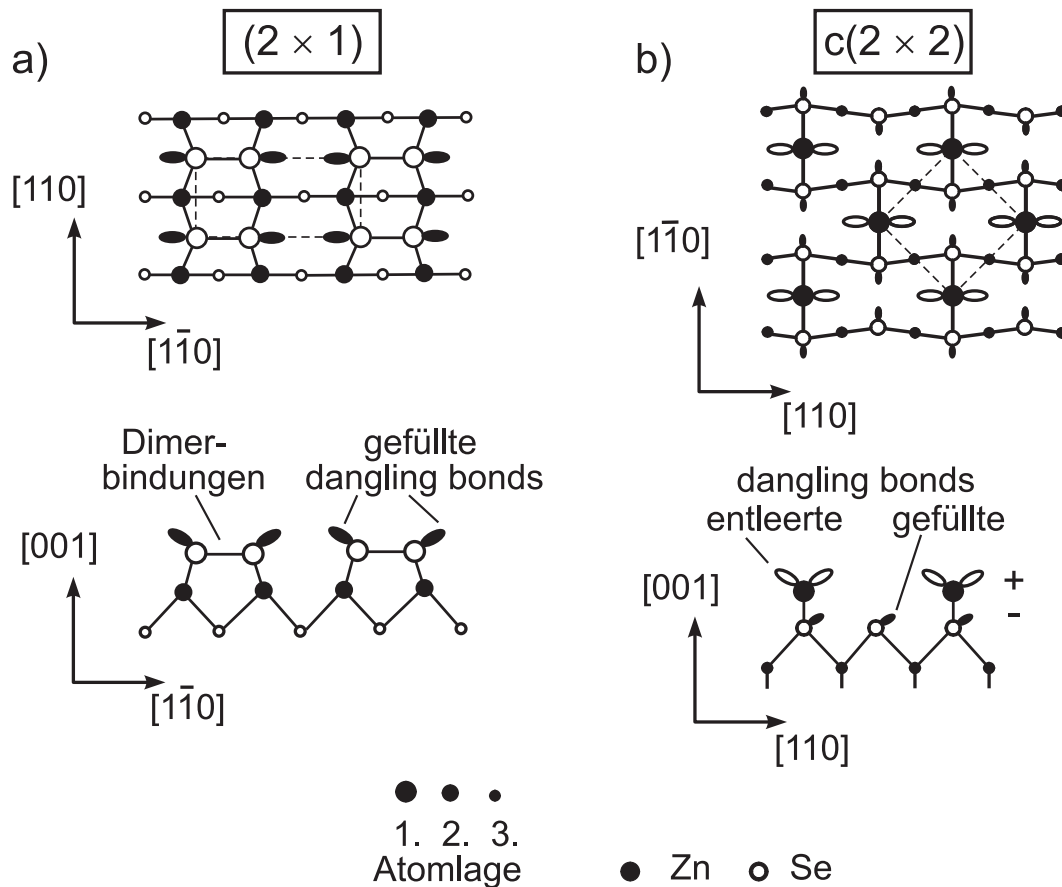


Abbildung 2.6. Auf- und Seitenansicht der Oberflächenrekonstruktionen einer $\text{ZnSe}(001)$ -Oberfläche. Die jeweiligen Elementarmaschen sind gestrichelt gekennzeichnet. a) (2×1) -Rekonstruktion einer Se-bedeckten $\text{ZnSe}(001)$ -Oberfläche. Durch Dimerisation benachbarter Se-Atome wird die Elementarmasche in $[1\bar{1}0]$ -Richtung verdoppelt. b) $c(2 \times 2)$ -Rekonstruktion einer von einer halben Zn-Monolage bedeckten $\text{ZnSe}(001)$ -Oberfläche.

nur bei einer Bedeckung mit einer halben Monolage nichtdimerisierter Zn-Atome stabil. Die Elektronen der überschüssigen Bindungorbitale der Zn-Atome wechseln in die dangling bonds der darunter liegenden Se-Atome (vgl. Abb. 2.6b). Der Ladungstransfer führt zu einem Oberflächendipol und in Folge dessen durch die Absenkung der Elektronenaffinität zu einem Energiegewinn [Che94]. Die nur halbe Bedeckung bewirkt eine Verdopplung der Elementarmasche in $[100]$ - und $[010]$ -Richtung und folglich eine $c(2 \times 2)$ -Rekonstruktion.

Die polare $\text{GaAs}(001)$ -Oberfläche kann abhängig von der Stöchiometrie der obersten Atomlagen ebenfalls eine Vielzahl verschiedener Rekonstruktionen ausbilden. Die unterschiedliche geometrische Ordnung der Rekonstruktionen wird im Wesentlichen von der Art und dem Bedeckungsgrad der jeweils vorherrschend adsorbierten Atomsorte bestimmt. Eine (4×2) -rekonstruierte Oberfläche bildet sich bei Ga-reichen Strukturen

mit einer Galliumbedeckung im Äquivalent von etwa 0,75 Monolagen aus. Die Galliumatome bedecken in geordneten Dimerreihen mit Bindung parallel zur $[110]$ -Richtung eine geschlossene Atomlage Arsen. Ändert sich das As/Ga-Verhältnis zugunsten einer As-reichen Bedeckung, treten Rekonstruktionen mit (2×4) -Symmetrie in den Vordergrund, die mit steigender Arsenbedeckung mit alpha, beta und gamma bezeichnet werden. Die Oberfläche ist entsprechend mit 0,5, 0,75 und einer Monolage Arsen bedeckt. Mit dem Übergang zum As-Überschuss bestehen die jeweiligen (2×4) -rekonstruierten Oberflächen aus geordneten Reihen von zwei oder mehr Arsendimeren pro Elementarmasche. Im Gegensatz zur Ga-Termination verläuft die As-Dimerbindung parallel zur $[1\bar{1}0]$ -Richtung. Die $c(4 \times 4)$ -Rekonstruktion besitzt mit einem Äquivalent von 1,75 Monolagen Arsen die größte Arsenbedeckung aller bekannten Rekonstruktionen der GaAs(001)-Oberfläche. Gruppen von Arsendimeren bedecken eine geschlossene Arsenlage. Die Dimerbindung ist abermals parallel zur $[110]$ -Richtung.

Welche Atomsorte, A oder B, eines binären Halbleiters AB die Stöchiometrie der Oberfläche dominiert, hängt zum einen von der Temperatur der Oberfläche, zum anderen vom Verhältnis der Komponenten A und B in der angrenzenden Atmosphäre ab. Im Falle der hier betrachteten Systeme ZnSe und GaAs tritt bei niedrigen Temperaturen und einer Übersättigung an Se(As)-Atomen eine Se(As)-terminierte (001)-Oberfläche auf. Mit steigenden Oberflächentemperaturen wächst die Desorptionsrate von Se(As)-Atomen. Die Stöchiometrie der Oberfläche verschiebt sich jeweils zugunsten der Zn- und Ga-Atome. Aus theoretischen Überlegungen ergeben sich für jede beobachtete Oberflächenrekonstruktion meist mehrere mögliche Atomanordnungen von hinreichender energetischer Stabilität. Abbildung 2.7 zeigt eine Auswahl von Modellen der verschiedenen Rekonstruktionen der GaAs(001)-Oberfläche.

Die Änderung der Periodizität kann in oberflächenempfindlichen Beugungsexperimenten wie GIXA (**G**razing **I**ncidence **X**-ray **A**nalysis), RHEED (**R**eflection **H**igh **E**nergy **E**lectron **D**iffraction) und LEED (**L**ow **E**nergy **E**lectron **D**iffraction), oder durch die Rastersondentechniken STM (**S**canning **T**unneling **M**icroscopy) und AFM (**A**tomic **F**orce **M**icroscopy) beobachtet werden. Die Bindungsverhältnisse an der Oberfläche, ihre Stöchiometrie und elektronische Struktur sind durch optische Methoden wie diverse PES-Methoden (**P**hoto **E**lectron **S**pectroscopy) im Röntgen (XPS) und ultravioletten Bereich (UPS), Ramanspektroskopie und Reflexionsdifferenzspektroskopie RDS zugänglich.

Im Gegensatz zu den polaren (001)-Oberflächen der Zinkblende-Halbleiter bilden die unpolaren (110)-Oberflächen keine Rekonstruktionen aus.

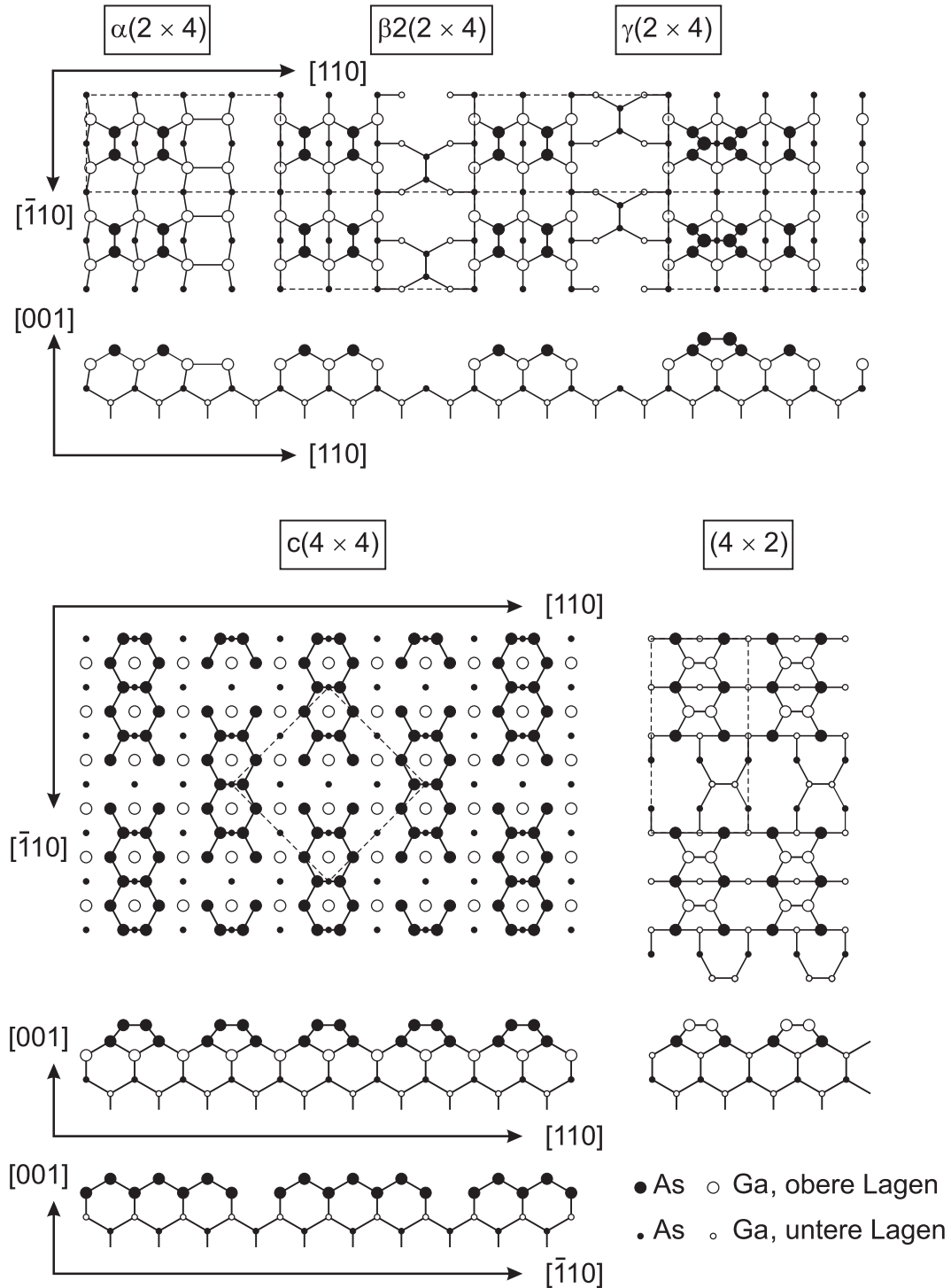


Abbildung 2.7. Theoretische Modellvorstellungen verschiedener Rekonstruktionen der GaAs(001)-Oberfläche in Auf- und Seitenansicht. Abhängig von der Stöchiometrie an der Oberfläche erhält man bei Ga-Überschuss eine (4×2) -Rekonstruktion [Xue95]. Bei steigender As-Bedeckung ab 0,5 Monolagen durchlaufen die oberen Lagen diverse (2×4) -Rekonstruktionen [Has95, Oht02], bis schließlich die stabile $c(4 \times 4)$ -Rekonstruktion erreicht wird [Bie90]. Die jeweiligen Elementarmaschen sind gestrichelt gekennzeichnet.

2.3.2 Die ZnSe-GaAs-Heterogrenzfläche

Moderne Kristallzucht- und Schichtherstellungsverfahren erlauben ein atomlagengenau- es Wachstum von Abfolgen unterschiedlicher Halbleitermaterialien. Am Übergang von einem Halbleiter zum anderen bildet sich eine Heterogrenzfläche aus. Um Halbleiterheterostrukturen detailliert verstehen und reproduzierbar herstellen zu können, sind Verständnis und Kontrolle der Heterogrenzflächen von entscheidender Bedeutung.

Die Eigenschaften der für diese Arbeit wichtigen ZnSe/GaAs-Heterogrenzfläche werden maßgeblich von der Anordnung der kationischen Atomsorten Zn und Ga sowie der anionischen Se- und As-Atome im Übergangsbereich der beiden Halbleiter bestimmt. Die atomare Struktur beeinflusst die elektronischen Zustände und die Polarität der Grenzfläche und somit ihre strukturelle Qualität sowie den Versatz von Leitungs- und Valenzband am Heteroübergang, der im Weiteren auch als Leitungsband- und Valenzbandoffset bezeichnet wird. Der natürliche Valenzbandoffset wird in theoretischen Modellen [Chr88] und aus XPS-Messungen an der unpolaren ZnSe-GaAs(110)-Grenzfläche [Kow82] mit etwa 1,1 eV angegeben.

An der heterovalenten ZnSe/GaAs-Grenzfläche bilden sich elektronendefizitäre, akzeptorartige Zn-As-Bindungen und elektronenreiche, donatorartige Ga-Se-Bindungen aus. Theoretische Rechnungen zeigen, dass ein abrupter Übergang von GaAs zu ZnSe, der ausschließlich aus Zn-As-Bindungen besteht, energetisch nicht stabil ist, während die Ausbildung einer kompletten Lage von Ga-Se-Bindungen trotz des damit verbundenen Ladungsungleichgewichts zu einer Energieabsenkung führt [Far05]. Bei einem Überangebot von Ga und Se an der Grenzfläche bildet sich allerdings meist eine zinkblendeartige Zwischenschicht aus Ga_2Se_3 , die für eine Zunahme von Frank-Teilversetzungen in der darüber liegenden ZnSe-Schicht verantwortlich gemacht wird [Kim97, Kuo97]. Sind beide Bindungstypen an der Ausbildung der Grenzfläche beteiligt, führt eine ungleiche Anzahl von Zn-As und Ga-Se-Bindungen zu einem elektronischen Ungleichgewicht. Es kommt zu Instabilitäten und Störungen innerhalb der Grenzfläche, die die nachfolgend aufgewachsene Epischicht nachhaltig beeinflussen [Far95]. Eine optimale Grenzfläche wird beim Wachstum auf die mit einer halben Monolage Arsen bedeckte, (2×4) -rekonstruierte GaAs(001)-Oberfläche erwartet, da hier akzeptorartige Zn-As-Bindungen und donatorartige Ga-Se-Bindungen in gleicher Anzahl auftreten. Diese kompensierte Anordnung erweist sich energetisch als besonders stabil [Far05].

Für die ZnSe-GaAs(001)-Grenzfläche besteht eine energetische Entartung bezüglich ihrer Polarität. Je nachdem, ob sich die gemischte Lage aus Anionen oder aus Kationen zusammensetzt, bildet sich ein Dipolmoment von jeweils entgegengesetzter Orientierung aus. Der Einfluss der elektrischen Felder könnte erhebliche Abweichungen vom

natürlichen Valenzbandoffset zu höheren oder niedrigeren Werten bewirken. Die mit gleicher Wahrscheinlichkeit auftretenden Polaritäten addieren sich jedoch zu einem verschwindenden gesamten Dipolmoment der Grenzfläche. Der resultierende Versatz im Valenzband entspricht dem natürlichen Wert [Kle94].

Experimentelle Ergebnisse belegen, dass sowohl die Qualität der Heterogrenzfläche als auch die Bandstruktur am Heteroübergang von der Wahl der Wachstumsparameter während der Startphase des epitaktischen Wachstums abhängt. Die kritischen Größen sind zum einen die Temperatur und die Stöchiometrie der Substratoberfläche, zum anderen das Flussverhältnis der angebotenen Komponenten Zn und Se der Epischicht. Mit einer Änderung dieser vier Parameter lässt sich nicht nur die Kristallstruktur an der Grenzfläche optimieren, sondern auch der Versatz in Valenz- und Leitungsband kontinuierlich über einen Bereich von 0,8 eV variieren. So wurde beim epitaktischen Wachstum von ZnSe auf eine As-reiche, (2×4) -rekonstruierte GaAs(001)-Oberfläche, die zuvor einem Strahl von Zn-Atomen ausgesetzt war, eine sehr geringe Defektdichte von etwa $1 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-2}$ an der Grenzfläche erzielt. Zeigte das Substrat eine $c(4 \times 4)$ -Rekonstruktion oder eine Ga-reiche (4×6) -Rekonstruktion und erfolgte zuvor eine Exposition durch Se anstatt durch Zn, stieg die Anzahl der Defekte um bis zu vier Größenordnungen [Oht98]. Ein besonders niedriger Valenzbandoffset von 0,5 eV resultierte aus dem Wachstum von ZnSe auf eine (2×4) -rekonstruierte GaAs(001)-Oberfläche bei einem extrem niedrigen Zn/Se-Flussverhältnis von 0,1. Erfolgte das ZnSe-Wachstum bei einem Zn/Se-Flussverhältnis von 10, konnte ein relativ hoher Valenzbandoffset von 1,3 eV erzielt werden [Nic94, Bra96a]. Entsprechende Resultate zeigten sich auch, wenn die Substratoberfläche vor dem ZnSe-Wachstum bei stöchiometrischem Flussverhältnis einem elementaren Strahl von Se- bzw. Zn-Atomen ausgesetzt war [Bra96b].

Die Möglichkeit, Valenz- und Leitungsbandoffset gezielt an die gewünschte Funktion eines Heterostrukturbauelements anzupassen, macht das System ZnSe/GaAs besonders interessant für die technologische Anwendung. Ein Leitungsbandoffset von ZnSe gegenüber GaAs von bis zu 0,8 eV könnte bei der Realisierung von ZnSe/n-GaAs MISFET-Bauelementen (**M**etal **I**nsulator **S**emiconductor **F**ield **E**ffect **T**ransistor) eine Alternative zu (Al,Ga)As mit einer Barriere von nur 0,4 eV an der (Al,Ga)As/GaAs-Grenzfläche darstellen [Far95].

Für das im Rahmen dieser Arbeit vorgestellte Experiment ist es wichtig, den Leitungsbandoffset zwischen dem mit Mn dotierbaren ZnSe und GaAs so gering wie möglich zu halten, um den Transport spinpolarisierter Elektronen über die Heterogrenzfläche zu erleichtern.

Kapitel 3

Das zweidimensionale Elektronengas

Unter einem zweidimensionalen Elektronengas (2DEG) versteht man ein System von Elektronen, die sich in einer Ebene frei bewegen können, deren Translation in der dazu senkrechten Raumrichtung jedoch auf einer Längenskala, die ihrer de Broglie-Wellenlänge $\lambda_{dB} = \frac{h}{p}$ entspricht, starken Einschränkungen unterworfen ist. Im Rahmen dieser Arbeit sei die Ebene per definitionem durch die x - und die y -Richtung aufgespannt, die z -Richtung sei senkrecht zur Ebene orientiert. In diesem Kapitel wird auf die Herstellung und die grundlegenden Eigenschaften und Effekte derartiger Systeme eingegangen. Ein besonderes Augenmerk wird dabei auf den integralen Quanten-Hall-Effekt (iQHE) und auf seine Beschreibung im Rahmen des Landauer-Büttiker-Formalismus gerichtet.

Ein 2DEG wird im Allgemeinen an der Potentialbarriere eines Heteroübergangs realisiert, an der sich durch Erhöhung der lokalen Elektronendichte eine Inversions- oder Akkumulationsschicht ausbildet. Ist die Ausdehnung des Elektronengases in z -Richtung kleiner als die de Broglie-Wellenlänge $\lambda_{dB} = \frac{h}{p}$ der Elektronen, liegt ein zweidimensionales System vor.

Eine Struktur, an der viele grundlegende Eigenschaften zweidimensionaler Elektronensysteme erforscht wurden und die immer noch unerreichte technologische Relevanz aufweist, ist der Silizium-MOSFET. Auf den p -leitenden Bereich eines Silizium npn -Transistors wird eine SiO_2 -Isolatorschicht und eine Gate-Elektrode aufgebracht. Durch Anlegen einer geeigneten Gate-Spannung bildet sich unter Einfluss des äußeren elektrischen Felds an der Halbleiter-Isolator-Grenzfläche eine mit Elektronen gefüllte Potentialsenke, eine so genannte Inversionsschicht. Für Anwendungen in der Hochfrequenztechnik und Leistungselektronik, aber vor allem in der Grundlagenforschung sind

Heterostrukturen aus GaAs und AlGaAs aufgrund ihrer herausragenden Transporteigenschaften das System der Wahl.

3.1 Die GaAs/ $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Heterostruktur

Beim elektrischen Transport in Halbleitern hoher kristalliner Qualität ist der dominierende Widerstandsmechanismus bei tiefen Temperaturen die Streuung an ionisierten Störstellen. Die Beweglichkeit lässt sich in solchen Materialien jedoch erhöhen, wenn man eine räumliche Trennung der freien Ladungsträger von den Donatoren oder Akzeptoren herbeiführt. Dieses Konzept wird mit größtem Erfolg in Heterostrukturen aus GaAs und AlAs umgesetzt. Diese beiden Halbleiter zeichnen sich durch annähernd gleiche Gitterkonstanten, aber sehr unterschiedliche Bandlücken und Elektronenaffinitäten aus. Hierdurch ist zum einen ein verspannungsfreies Wachstum der beiden Materialien aufeinander, zum anderen die gezielte Nutzung der Diskontinuitäten von Valenz- und Leitungsband als Potentialbarriere am Heteroübergang möglich.

Da $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ ab einem Aluminiumgehalt von 40 % zu einem indirekten Halbleiter wird, verwendet man $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ mit $x \approx 0,3$ als Barrierenmaterial. Bei einer Temperatur von $T = 4,2 \text{ K}$ beträgt die Bandlücke von GaAs $1,52 \text{ eV}$, von $\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ $1,95 \text{ eV}$. Gegenüber dem Vakuumniveau befindet sich die Leitungsbandunterkante des GaAs aufgrund des Unterschiedes in den Elektronenaffinitäten energetisch unterhalb der des AlGaAs, die Valenzbandoberkante des GaAs allerdings noch oberhalb der des AlGaAs. Bringt man nun beide Materialien in Kontakt, bildet sich ein Typ I Heteroübergang aus. Der Unterschied der Gap-Energie teilt sich in einem Verhältnis von etwa $2 : 1$ auf die Diskontinuitäten der Leitungs- und Valenzbänder auf, so dass sich ein Leitungsbandoffset von 280 meV ausbildet.

Dotiert man die $\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ -Schicht mit Si-Atomen, liegen die Donatorniveaus höher als die Leitungsbandkante des benachbarten GaAs. Elektronen diffundieren deshalb in die GaAs-Schicht und hinterlassen im AlGaAs eine positive Raumladung der ionisierten Donatoratome. Im attraktiven Coulombfeld der Si-Ionen sammeln sich die Elektronen in einer Anreicherungsschicht an der Heterogrenzfläche, da sie die Barriere im Leitungsband nicht durchdringen können. Die sich so ausbildende Dipolschicht führt zu einer Verbiegung der Bänder und resultiert im Leitungsband in einer dreiecksförmigen Potentialmulde, in der die Elektronen eingesperrt sind. Somit kann Ladungstransport nur innerhalb einer dünnen Schicht an der Grenzfläche stattfinden.

Der große Vorteil dieser als Modulationsdotierung [Din78] bekannten Vorgehensweise besteht darin, dass die Streuung der Leitungselektronen am Potential der Donatorionen aufgrund ihrer räumlichen Trennung von den ionisierten Donatoren stark redu-

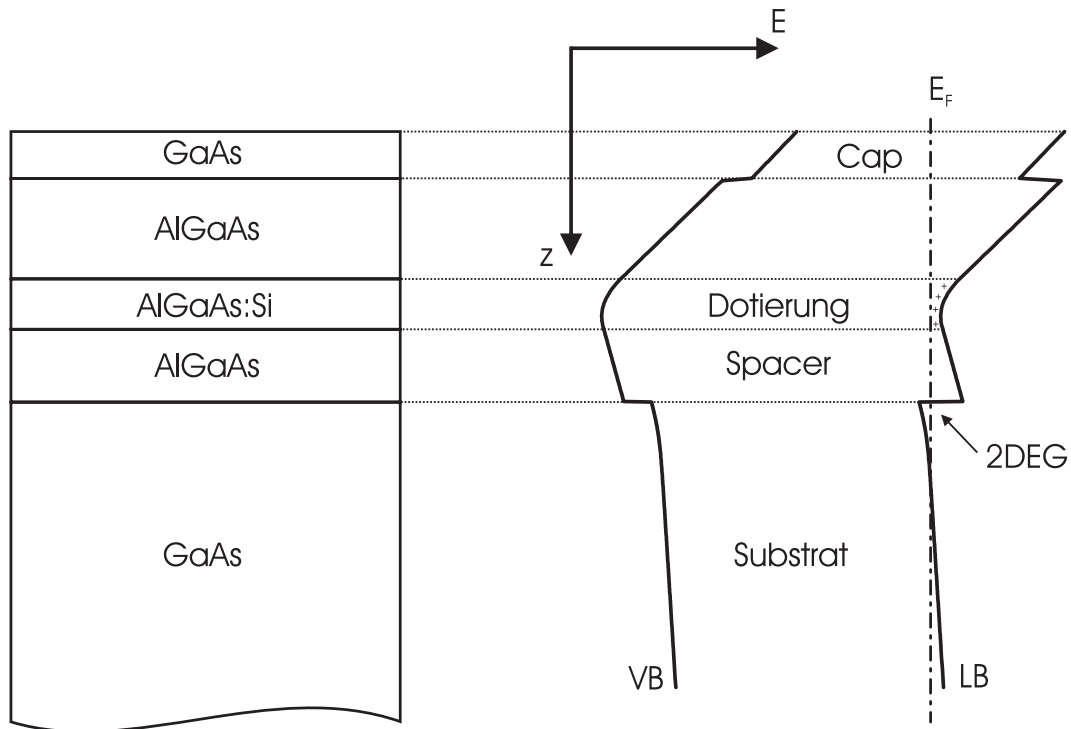


Abbildung 3.1. Links: Schematische Darstellung des strukturellen Aufbaus einer typischen GaAs/AlGaAs-Heterostruktur mit einem 2DEG. Rechts: Berechneter Verlauf von Valenzband (VB) und Leitungsband (LB) der Heterostruktur. An der Grenzfläche von GaAs-Substrat und AlGaAs-Barriere fällt das Leitungsband unterhalb des Fermiveaus E_F ab. Es bildet sich ein 2DEG aus. Die Silizium-Modulationsdotierung befindet sich in der AlGaAs-Barriere und ist durch die undotierte „Spacer“-Schicht von der zwei-dimensionalen Ladungsträgerschicht getrennt. Eine „Cap“-Schicht schützt die Struktur vor Oxidation.

ziert ist. Um den Abstand zwischen Transportkanal und dotiertem Bereich weiter zu vergrößern, wird eine undotierte AlGaAs-Schicht, der so genannte *Spacer*, zwischen der Heterogrenzfläche und dem Si-dotierten AlGaAs eingefügt.

Das Verfahren der Modulationsdotierung kann besonders erfolgreich durch den Einsatz der hochentwickelten Kristallzuchttechniken MBE (Molekularstrahlepitaxie) und MOVPE (Metallorganische Gasphasenepitaxie) realisiert werden. Diese beiden Verfahren ermöglichen die Herstellung atomar glatter AlGaAs-GaAs-Grenzflächen, wodurch die Beweglichkeit der Elektronen in der Ebene dieser Grenzflächen sehr hohe Werte erreicht. Mit der MBE ist es möglich, die Si-Dotierschicht auf nur wenige Monolagen oder sogar nur den Bruchteil einer Monolage zu reduzieren. Dieser Prozess wird als δ -Dotieren bezeichnet. Er bewirkt, dass sich die Si-Ionen in einem Volumenelement von minimaler Ausdehnung in Wachstumsrichtung in definiertem Abstand zum leitfähigen Elektronenkanal konzentrieren. Dies führt zu einer Minimierung von Potentialfluktuationen und somit zu einer weiteren Steigerung der Elektronenbeweglichkeit [Sch89].

In Abbildung 3.1 ist links der Aufbau einer typischen 2DEG-Heterostruktur schematisch dargestellt. Auf ein undotiertes GaAs-Substrat oder besser einer undotierten GaAs-Epischicht wird zunächst eine Spacer-Schicht aus undotiertem $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ aufgewachsen. Darauf wird eine dünne Schicht Si-dotiertes $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ und wiederum undotiertes $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ abgeschieden. Den Abschluss bildet eine GaAs-Schicht zum Schutz vor Oxidation der Al-haltigen Barriere. Der Schichtfolge entsprechend, bezeichnet man das vorgestellte Design als MDSI-Struktur (**M**odulation **D**oped **S**ingle **I**nterface). Rechts in Abbildung 3.1 ist der dazugehörige Verlauf von Valenz- und Leitungsband angetragen, der aus selbstkonsistenten Berechnungen hervorgeht. Die Elektronen sammeln sich an der Grenzfläche zwischen GaAs-Substrat und $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Spacer und führen zu einer Verbiegung des Leitungsbands unter das Fermi-niveau.

Neben der Beweglichkeit ist die Ladungsträgerdichte eine wichtige Bestimmungsgröße zweidimensionaler Elektronengase. In einer GaAs/AlGaAs-Heterostruktur wird sie von der Höhe der Dotierung sowie dem Abstand der Dotierschicht von der Probenoberfläche und dem 2DEG beeinflusst. In der Tat wird der größte Teil der Elektronen dazu benötigt, um die Oberflächenzustände von GaAs abzusättigen, die die Fermienergie in der Mitte der Bandlücke festhalten. Nur ein kleiner Bruchteil der Elektronen gelangt in die Potentialsenke am Heteroübergang und bildet die hochbewegliche Ladungsträgerschicht. Eine unabhängige Kontrolle von Ladungsträgerdichte und Beweglichkeit ist durch die Gestaltung der Heterostruktur nur begrenzt möglich. Durch eine Erhöhung der Spacer-Dicke kann man höhere Beweglichkeiten erzielen, verringert aber gleichzeitig die Ladungsträgerdichte. Die kontinuierliche Weiterentwicklung der Kristallzucht und des strukturellen Aufbaus der GaAs/AlGaAs-Heterostrukturen ermöglicht heutzutage Beweglichkeiten von mehr als $10^7 \text{ cm}^2/\text{Vs}$, was bei typischen Ladungsträgerdichten von einigen 10^{11} cm^{-2} einer mittleren freien Weglänge von über $100 \mu\text{m}$ entspricht.

3.2 Das 2DEG ohne externe Felder

Der Einschluss der Elektronen im Potentialgraben am GaAs/AlGaAs-Heteroübergang auf einen Bereich kleiner als ihre de Broglie-Wellenlänge erfordert eine quantenmechanische Betrachtung des Elektronensystems. Die zeitunabhängige Schrödingergleichung für ein Elektron mit der Wellenfunktion $\Psi(\vec{r})$ in einem beliebigen Potential $V(\vec{r})$ lautet

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m^*} \nabla^2 + V(\vec{r}) \right] \Psi(\vec{r}) = E \Psi(\vec{r}) . \quad (3.1)$$

Die effektive Masse m^* der Elektronen berücksichtigt die Wechselwirkung der Elektronen mit dem periodischem Kristallpotential und wird als isotrop und materialunabhän-

gig angenommen. Wirkt das einschränkende Potential entlang der Wachstumsrichtung z , ist $V(\vec{r}) = V(z)$ und die Lösung der Schrödingergleichung lautet

$$\Psi(x, y, z) = e^{ik_x x} e^{ik_y y} u(z) . \quad (3.2)$$

Die Elektronen können in x - und y -Richtung frei propagieren und durch ebene Wellen mit einem kontinuierlichen Energiespektrum beschrieben werden. Die vom Einschlusspotential abhängige Funktion $u(z)$ löst die eindimensionale Schrödingergleichung

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m^*} \frac{\partial^2}{\partial z^2} + V(z) \right] u(z) = \varepsilon u(z) . \quad (3.3)$$

Für ein näherungsweise dreiecksförmiges Potential $V(z)$ ist der z -abhängige Anteil der Wellenfunktion durch die Airy-Funktionen gegeben [Dav98]. Als Lösung von Gleichung 3.3 erhält man diskrete Energieeigenwerte ε_n der in z -Richtung quantisierten Zustände. Das Energiespektrum der Elektronen setzt sich somit aus diskreten Werten ε_n in z -Richtung und einer parabolischen Dispersion in der x - y -Ebene zusammen:

$$E = \varepsilon_n + \frac{\hbar^2 k_x^2}{2m^*} + \frac{\hbar^2 k_y^2}{2m^*} . \quad (3.4)$$

Man spricht von einer Aufspaltung des Energiespektrums in Subbänder. Je stärker das Einschlusspotential, desto größer ist der energetische Abstand der Subbänder. Ein zweidimensionales Elektronensystem liegt streng genommen nur dann vor, wenn bei tiefen Temperaturen lediglich der Grundzustand besetzt und eine Anregung in energetisch höhere Subbänder nicht möglich ist.

Für zweidimensionale Systeme ist die Zustandsdichte

$$D_{2D}(E) = \frac{m^*}{\pi \hbar^2} \quad (3.5)$$

innerhalb eines Subbands konstant und nicht von der Energie abhängig. Dies ist eine Besonderheit gegenüber eindimensionalen oder dreidimensionalen Systemen, in denen $D_{1D}(E) \propto \sqrt{1/E}$ bzw. $D_{3D}(E) \propto \sqrt{E}$ gilt.

In Abbildung 3.2 ist die Dispersion $E(k)$ und die Zustandsdichte $D(E)$ eines zweidimensionalen Elektronensystems aufgetragen, das von einem dreiecksförmigen Potentialgraben in z -Richtung erzeugt wird. Erst wenn die Energie einen der quantisierten Energieeigenwerte ε_n der in z -Richtung gebundenen Zustände übersteigt, kann ein weiterer Ast der Dispersionsrelation mit Elektronen besetzt werden.

Die Besetzung der Zustände mit Elektronen erfolgt gemäß der Fermiverteilung. Am absoluten Nullpunkt der Temperatur stellt die Fermienergie E_F die oberen Grenzer-

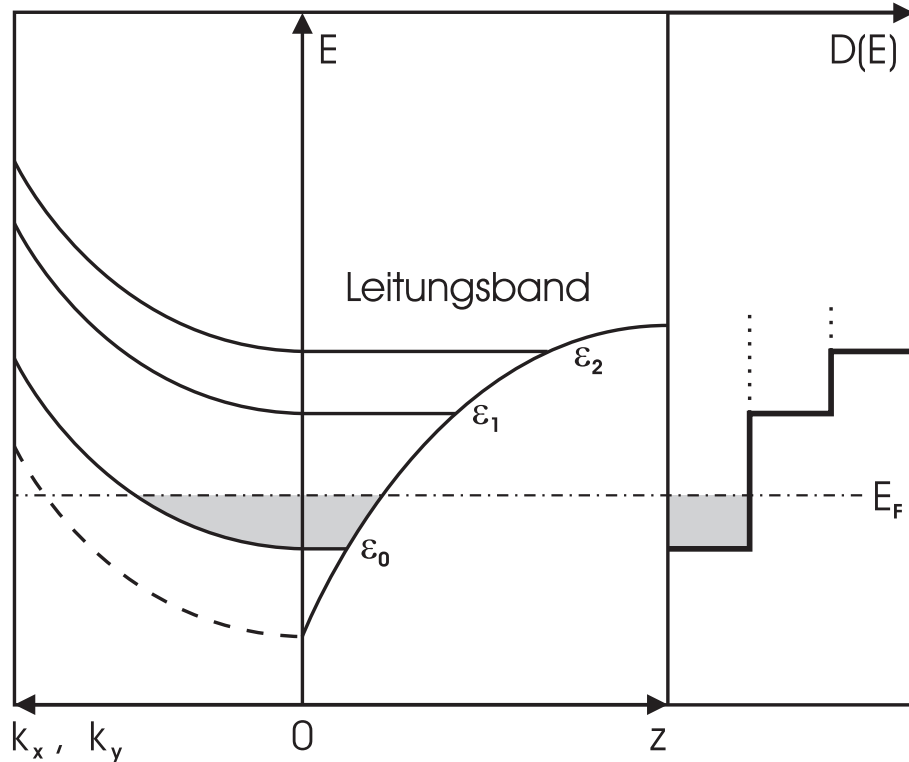


Abbildung 3.2. Dispersion $E(k)$ und Zustandsdichte $D(E)$ in einem 2DEG, das von einem nahezu dreiecksförmigen Potentialgraben in z -Richtung erzeugt wird (nach [Wei92]). Übersteigt die Energie einen der quantisierten Energieeigenwerte ε_n der in z -Richtung gebundenen Zustände, kann ein weiterer Ast der Dispersionsrelation mit Elektronen besetzt werden. Die Zustandsdichte wird an diesen Punkten um $\frac{m^*}{\pi\hbar^2}$ erhöht, während sie ansonsten konstant bleibt.

gie der besetzten Zustände dar. Für endliche Temperaturen bezeichnet das chemische Potential die Energie, bei der die Fermiverteilung auf die Hälfte abgefallen ist [Kit99]. Das chemische Potential ist etwas kleiner als die Fermienergie, kann aber für Temperaturen sehr viel kleiner als die Fermitemperatur $T_F = E_F k_B^{-1}$, die im 2DEG typische Werte von über 100 K annimmt, durch E_F genähert werden. Für $T \ll T_F$ sind die elektronischen Zustände weit oberhalb der Fermienergie unbesetzt. Elektronen in den voll besetzten Zuständen, die energetisch weit unterhalb von E_F liegen, finden keine freien Zustände, die durch thermische Aktivierung erreichbar wären. Bei tiefen Temperaturen können deshalb nur Zustände zum Transport beitragen, die in einem schmalen Intervall von einigen $k_B T$ Breite um E_F liegen. Die elektronischen Eigenschaften eines 2DEG können daher gut durch die Fermienergie E_F , den Fermiwellenvektor k_F , die Fermiwellenlänge λ_F und die Fermigeschwindigkeit v_F beschrieben werden. Diese Größen können in Abhängigkeit von der experimentell leicht zugänglichen Ladungsträgerdichte n_s ausgedrückt werden:

$$E_F = \frac{\hbar^2 k_F^2}{2m^*} = \frac{\hbar^2 \pi n_s}{m^*}, \quad (3.6a)$$

$$k_F = \sqrt{2\pi n_s}, \quad (3.6b)$$

$$\lambda_F = \frac{2\pi}{k_F} = \sqrt{\frac{2\pi}{n_s}}, \quad (3.6c)$$

$$v_F = \frac{\hbar k_F}{m^*} = \frac{\hbar \sqrt{2\pi n_s}}{m^*}. \quad (3.6d)$$

3.3 Ladungstransport im 2DEG

Eine Methode zur Charakterisierung zweidimensionaler Elektronensysteme ist die Bestimmung der elektronischen Eigenschaften, der Ladungsträgerdichte n_s und der Beweglichkeit μ . Diese Größen sind in Transportexperimenten unter Anlegen homogener elektrischer und magnetischer Felder zugänglich.

Im klassischen Fall lässt sich die Bewegung von Elektronen im elektrischen Feld nach dem Drude-Modell beschreiben: Die Elektronen erfahren entlang des elektrischen Felds \vec{E} eine gleichförmige Beschleunigung, bis sie nach einer Zeit τ durch Streuprozesse völlig abgebremst werden. Es resultiert eine Driftbewegung der Elektronen in Richtung des elektrischen Felds mit einer mittleren Geschwindigkeit v_D . Der Zusammenhang zwischen Driftgeschwindigkeit und elektrischem Feld ist gegeben durch

$$\vec{v}_D = \frac{e\tau}{m^*} \vec{E} = \mu \vec{E}, \quad (3.7)$$

wobei der Proportionalitätsfaktor

$$\mu = \frac{e\tau}{m^*} \quad (3.8)$$

eine materialspezifische Größe ist, die die Beweglichkeit der Elektronen beschreibt. Da bei tiefen Temperaturen nur Elektronen nahe der Fermikante zum Transport beitragen, kann der Betrag der mittleren Geschwindigkeit gleich der Fermigeschwindigkeit v_F gesetzt werden. Die mittlere freie Weglänge l ist die Strecke, die ein Teilchen im Mittel innerhalb der Zeit τ zurücklegt, bevor ein Stoßprozess stattfindet.

$$l = \tau v_F = \frac{\hbar}{e} \sqrt{2\pi n_s} \mu. \quad (3.9)$$

Für eine Probe mit einer Ladungsträgerdichte $n_s = 4 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ und einer Elektronenbeweglichkeit von $\mu \approx 3 \cdot 10^6 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ beträgt die mittlere freie Weglänge der Elektronen $l \approx 31 \mu\text{m}$. Driften n_s Ladungsträger mit einer mittleren Geschwindigkeit \vec{v}_D , beträgt die resultierende Stromdichte

$$\vec{j} = en_s \vec{v}_D . \quad (3.10)$$

Die Stromdichte \vec{j} ist mit dem elektrischen Feld \vec{E} über das ohmsche Gesetz

$$\vec{j} = \boldsymbol{\sigma} \vec{E} \quad (3.11a)$$

$$\vec{E} = \boldsymbol{\rho} \vec{j} \quad (3.11b)$$

verknüpft. Der Proportionalitätsfaktor $\boldsymbol{\sigma}$ ist die elektrische Leitfähigkeit und $\boldsymbol{\rho}$ ist der spezifische elektrische Widerstand. \vec{E} und \vec{j} haben nicht notwendigerweise die gleiche Richtung. Im zweidimensionalen Elektronengas sind deshalb $\boldsymbol{\sigma}$ und $\boldsymbol{\rho}$ Tensoren zweiter Stufe und gehen durch Tensorinversion $\boldsymbol{\rho} = \boldsymbol{\sigma}^{-1}$ ineinander über. Die in dieser Arbeit verwendeten 2DEG können als isotrope Systeme betrachtet werden. Für die Komponenten des Widerstandstensors gilt deshalb $\rho_{xx} = \rho_{yy}$ und $\rho_{xy} = -\rho_{yx}$.

Befindet sich das stromdurchflossene 2DEG in einem homogenen Magnetfeld senkrecht zu seiner Ebene ($\vec{B} = (0, 0, B)$), wirkt auf die driftenden Elektronen die Lorentzkraft. Die zugehörige Bewegungsgleichung lautet

$$m^* \frac{d\vec{v}_D}{dt} + m^* \frac{\vec{v}_D}{\tau} = e \left(\vec{E} + \vec{v}_D \times \vec{B} \right) . \quad (3.12)$$

Im stationären Fall erhält man mit den Gleichungen 3.8, 3.10 und 3.11 für das ohmsche Gesetz den Ausdruck

$$\begin{pmatrix} E_x \\ E_y \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \frac{m^*}{\tau e} v_x - B v_y \\ B v_x + \frac{m^*}{\tau e} v_x \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \frac{1}{en_s \mu} & -\frac{B}{en_s} \\ \frac{B}{en_s} & \frac{1}{en_s \mu} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} j_x \\ j_y \end{pmatrix} . \quad (3.13)$$

Die Komponenten des Widerstandstensors haben somit folgende Form:

$$\rho_{xx} = \rho_{yy} = \frac{1}{en_s \mu} , \quad (3.14a)$$

$$\rho_{xy} = -\rho_{yx} = -\frac{B}{en_s} . \quad (3.14b)$$

Fließt nun ein konstanter Strom I entlang der x -Richtung ($\vec{j} = (j_x, 0)$), so bewirkt das Magnetfeld in z -Richtung durch die Lorentzkraft eine Ablenkung der Elektronen auf Kreisbahnen. Daraus resultiert eine Ladungsdifferenz zwischen den gegenüberliegenden Rändern einer lateral begrenzten Leiterbahn. Senkrecht zum Stromfluss baut sich eine elektrische Feldkomponente E_y auf, die diese Ablenkung gerade kompensiert. Der mess-

bare Spannungsabfall V_H senkrecht zur Stromrichtung, auch Hall-Spannung genannt, ist zum Magnetfeld B linear proportional. Der Längsspannungsabfall V_L in Stromrichtung ist nach dem Drude-Modell unabhängig vom Magnetfeld. Die Komponenten des Widerstandstensors erhält man aus den Messgrößen Strom und Spannung wie folgt:

$$\rho_{xx} = \frac{E_x}{j_x} = \frac{V_L}{I} \cdot f = R_{\square} , \quad (3.15a)$$

$$\rho_{xy} = \frac{E_y}{j_x} = \frac{V_H}{I} . \quad (3.15b)$$

In zweidimensionalen Systemen ist die Komponente ρ_{xx} identisch mit dem Schichtwiderstand $R_{\square} = R_L \cdot f$. Dies ist der Längswiderstand R_L , korrigiert um einen Formfaktor f , der die Probengeometrie beinhaltet. Kann man die Breite W des Strompfads und den Abstand L zwischen den Spannungsabgriffen für V_L genau definieren, ist $f = \frac{W}{L}$. Liegt eine unregelmäßige Anordnung der Kontakte vor, kann f nach der van der Pauw-Methode [vdP58] bestimmt werden.

Der Vergleich der Gleichungen 3.14 und 3.15 liefert den Zusammenhang zwischen den charakteristischen Bestimmungsgrößen eines 2DEG, n_s und μ , mit den messbaren Spannungen V_H und V_L :

$$n_s = \frac{1}{e \frac{d\rho_{xy}}{dB}} = \frac{I}{e} \frac{1}{\frac{dV_H}{dB}} , \quad (3.16)$$

$$\mu = \frac{1}{en_s \rho_{xx}} = \frac{1}{en_s} \frac{I}{V_L} \frac{1}{f} . \quad (3.17)$$

Die Proportionalitätskonstante zwischen ρ_{xy} und B wird auch Hallkoeffizient R_H genannt.

$$R_H = \frac{d\rho_{xy}}{dB} = \frac{1}{en_s} . \quad (3.18)$$

Das Drude-Modell betrachtet die Elektronen lediglich als klassische Teilchen im elektrischen und magnetischen Feld. Können die Elektronen in hochbeweglichen 2DEG und höheren Magnetfeldern mehrere klassische Kreisbahnen vollenden, bevor sie gestreut werden, kommen Quanteneffekte zum Tragen und das Drude-Modell verliert seine Gültigkeit. Die Zyklotronfrequenz, mit der die Elektronen bei einem Magnetfeld B klassische Kreisbahnen durchlaufen, beträgt

$$\omega_c = \frac{eB}{m^*} . \quad (3.19)$$

Das Drude-Modell liefert dann korrekte experimentelle Ergebnisse, wenn die mittlere freie Weglänge aufgrund der Streuung so klein ist, dass die Elektronen keine Zyklotron-

bahnen mehr vollenden können, ohne gestreut zu werden:

$$\omega_c \tau = \mu B \ll 1 . \quad (3.20)$$

Bei kleinen Magnetfeldern kann der Magnetotransport gut durch das Drude-Modell beschrieben werden.

3.4 Quantisierung im hohen magnetischen Feld

Bei höheren Magnetfeldern weicht das Transportverhalten eines 2DEG stark von dem im Drude-Modell vorhergesagten Verhalten ab. Der Längswiderstand zeigt ausgeprägte Oszillationen, die periodisch in $1/B$ sind. Der Hallwiderstand weicht vom linearen Verlauf ab und weist konstante Bereiche auf, die mit Minima im Längswiderstand zusammenfallen. Die präzise Quantisierung der im Hallwiderstand beobachteten Plateaus bei Werten

$$R_H = \frac{1}{\nu} \frac{h}{e^2} \quad \text{mit} \quad \nu = 1, 2, 3 \dots \quad (3.21)$$

ist die herausragende Eigenschaft des Quanten-Hall-Effekts [Kli80]. Die Widerstandswerte der Plateaus sind somit universell und ausschließlich durch die Naturkonstanten Elementarladung e und Planck'sches Wirkungsquantum h sowie einer ganzen Zahl ν gegeben.

Eine Erklärung dieser Phänomene erfordert eine quantenmechanische Betrachtung. Die Schrödingergleichung für freie Elektronen innerhalb eines zweidimensionalen Subbands unter Einfluss eines äußeren Magnetfelds lautet:

$$\left[\frac{(i\hbar \nabla + e\vec{A}(x, y))^2}{2m^*} + U(y) \right] \Psi(x, y) = E \Psi(x, y) , \quad (3.22)$$

mit dem zweidimensionalen Impulsoperator $\vec{p} = -i\hbar \nabla - e\vec{A}$. Ein Vektorpotential $\vec{A} = (-By, 0, 0)$ beschreibt ein konstantes Magnetfeld $\vec{B} = \text{rot}\vec{A}$, das in z -Richtung senkrecht zur Ebene des 2DEG orientiert ist. Das Randpotential $U(y)$ berücksichtigt die Einschränkung der Elektronenbewegung auf die Breite des zweidimensionalen Leiters, der in x -Richtung als gleichförmig betrachtet werden kann. Betrachtet man zunächst nur Elektronen im Inneren des Leiters, kann das Randpotential vernachlässigt werden ($U(y) = 0$). Mit den Impulsoperatoren $p_x = -i\hbar \frac{\partial}{\partial x}$ und $p_y = -i\hbar \frac{\partial}{\partial y}$ lässt sich Gleichung 3.22 vereinfachen zu

$$\left[\frac{(p_x + eBy)^2}{2m^*} + \frac{p_y^2}{2m^*} \right] e^{ikx} \chi(y) = E e^{ikx} \chi(y) . \quad (3.23)$$

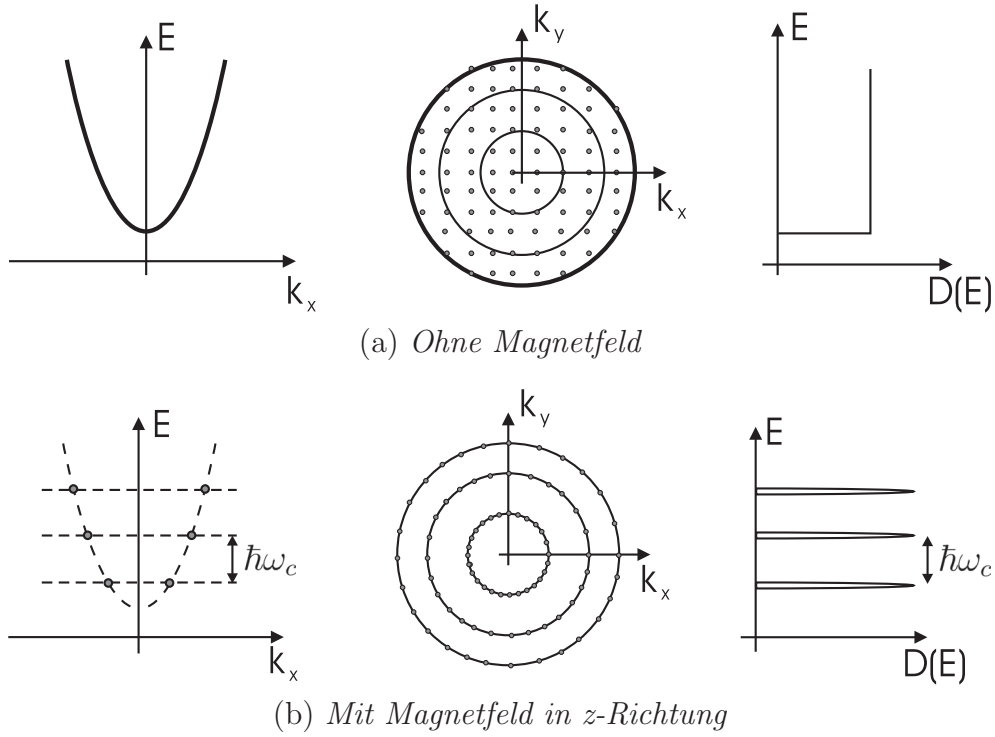


Abbildung 3.3. (a) Ohne Magnetfeld liegen die kontinuierlichen Zustände eines Subbands gleichverteilt im \vec{k} -Raum innerhalb des Fermikreises, die Zustandsdichte ist konstant. (b) Im schichtsenkrechten Magnetfeld gehen die kontinuierlichen Zustände des Subbands in diskrete Zustände bei den Energiewerten E_n der Landauniveaus über. Im \vec{k} -Raum kondensieren die Zustände auf Kreislinien, die Zustandsdichte spaltet in diskrete Landauniveaus auf (nach [Iba99] und [Kit99]).

Die Wahl des Koordinatensystems erlaubt eine Separation der Wellenfunktion in eine ebene Welle mit Wellenvektor k_x in x -Richtung und eine Funktion $\chi(y)$. Diese löst die eindimensionale Schrödingergleichung

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m^*} \frac{\partial^2}{\partial y^2} + \frac{m^*}{2} \omega_c^2 (y - y_k)^2 \right] \chi(y) = E \chi(y) \quad (3.24)$$

mit der Zyklotronfrequenz ω_c aus Gleichung 3.20.

Der Parameter y_k gibt die Zentrumsordinate der Wellenfunktion der Elektronen an und ist über

$$y_k = -\frac{\hbar k_x}{eB} = -k_x l_c^2 \quad (3.25)$$

mit dem Impuls in x -Richtung verknüpft. Die magnetische Länge $l_c = \sqrt{\hbar/eB}$ gibt die ungefähre Ausdehnung der Wellenfunktion an. Zieht man eine Analogie zur klassischen Physik, so ist l_c gleich dem Radius der Zyklotronbahn eines Elektrons der Energie $\hbar\omega_c/2$.

Gleichung 3.24 kann auf die Gleichung eines harmonischen Oszillators abgebildet werden. Als Lösungen ergeben sich die diskreten, äquidistanten Energieeigenwerte der so genannten Landauniveaus,

$$E_n = (n + \frac{1}{2})\hbar\omega_c \quad \text{mit} \quad n = 0, 1, 2, \dots, \quad (3.26)$$

in die sich die Energiesubbbänder des 2DEG unter Einfluss des Magnetfelds aufspalten. Wie in Abbildung 3.3 schematisch dargestellt, wird die kontinuierliche Energieparabel eines Subbands nun in diskrete Energiewerte quantisiert.

In einer Darstellung des Impulsraums sind die besetzten Zustände ohne äußeres Magnetfeld gleichmäßig auf die Fläche eines Kreises mit Radius k_F verteilt. Unter Einfluss eines Magnetfelds werden diese Zustände auf konzentrische Kreise zusammengezogen. Die im Nullfeld konstante Zustandsdichte des zweidimensionalen Systems spaltet nun im Magnetfeld in eine Reihe äquidistanter δ -Peaks auf, die an den Energiewerten der einzelnen Landauniveaus zentriert sind und einen energetischen Abstand von $\hbar\omega_c$ haben. Diese δ -funktionsartigen Landauniveaus enthalten ebenso viele Zustände, wie ursprünglich im Nullfeld in einem Energieintervall der Größe $\hbar\omega_c$ vorhanden waren. Bei aufgehobener Spinrentartung ergibt sich der auf eine Einheitsfläche normierte Entartungsgrad N_L zu

$$N_L = D_{2D}(E) \cdot \hbar\omega_c = \frac{eB}{h}. \quad (3.27)$$

Die Anzahl der mit Elektronen gefüllten Landauniveaus wird als Füllfaktor ν bezeichnet und ist bei aufgehobener Spinrentartung wie folgt definiert:

$$\nu = \frac{n_s}{N_L} = \frac{n_s h}{eB}. \quad (3.28)$$

Mit steigendem Magnetfeld nimmt sowohl der energetische Abstand zwischen den Landauniveaus als auch ihr Entartungsgrad zu, so dass sich die Anzahl der besetzten Landauniveaus schrittweise verringert. Da die Ladungsträgerdichte im 2DEG konstant ist, nimmt somit auch die Fermienergie idealer Systeme nur diskrete Werte an und verringert sich nach Entleeren eines Landauniveaus sprunghaft um $\hbar\omega_c$. In realen Systemen werden die Landauniveaus durch Streuprozesse an Kristalldefekten und Verunreinigungen zu Bändern verbreitert und die Zustandsdichte hat, wie in Abbildung 3.4 schematisch dargestellt, auch zwischen den Landauenergien E_n endliche Werte. In der Nähe der Maxima der Zustandsdichte befinden sich Zustände mit ausgedehnter Wellenfunktion, die somit zum Transport beitragen können. Dazwischen befinden sich Zustände mit einer stark lokalisierten Wellenfunktion. Diese tragen zwar nicht zum Transport bei, können aber sehr wohl die Fermienergie auf kontinuierlichen Werten zwischen den Eigenenergien E_n stabilisieren.

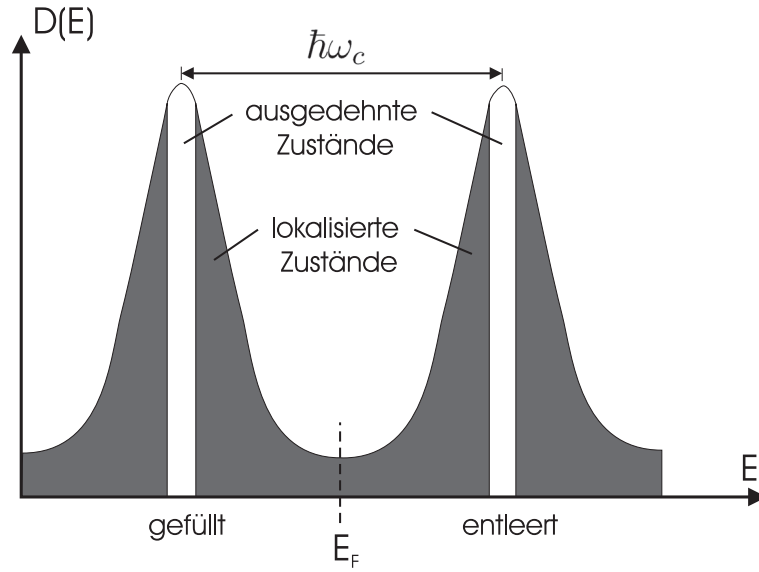


Abbildung 3.4. Durch Streuprozesse verbreiterte Landauniveaus: Ausgedehnte Zustände befinden sich an den Maxima der Zustandsdichte. Dazwischen kann das Fermi-niveau auf lokalisierten Zuständen stabilisiert werden.

Der elektronische Transport wird von den Elektronen an der Fermikante E_F getragen. Befindet sich E_F im Bereich der lokalisierten Zustände, sind keine freien ausgedehnten Zustände vorhanden, in welche die Elektronen streuen können. Aufgrund des tensoriellen Charakters von σ und ρ verschwindet mit der Leitfähigkeit σ_{xx} auch der Längswiderstand ρ_{xx} . Liegt die Fermienergie hingegen im Bereich der ausgedehnten Zustände, können sich die Elektronen frei bewegen und σ_{xx} nimmt ebenso wie ρ_{xx} endliche Werte an. Der Längswiderstand durchläuft also bei steigendem Magnetfeld periodisch Minima und Maxima, die so genannten Shubnikov-de Haas-Oszillationen (SdH-Oszillationen). Von einem Shubnikov-de Haas-Minimum zum nächsten ist gerade ein Landauniveau entleert worden und der Füllfaktor hat sich verringert. Bei kleineren Magnetfeldern kann jedoch die Aufhebung der Spinentartung nicht aufgelöst werden und es lassen sich nur halb so viele Minima beobachten wie Landauniveaus entleert werden. Für das i -te Minimum lässt sich Gleichung 3.28 umschreiben zu

$$n_s = \nu N_L = 2iN_L = 2i \frac{eB}{h} . \quad (3.29)$$

Aus der Änderung des Entartungsgrads mit dem Magnetfeld erhält man für zwei benachbarte SdH-Minima die Beziehung

$$\left(\frac{1}{B_{i+1}} - \frac{1}{B_i} \right) = \Delta \frac{1}{B} = \frac{e}{n_s h} . \quad (3.30)$$

B_i ist dabei der Magnetfeldwert des entsprechenden SdH-Minimums. Bei veränderlichem Magnetfeld sind also die Minima der Shubnikov-de Haas-Oszillationen periodisch in $1/B$.

3.5 Quanten-Hall-Effekt im Randkanalmodell

Der Quer- oder Hallwiderstand zeigt, wie eingangs erwähnt, ein anderes Verhalten. Überstreicht die Fermienergie Bereiche, die mit ausgedehnten Zuständen besiedelt sind, zeigt ρ_{xy} das Verhalten des klassischen Hall-Effekts und steigt linear in B . Bewegt sich die Fermienergie allerdings im Bereich lokalisierter Zustände, treten im Hallwiderstand Plateaus auf, die mit den SdH-Minima zusammenfallen. Wie kann nun Strom fließen, obwohl sich in der Probe nur lokalisierte Zustände am Fermienergielevel befinden? Die Antwort auf diese Frage liefert eine Betrachtung der Probenränder.

Für ein beliebiges Randpotential $U(y)$ findet man im Allgemeinen keine analytischen Lösungen der Schrödingergleichung 3.22. Der Effekt des Einschlusspotentials kann durch Störungsrechnung 1. Ordnung mit einbezogen werden. Die Energie der Elektronen wird dadurch zusätzlich von ihrem Impuls k abhängig. Zusammen mit der Zeeman-Aufspaltung im Magnetfeld findet man für die Energieeigenwerte der Elektronen

$$E_n^s(k) = (n + \frac{1}{2})\hbar\omega_c + \langle n, k | U(y) | n, k \rangle + g m_s \mu_B B, \quad (3.31)$$

mit der Spinquantenzahl m_s in z -Richtung und dem g -Faktor g der Elektronen im 2DEG. Der Einfluss des Randpotentials auf die Energiedispersion der Landauniveaus ist in Abbildung 3.5 für eine angenommene Breite W des Leiters skizziert. Während sich die Zustände im Inneren der Probe wie die Landauniveaus des unendlich ausgedehnten 2DEG verhalten, wird die Energiedispersion $E_n^s(k)$ am Rand des Leiters von der Form des Potentials $U(y)$ derart beeinflusst, dass so genannte Randzustände mit einer kontinuierlichen Energieverteilung entstehen. Die Landauniveaus werden zum Rand hin „aufgebogen“. Schneiden diese Randzustände die Fermienergie, kann Ladungstransport in quasi eindimensionalen Kanälen stattfinden. Die Anzahl der Randkanäle ist dabei gleich der Zahl der besetzten Landauniveaus unterhalb der Fermienergie.

Die Gruppengeschwindigkeit der Elektronen errechnet sich zu

$$v_n(k) = \frac{1}{\hbar} \frac{\partial E_n^s(k)}{\partial k} = \frac{1}{\hbar} \frac{\partial U(y_k)}{\partial k} = \frac{1}{\hbar} \frac{\partial U(y)}{\partial y} \frac{\partial y_k}{\partial k} = \frac{1}{eB} \frac{\partial U(y)}{\partial y} \quad [\text{Dat97}]. \quad (3.32)$$

Das Innere der Probe trägt keinen Nettostrom, da $U(y)$ hier konstant ist und somit $v_n(k)$ verschwindet. Die Zustände an gegenüberliegenden Rändern des Leiters tragen

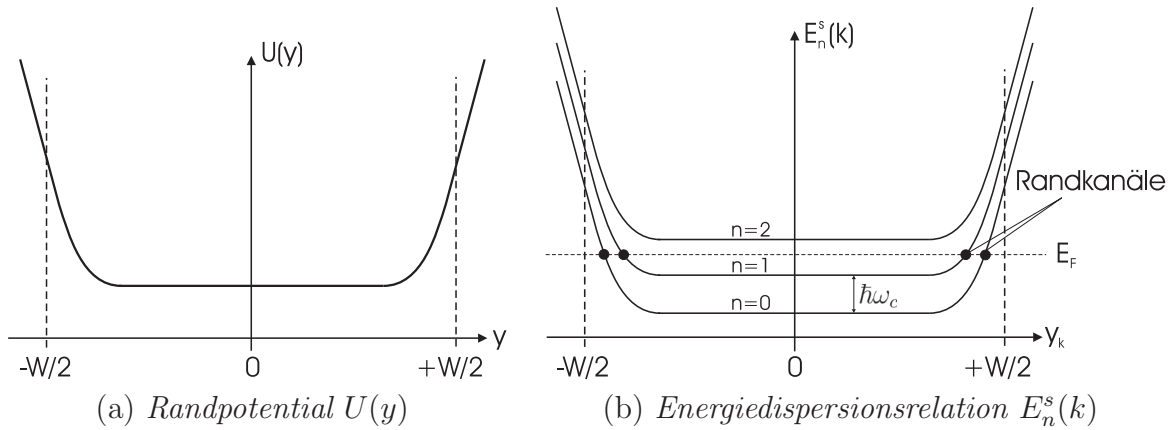


Abbildung 3.5. Energiedispersion $E_n^s(k)$ der Landauniveaus in einem 2DEG unter Berücksichtigung eines fast beliebigen Randpotentials $U(y)$ für einen Leiter der angenommenen Breite W . Zustände an den Schnittpunkten von $E_n^s(k)$ mit der Fermienergie E_F können zum Ladungstransport beitragen.

den Strom in entgegengesetzte Richtung, da die Steigung $\frac{\partial U(y)}{\partial y}$ jeweils ein unterschiedliches Vorzeichen besitzt. Durch die räumliche Trennung der positiven und negativen Impulszustände und dem damit verbundenen verschwindenden Überlapp der Wellenfunktionen der Elektronen mit entgegengesetztem Impuls wird ein Impulsübertrag zwischen den gegenüberliegenden Probenrändern vermieden. Die Wahrscheinlichkeit einer Rückstreuung ist damit verschwindend gering. Selbst bei Streuung an randnahen Defekten werden die Elektronen durch das starke Magnetfeld wieder in Vorwärtsrichtung gezwungen. Die Leitung der Elektronen in den Randkanälen erfolgt dadurch widerstandsfrei. Man kann die Randkanäle deshalb als quasi eindimensionale ballistische Leiter ansehen, deren Zustandsdichte durch

$$D_n^{(1)}(E) = \frac{1}{2\pi\hbar v_n(E)} \quad (3.33)$$

gegeben ist, wobei $v_n(E)$ die Gruppengeschwindigkeit der Elektronen in den Zuständen mit Energie $E_n(k)$ angibt.

Zwei Kontakte seien, wie in Abbildung 3.6(a) dargestellt, durch einen ballistischen Leiter bestehend aus n Randkanälen miteinander verbunden. Durch eine aufgeprägte Gleichspannung V hat der linke Kontakt ein elektrochemisches Potential μ_L , der rechte ein elektrochemisches Potential $\mu_R > \mu_L$. Zustände unterhalb von μ_L sind über die gesamte Probenbreite vollständig mit Elektronen besetzt und tragen nicht zum Nettostrom bei. Der Strom wird effektiv nur von Elektronen getragen, deren Energie zwischen μ_R und μ_L liegt (Abbildung 3.6(b)). Diese Zustände sind nur auf einer Seite

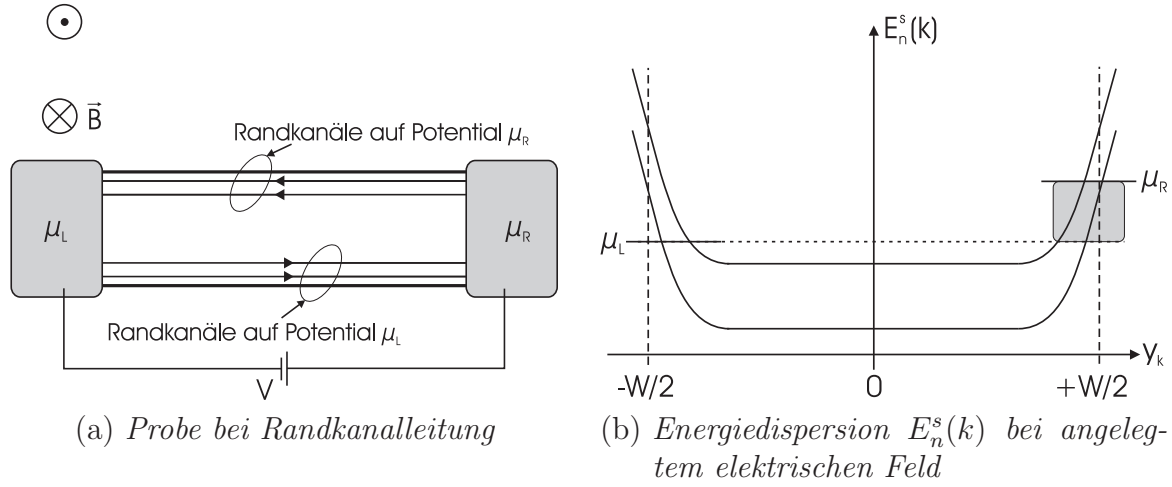


Abbildung 3.6. (a) Zwei Kontakte auf chemischem Potential μ_L und μ_R , verbunden mit einem ballistischen Leiter. Der Ladungstranport erfolgt ausschließlich in Randkanälen, hier bei Füllfaktor 2. Die Elektronen fließen in Pfeilrichtung. (b) Zum Stromfluss tragen effektiv nur Elektronen in Zuständen im schraffierten Bereich der Energiedispersion $E_n^s(k)$ zwischen μ_R und μ_L bei, die auf einer Seite des Leiters liegen.

des Leiters besetzt. Der Nettostrom durch die Probe ergibt sich zu

$$I = \sum_n \int_{\mu_L}^{\mu_R} e D_n^{(1)}(E) v_n(E) dE = \frac{e}{h} n (\mu_R - \mu_L). \quad (3.34)$$

Summiert wird über alle besetzten Landauniveaus, deren Zustände am Fermi-niveau die Randkanäle bilden. Der n -te Randkanal liefert bei aufgehobener Spinentartung einen Strombeitrag von

$$I_\nu = \frac{e}{h} (\mu_R - \mu_L) = \frac{e^2}{h} V. \quad (3.35)$$

Die Leitfähigkeit eines Randkanals

$$G = \frac{e^2}{h}, \quad (3.36)$$

ist damit quantisiert und nur durch Naturkonstanten bestimmt. Die vollständige Unterdrückung der Rückstreuung hat zur Konsequenz, dass jedem Rand des Leiters genau das Potential $\mu_{L/R}$ des Kontakts zugeordnet werden kann, aus dem die Randkanäle austreten. Somit verschwindet die Potentialdifferenz und damit die Längsspannung V_L zwischen zwei Abgriffen entlang der gleichen Seite der Probe. Misst man die Hallspannung V_H mittels zwei Potentialsonden auf gegenüberliegenden Seiten der Probe, so ist diese gleich der angelegten Spannung und man findet

$$V_H = \frac{1}{n} \frac{h}{e^2} I. \quad (3.37)$$

Die Anzahl der Randkanäle n ist gleich dem ganzzahligen Füllfaktor ν aus Gleichung 3.28 und der Hallwiderstand im Falle reiner Randkanalleitung gibt genau die Plateauwerte des Quanten-Hall-Effekts wieder:

$$R_H = \frac{1}{\nu} \frac{h}{e^2} = \frac{R_K}{\nu} .$$

Dabei ist $R_K = 25812,807 \, \Omega$ die Klitzing-Konstante und entspricht genau dem inversen Leitwert G^{-1} eines Randkanals.

Die in Abbildung 3.6(a) gezeigte Probengeometrie mit nur zwei Kontakten hat also trotz ballistischer Leitung einen endlichen Widerstand. Dieser tritt am Übergang der Elektronen zwischen den Kontakten und den Randkanälen auf, sofern der Nettostrom durch diese Kontakte von Null verschieden ist. Die Kontakte verfügen über viele transversale Moden, der ballistische Leiter jedoch nur über wenige. Die Elektronen müssen daher beim Übertritt von den Kontakten in die Randkanäle umorganisiert werden, was den Kontaktwiderstand verursacht.

3.6 Der Landauer-Büttiker-Formalismus

Erweitert man die Probengeometrie auf mehrere Kontakte, lässt sich der elektrische Transport im Randkanalbild sehr effektiv durch den Landauer-Büttiker-Formalismus beschreiben [Bue88].

Auf Grundlage der Stromerhaltung in einem räumlich begrenzten Leiter mit j Kontakten auf unterschiedlichen elektrochemischen Potentialen μ_k ($k = 1, 2, \dots, j$) wird der Transport von Elektronen durch Transmissions- und Reflexionswahrscheinlichkeiten ausgedrückt. Die Kontakte fungieren dabei als unendlich große Reservoirs, in denen die Elektronen ins thermische Gleichgewicht relaxieren. Einlaufende Elektronen werden nicht reflektiert, es existiert keine Kohärenz von ein- und auslaufenden Elektronen. Die Verteilung der Elektronen auf die verschiedenen Randkanäle soll gleichmäßig erfolgen. Da alle Kontakte äquivalent sind, besteht kein Unterschied zwischen Strom- und Spannungskontakten.

Im ballistischen Leiter wird der Strom von ν Randkanälen getragen, die aufgrund der endlichen Abmessungen des Systems entstehen, wenn die Fermienergie zwischen dem $(\nu+1)$ -ten und ν -ten Landauniveau liegt. Der Nettostrom I_i am i -ten Kontakt berechnet sich aus der Differenz von auslaufendem und zurücklaufendem Strom, wobei letzterer die Summe aller in den Kontakt einlaufenden und vom Kontakt in sich selbst reflek-

tierten Elektronen ist. Bei aufgehobener Spinentartung führt der Landauer-Büttiker-Formalismus zu folgender Ratengleichung:

$$I_i = \frac{e}{h} \left[(N_i - R_i) \mu_i - \sum_{j \neq i} T_{ji} \mu_j \right] \quad \text{mit } i, j = 1, \dots, 6. \quad (3.38)$$

Dabei gibt N_i die Zahl der am Kontakt i auftretenden Randkanäle an. R_i bezeichnet den Gesamtreflexionskoeffizienten am Kontakt i , der beschreibt, welcher Anteil des von Kontakt i austretenden Stroms wieder dorthin zurück reflektiert wird. Ebenso beschreibt T_{ji} die Wahrscheinlichkeit, dass der am Kontakt i eintretende Strom am Kontakt j austritt. Das am Kontakt i herrschende elektrochemische Potential wird mit μ_i bezeichnet. Die Transmissionswahrscheinlichkeit T_{ji} setzt sich aus den Transmissionswahrscheinlichkeiten T_{ji}^{mn} zwischen den einzelnen Randkanälen wie folgt zusammen:

$$T_{ji} = \sum_{m,n}^{N_j, N_i} T_{ji}^{mn}. \quad (3.39)$$

T_{ji}^{mn} gibt die Wahrscheinlichkeit an, dass der am Kontakt i in den Randkanal n injizierte Strom am Kontakt j aus dem Randkanal m austritt. Summiert wird dabei über alle Randkanäle m und n , die in den Kontakten enden. In ähnlicher Weise folgt für den Gesamtreflexionskoeffizienten R_i

$$R_i = \sum_{m,n}^{N_j, N_i} R_i^{mn}. \quad (3.40)$$

Aufgrund der Stromerhaltung gelten außerdem folgende Nebenbedingungen:

$$R_i + \sum_{j \neq i}^{N_i} T_{ji} = N_i, \quad (3.41)$$

$$\sum_i I_i = 0. \quad (3.42)$$

Mit diesen Gleichungen lässt sich ein System vollständig beschreiben.

Im Folgenden soll der Landauer-Büttiker-Formalismus auf einen ballistischen Leiter mit ν Randkanälen in einer Kontakt-Geometrie nach Abbildung 3.7 Anwendung finden. Diese so genannte Hallbar-Geometrie besteht aus dem aus Abbildung 3.6(a) bereits bekannten Strompfad, der zusätzlich mit zwei Paaren aus gegenüberliegenden Kontakten zum Abgriff von Längs- und Hallspannung versehen ist. Da sich die Besetzung der Randkanäle im vorliegenden Beispiel im Gleichgewicht befindet, können Übergänge

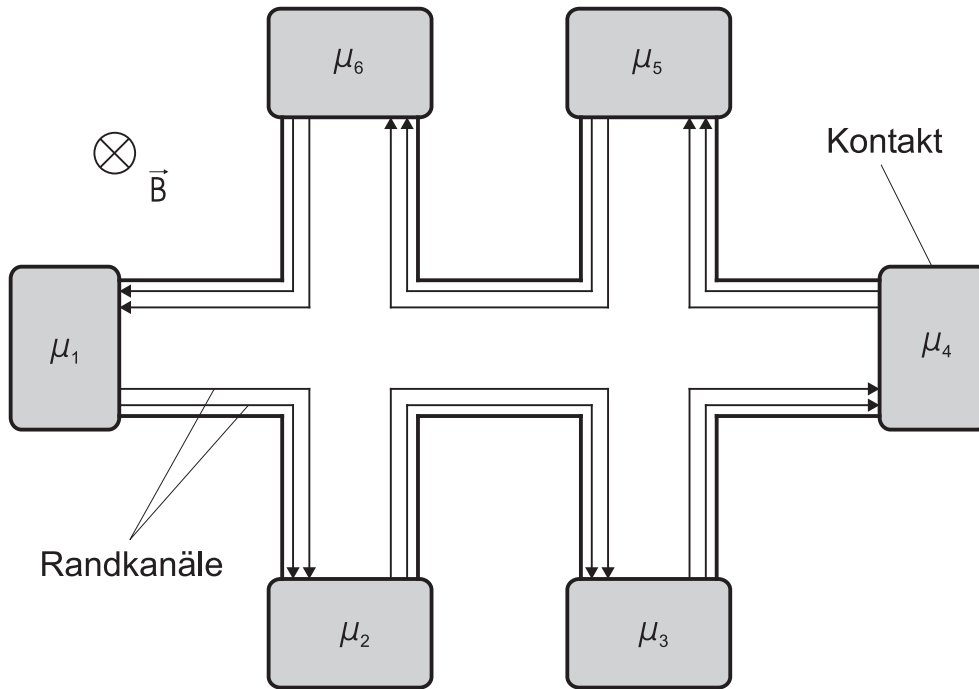


Abbildung 3.7. Ballistischer Leiter in einer für Transportmessungen gebräuchlichen Hallbar-Geometrie mit 6 identischen Kontakten auf elektrochemischem Potential μ_i . Die Pfeile geben die Flussrichtung der Elektronen in exemplarisch dargestellten Randkanälen an. Der Strompfad verläuft von Kontakt 1 nach Kontakt 4. Die Längsspannung kann stromlos an Kontakten auf einer Seite des Hallbar gemessen werden. Die Hallspannung wird an gegenüberliegenden Kontakten abgegriffen.

zwischen verschiedenen Randkanälen $m \neq n$ vernachlässigt werden. Die Rückstreuung wird im quasi eindimensionalen ballistischen Leiter unterdrückt. Somit gilt

$$R_i^{mn} = 0 \quad \forall \quad m, n, \quad (3.43)$$

$$T_{ji}^{mn} = \begin{cases} 1 & \text{für } m = n \\ 0 & \text{für } m \neq n \end{cases}. \quad (3.44)$$

Man kann zusätzlich davon ausgehen, dass jeder Randkanal, der Kontakt $i - 1$ verlässt, in Kontakt i ankommt und somit $N_i = \nu$ für alle i gilt. Für die Elemente R_i und T_{ji} des Reflexions- und Transmissionstensors gilt bei der angedeuteten Richtung des Magnetfelds

$$T_{16} = T_{jj-1} = N_j = \nu, \quad (3.45)$$

$$T_{ji} = 0 \quad \text{sonst}, \quad (3.46)$$

$$R_i = 0. \quad (3.47)$$

Aus Gleichung 3.38 resultiert folgende Matrixgleichung:

$$\begin{pmatrix} I_1 \\ I_2 \\ I_3 \\ I_4 \\ I_5 \\ I_6 \end{pmatrix} = \frac{e\nu}{h} \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & -1 \\ -1 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & -1 & 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -1 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -1 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -1 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \mu_1 \\ \mu_2 \\ \mu_3 \\ \mu_4 \\ \mu_5 \\ \mu_6 \end{pmatrix}. \quad (3.48)$$

Setzt man ideale Spannungsmessgeräte voraus, erfolgt der Potentialabgriff an den Kontakten 2, 3, 5 und 6 stromlos, da sich ein- und ausfließende Ströme zu einem verschwindenden Nettostrom addieren. Damit werden $I_2 = I_3 = 0$ und $I_5 = I_6 = 0$. Für die Potentiale an den Kontakten ergibt sich aus Gleichungssystem 3.48 das bereits aus Kapitel 3.5 bekannte Ergebnis:

$$\mu_1 = \mu_2 = \mu_3 \quad \text{und} \quad \mu_4 = \mu_5 = \mu_6. \quad (3.49)$$

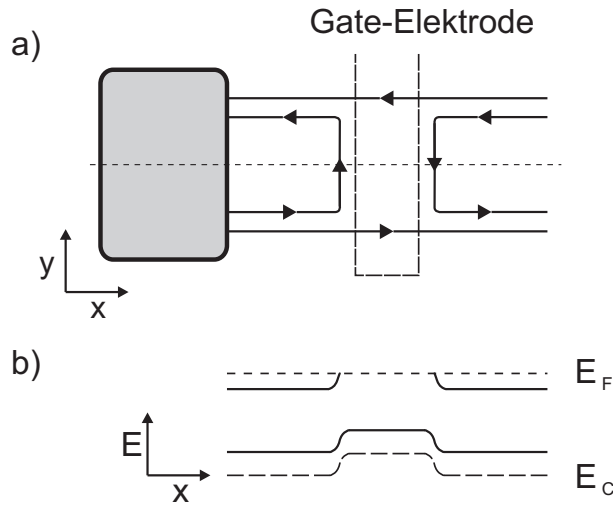
Das Potential bleibt längs einer Seite der Probe unverändert. Elektronen, die aus Kontakt 1 in den ballistischen Leiter mit dem Potential μ_1 injiziert werden, behalten dieses entlang des gesamten Kanals, bis sie am Kontakt 4 austreten. Fließt der Strom von Kontakt 1 nach Kontakt 4, gilt für die stromführenden Kontakte $I_4 = -I_1 = I = \frac{e\nu}{h}(\mu_1 - \mu_6)$. Verwendet man für den Abgriff der Hallspannung die Kontakte 2 und 6, misst man die Spannungsdifferenz $V_{26} = V_6 - V_2 = V_H$. Zusammen mit $I_2 = \frac{e\nu}{h}(\mu_2 - \mu_1) = 0$ und Gleichung 3.49 findet man für den Hallwiderstand

$$R_H = \frac{V_H}{I} = \frac{\mu_6 - \mu_2}{eI} = \frac{h}{e^2\nu}. \quad (3.50)$$

Bestimmt man die Längsspannung aus der Potentialdifferenz zwischen Kontakt 2 und 3 oder Kontakt 5 und 6, liefert der Landauer-Büttiker-Formalismus wegen $I_2 = I_3 = 0$ und $I_5 = I_6 = 0$ implizit das Verschwinden des Längswiderstands bei reiner Randkanalleitung. Liegt also die Fermienergie genau zwischen zwei Landauniveaus, lassen sich durch den Landauer-Büttiker-Formalismus die Plateauwerte des Quanten-Hall-Effekts und gleichzeitig die Minima der SdH-Oszillationen ableiten.

Nicht ideale Kontakte

Im Randkanalbild mit quasi-eindimensionalen Leitern und idealen Kontakten liefert der Landauer-Büttiker-Formalismus den Quanten-Hall-Effekt als Konsequenz der unterdrückten Rückstreuung [Hau93]. In realen Proben finden sich oft auch nicht ideale

**Abbildung 3.8.**

(a) Simulation eines nicht idealen Kontakts durch eine Gate-Elektrode über einem ballistischen Leiter, exemplarisch für einen Füllfaktor $\nu = 2$ in der Probe und einem Füllfaktor $\nu_g = 1$ unter der Gate-Elektrode.

(b) Energiediagramm entlang der Mitte des Leiters (gestrichelte Linie in (a)) bei negativer Gatespannung (nach [Hau93]).

Kontakte, an denen ein Teil des Stroms reflektiert wird. Der Einfluss nicht idealer Kontakte auf den QHE kann im Experiment reproduzierbar durch lithographisch strukturierte Gate-Elektroden über dem Strompfad oder über ausgewählten Potentialabgriffen realisiert werden. Im Bereich unter der Gate-Elektrode wird durch eine angelegte, negative Gatespannung ein elektrisches Feld erzeugt, wodurch das 2DEG gezielt verarmt wird. Somit können nur noch $\nu_g < \nu$ Randkanäle den Strom unter dem Gate hindurch leiten, $\nu - \nu_g$ Randkanäle werden an der so geschaffenen Potentialbarriere reflektiert. Dies ist schematisch in Abbildung 3.8 dargestellt. Mit einer geeigneten Anordnung von Elektroden und einer entsprechenden Wahl der angelegten Spannung können somit ausgewählte Randkanäle gezielt befüllt und vermessen werden [vWe89].

Befindet sich die Gate-Elektrode über einem der Potentialabgriffe, simuliert dies einen nicht idealen Spannungskontakt. Wie sich durch einfache Algebra an einem leicht modifizierten Gleichungssystem 3.48 zeigen lässt, wird dadurch der QHE nicht beeinflusst. Verändert man jedoch den Füllfaktor unter einer Elektrode, die sich über dem Strompfad oder direkt vor einem Stromkontakt befindet, wird der reflektierte Randkanal an den gegenüberliegenden Probenrand geleitet - es findet Rückstreuung statt. Während der Hallwiderstand die gewohnten Werte nach Gleichung 3.50 annimmt, setzt sich der Längswiderstand über die Barriere aus dem Hallwiderstand und dem Zweipunkt-widerstand des Strompfads $\frac{h}{e^2\nu_g}$ zusammen [Hau93]. Man findet

$$R = \frac{h}{e^2} \left(\frac{1}{\nu_g} - \frac{1}{\nu} \right). \quad (3.51)$$

Durch den kombinierten Einsatz mehrerer Gate-Elektroden kann ein System mit einem nicht idealen Strom- und einem benachbarten, nicht idealen Spannungskontakt modelliert werden. Für ein anschauliches Beispiel anhand Abbildung 3.7 sei Kontakt 1 der

nicht ideale Stromkontakt und Kontakt 2 der nicht ideale Spannungskontakt. Durch die gewählte Richtung des Magnetfelds soll der Strom entgegen dem Uhrzeigersinn fließen.

Injiziert man den Strom durch Kontakt 1 und verwendet man die Kontakte 2 und 6 zum Abgriff der Hallspannung, nimmt der Hallwiderstand nicht länger Werte abhängig vom Füllfaktor ν der ungestörten Probe an. Die gemessenen Widerstandswerte $R_H(B)$ der entsprechenden Hallplateaus bei Füllfaktor $\nu(B)$ sind deutlich höher und hängen nun vom Füllfaktor ν_g im Material unter den Gate-Elektroden ab. Dreht man hingegen die Richtung des Magnetfelds und somit den Umlaufsinn des Stroms um, zeigt das System den regulären Quanten-Hall-Effekt unabhängig von den Barrieren [Alp90, Bee91].

Die Ursache dieses Verhaltens liegt in einer ungleichen Verteilung des Stroms auf die Randkanäle bei Injektion durch den nicht idealen Stromkontakt. Höherindizierte Randkanäle werden dadurch nur unvollständig oder gar nicht besetzt. Wird dieses Ungleichgewicht durch einen nicht idealen Potentialabgriff detektiert, bevor eine Equilibrierung der Stromverteilung eintritt, wird die Leitfähigkeit der durch die Barrieren in ihrer Transmission verringerten Randkanäle bei der Messung nicht in vollem Umfang berücksichtigt. Das Ergebnis weicht daher deutlich von einer Quanten-Hall-Messung im Gleichgewichtsfall ab. Erst wenn sich der Strom wieder zu gleichen Teilen auf alle Randkanäle verteilt, wird die Messung nicht mehr von den Gate-Elektroden beeinflusst. Eine Equilibrierung erfolgt zum einen in einem idealen Kontakt, zum anderen, falls bei genügend großer Distanz zwischen den Kontakten Streuprozesse zwischen Randkanälen stattfinden.

3.6.1 Equilibrierung zwischen benachbarten Randkanälen

Durch den Einsatz von Elektroden ist es gelungen, einen Strom selektiv auf einzelne Randkanäle eines ballistischen Leiters aufzuprägen und ausgewählte Randkanäle zu detektieren. Bei geeigneter Wahl von Magnetfeld und Gate-Spannung wird ein Ungleichgewicht in der Besetzung der Randkanäle hervorgerufen, das über makroskopische Distanzen aufrecht erhalten werden kann [Svo92]. Eine Equilibrierung der Stromverteilung durch Streuung zwischen den Randkanälen wird bei hohen Magnetfeldern weitgehend unterdrückt [Mar90]. Der energetische und damit auch räumliche Abstand spinentarteter Randkanäle ist in diesem Fall groß gegen die magnetische Länge l_B . Der Überlapp der Wellenfunktionen von Elektronen in unterschiedlichen Landauniveaus ist verschwindend gering.

Für die beiden spinpolarisierten Randkanäle desselben Zeeman-aufgespaltenen Landau-niveaus liegt eine andere Situation vor. Die Energie der Zeeman-Aufspaltung ist deutlich kleiner als $\hbar\omega_c$ und der räumliche Abstand der beiden Spinkanäle nur ein Bruchteil der

magnetischen Länge. Der räumliche Überlapp der Wellenfunktionen von Spin-up- und Spin-down-Kanal ist groß und eine Streuung zwischen den Spinkanälen wahrscheinlich. Darüber hinaus erfährt die Intra-Landau-Streuung, im Gegensatz zu Streuprozessen zwischen verschiedenen Landauniveaus, keine exponentielle Unterdrückung bei hohen Magnetfeldern [Mar90]. Der entscheidende Unterschied aber ist, dass der Übergang eines Elektrons von einem Spinkanal in den anderen zusätzlich mit einem Spin-Umklapp oder Spin-Flip-Prozess einher geht.

Der bestimmende Mechanismus der Spin-Flip-Streuung ist die Spin-Bahn-Wechselwirkung. Die Abwesenheit eines Inversionszentrums in der Einheitszelle von GaAs sowie die Brechung der Inversionssymmetrie senkrecht zur Grenzfläche des GaAs/ $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Heteroübergangs führen zu der relativistischen Wechselwirkung zwischen der Translationsbewegung der Elektronen und ihrem Spin [Kha92]. Bei Impulsänderung eines Elektrons in einem Randkanal während eines Streuprozesses ist dadurch die Möglichkeit eines Spin-Flip gegeben.

Experimentelle Untersuchungen bestätigen den großen Unterschied der charakteristischen Equilibrierungslängen für Inter- und Intra-Landauniveau-Streuung. Für Streuung zwischen zwei Randkanälen verschiedener Landauniveaus wurden Equilibrierungslängen im Millimeterbereich ermittelt [Svo92]. Bei der Spin-Flip-Streuung zwischen Randkanälen eines Zeeman-aufgespaltenen Landauniveaus erreicht die charakteristische Equilibrierungslänge Werte zwischen $100\,\mu\text{m}$ und $1\,\text{mm}$ [Svo92, Mül92].

Kapitel 4

Magnetische Eigenschaften von $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$

Übergangsmetalle werden dadurch charakterisiert, dass die d -Schale ihrer Ionen nur teilweise besetzt ist und sie deshalb ein magnetisches Moment besitzen. Ersetzt man in binären Halbleitermaterialien das Kation durch einen Anteil x von Übergangsmetallionen, so bezeichnet man die entstehenden ternären Verbindungen als *semimagnetische* oder *verdünnte magnetische Halbleiter* (DMS, von engl. **d**iluted **m**agnetic **s**emiconductors). Mangan besitzt die Elektronenkonfiguration $[\text{Ar}]4s^23d^5$. Da die d -Schale der Mn^{++} -Ionen gerade halb gefüllt ist, besitzt Mangan von allen $3d$ -Übergangsmetallen das höchste magnetische Moment $S = 5/2$. Der Einbau von Mangan in den II-VI-Halbleiter ZnSe erfolgt auf den Plätzen des Zink-Atoms. Mangan wird isoelektronisch in II-VI-Halbleiter eingebaut, da es seine $4s^2$ -Elektronen für die sp^3 -Hybridorbitale der chemischen Bindung zur Verfügung stellt, während die fünf $3d$ -Elektronen stark am Mn^{++} -Ion lokalisiert sind und nicht zur gemeinsamen Bandstruktur beitragen. Die elektronischen Eigenschaften der Mn-haltigen II-VI-Halbleiter können deshalb durch geeignete Dotierung stark variiert werden, während die magnetischen Eigenschaften hauptsächlich durch den Mangangehalt bestimmt werden.

Ein großer Vorteil der Mn-haltigen II-VI-Halbleiter besteht deshalb darin, dass ihre magnetischen Eigenschaften durch den Mn-Gehalt gezielt beeinflusst werden können, ohne ihre durch die Wahl der Dotierung bestimmten elektronischen Eigenschaften zu beeinträchtigen.

Bei geringen Mangankonzentrationen x bilden die Mn^{++} -Ionen lokalisierte magnetische Momente, die in einem äußeren Magnetfeld ausgerichtet werden und so das paramagnetische Verhalten der DMS bedingen. Bei steigendem Mangananteil führt eine an-

tiferromagnetische Kopplung der Mn^{++} -Ionen untereinander zu einem geringeren Anstieg der Magnetisierung mit x . Durch eine Austauschwechselwirkung zwischen den Bandladungsträgern und den lokalisierten $3d^5$ -Elektronen der Manganionen wird die Bandstruktur von der Magnetisierung des DMS nachhaltig beeinflusst. Gerade hieraus resultieren die für Spininjektionsexperimente so interessanten Eigenschaften der semimagnetischen Halbleiter: Eine große Zeeman-Aufspaltung der Bänder und eine damit einhergehende starke Spinpolarisation der Ladungsträger.

Von wachsendem Interesse sind in jüngerer Zeit Mn-haltige III-V-Halbleiter wie GaMnAs oder InMnAs, die ferromagnetisches Verhalten zeigen. Sie vereinen damit die Vorteile einer remanenten Magnetisierung mit den elektronischen Eigenschaften von Halbleitern. Hierdurch scheinen diese Materialien für Anwendungen in der Spintronik besonders geeignet. Es werden deshalb große Anstrengungen unternommen, die magnetische Anisotropie zu kontrollieren und die Curie-Temperatur von derzeit $T_C = 170\text{ K}$ in GaMnAs ([Tan05]) auf Raumtemperatur zu erhöhen. Da Mangan in III-V-Halbleitern als Akzeptor wirkt, ist es nur schwer möglich, die magnetischen und elektronischen Eigenschaften dieser Verbindungen getrennt zu optimieren.

4.1 Das Mn^{++} -Ion und seine $3d^5$ -Schale

Das Übergangsmetall Mangan verfügt über die Elektronenkonfiguration $[\text{Ar}]4s^23d^5$. Im Wirtsmaterial ZnSe ersetzt Mn das Kation. Es trägt seine $4s^2$ -Elektronen zum sp^3 -Bindungsorbital bei und wird dadurch isoelektronisch eingebaut. Die $3d$ -Elektronen des Mangan sind stark bei den Ionenrümpfen lokalisiert und tragen nicht zur Bindung bei. Mit fünf Elektronen ist die $3d$ -Schale der Mn^{++} -Ionen genau halb gefüllt. Nach der Hund'schen Regel (z.B. [Kit99]) besitzen diese Elektronen deshalb parallelen Spin und bilden so ein ${}^6S_{5/2}$ -Multiplett mit Bahndrehimpuls $L = 0$, Gesamtspin $S = 5/2$ und somit einem Gesamtdrehimpuls $J = 5/2$. Aufgrund des verschwindenden Bahndrehimpulses haben die $3d$ -Elektronen des Mangan einen Landé-Faktor von $g_{Mn} \simeq 2$.

Die bevorzugte Wahl von Mangan als Substituend in verdünnten magnetischen Halbleitern liegt nicht nur an seinem hohen magnetischen Moment. Die Konfiguration der genau halb gefüllten $3d$ -Schale des Mangan ist energetisch überaus günstig und ähnelt dadurch stark den komplett gefüllten d -Schalen der Gruppe-II-Elemente [Fur88a]. Dadurch lässt sich Mangan wie kein anderes Übergangsmetall in II-VI-Halbleiter integrieren und es lassen sich ternäre Verbindungen mit einem Mangangehalt von bis zu 57% in $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ bzw. 75% in $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ herstellen.

4.2 Die Magnetisierung von $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$

Im Folgenden wird nun eine Übersicht über die die Eigenschaften von $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ in einem äußeren Magnetfeld gegeben. Für kleine Mangankonzentrationen ($x < 0,01$) kann davon ausgegangen werden, dass die Mn^{++} -Ionen nicht untereinander wechselwirken und somit isolierte magnetische Momente mit $S = 5/2$ darstellen. Die Magnetisierung M ist dann durch die paramagnetische Ausrichtung des Mangan-Subsystems entlang einem äußeren Magnetfeld gegeben und wird durch eine Brillouinfunktion beschrieben [Fur88a]. Wählt man das magnetische Feld B entlang der z -Achse, erhält man

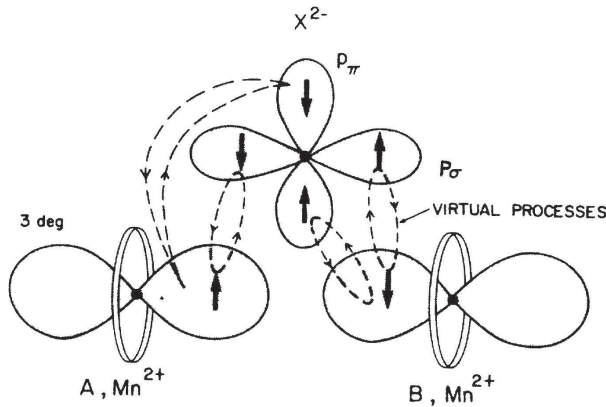
$$M = -x N_0 g_{Mn} \mu_B \langle S_z \rangle \quad \text{mit} \quad \langle S_z \rangle = -S \mathcal{B}_S \left(\frac{g_{Mn} \mu_B S B}{k_B T} \right). \quad (4.1)$$

Dabei ist x der Anteil von Manganionen an der Kationenanzahl N_0 pro Volumeneinheit, μ_B das Bohr'sche Magneton. Die $3d$ -Elektronen eines Manganions haben den Gesamtspin $S = 5/2$ und einen Landé-Faktor von $g_{Mn} \simeq 2$. Die Komponente des mittleren Manganspins in Magnetfeldrichtung $\langle S_z \rangle$ ist definiert über die Brillouinfunktion

$$\mathcal{B}_S(y) = \frac{2S+1}{2S} \coth \left(\frac{2S+1}{2S} y \right) - \frac{1}{2S} \coth \left(\frac{y}{2S} \right). \quad (4.2)$$

Bei einem höheren Mangangehalt lassen sich experimentelle Ergebnisse nicht mehr mit Gleichung 4.1 beschreiben. Der mittlere Abstand der Manganionen ist soweit reduziert, dass Wechselwirkungen zwischen benachbarten Manganionen berücksichtigt werden müssen. Neben der vernachlässigbar kleinen magnetischen Dipol-Dipol-Wechselwirkung dominiert hier die *d-d-Austauschwechselwirkung*. Dabei kommt eine indirekte Kopplung der Spins der $3d$ -Elektronen benachbarter Manganionen zustande, die über eine Hybridisierung der d -Orbitale der Mn^{++} -Ionen mit den p -Orbitalen des Anions vermittelt wird. Dieser Mn^{++} - Mn^{++} -Superaustausch ist antiferromagnetisch und führt deshalb zur antiparallelen Ausrichtung benachbarter Mn-Spins [Lar88]. Mit steigendem Mangangehalt bildet ein zunehmender Anteil der Mn^{++} -Ionen Paare oder Cluster mit antiparalleler Spinorientierung. Dadurch kommt es im Kristall zu Bereichen, die nicht zum magnetischen Moment beitragen, wodurch sich die mittlere Spinkomponente $\langle S_z \rangle$ reduziert.

Um dem Einfluss dieses Effekts auf die Magnetisierung semimagnetischer Halbleiter Rechnung zu tragen, werden die phänomenologischen Parameter $S_{eff}(x)$ und $T_{eff}(x)$ in Gleichung 4.1 eingeführt. Der effektive Spin $S_{eff}(x)$ berücksichtigt die Bildung antiferromagnetischer Cluster durch einen gegenüber isolierten Mn^{++} -Ionen ($S = 5/2$) reduzierten Sättigungswert des magnetischen Moments ($S_{eff}(x) \leq S$). Dies ist ver-

**Abbildung 4.1.**

Schematische Darstellung der antiferromagnetischen Austauschkopplung zwischen d-Orbitalen benachbarter Mn^{++} -Ionen über die vollbesetzten p-Orbitale des verbindenden Anions (aus [Spa86]).

gleichbar mit der Angabe einer effektiven Mangankonzentration $x_{eff} \leq x$ [Wes98]:

$$x S_{eff}(x) = \frac{5}{2} x_{eff} . \quad (4.3)$$

Die effektive Temperatur $T_{eff}(x)$ berücksichtigt, dass auch die isolierten, nicht clusternen Mn^{++} -Ionen einer antiferromagnetischen Wechselwirkung unterworfen sind. Diese Wechselwirkung ist von größerer Reichweite und wird durch eine antiferromagnetische Temperatur $T_0(x)$ ausgedrückt [Gaj79]. Auch sie nimmt mit steigender Mangankonzentration zu. Die effektive Temperatur $T_{eff}(x)$ ist somit wegen $T_{eff}(x) = T + T_0(x)$ größer als die tatsächliche Temperatur T des Mangansystems. Durch die derart modifizierte Brillouinfunktion \mathcal{B}_S lässt sich nun die Magnetisierung der verbleibenden, nicht clusternen Mn^{++} -Ionen beschreiben:

$$M = x N_0 g_{Mn} \mu_B S_{eff}(x) \mathcal{B}_S \left(\frac{g_{Mn} \mu_B S B}{k_B (T_{eff}(x))} \right) . \quad (4.4)$$

Die Zunahme der Magnetisierung mit steigendem Mangangehalt erfährt durch den gleichzeitig immer stärker werdenden Einfluss des Mn^{++} - Mn^{++} -Superaustausches eine Einschränkung. Für die meisten spintronischen Anwendungen von $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ wird deshalb ein moderater Mangangehalt von 3 – 8 % gewählt.

4.3 *sp-d*-Austauschwechselwirkung

Die für die Spinelektronik interessanteste Eigenschaft der semimagnetischen Halbleiter ist die Spin-Spin Austauschwechselwirkung zwischen den *s*- oder *p*-artigen Bandelektronen und den lokalisierten $3d^5$ -Elektronen der Mn^{++} -Ionen. Die *sp-d-Austauschwechselwirkung* bestimmt maßgeblich die Bandstruktur der DMS im äußeren magnetischen Feld und somit die Magnetotransport- und magnetooptischen Eigenschaften der verdünnten magnetischen Halbleiter.

Wirkt ein äußeres Magnetfeld auf einen nichtmagnetischen Halbleiter, so werden Leitungs- und Valenzband in Landauniveaus aufgespalten, die wiederum durch den Zeeman-Effekt in zwei Spinsubbänder aufgespalten werden. Die Energieniveaus dieser „Landau-Leitern“ des Kristalls werden in einem Hamilton-Operator \mathcal{H}_0 beschrieben. Enthält der Halbleiter, wie im Falle von $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$, lokalisierte magnetische Momente, lässt sich der Einfluss der *sp-d*-Austauschwechselwirkung auf die Bandstruktur durch den Austausch-Operator \mathcal{H}_{ex} ausdrücken:

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_{ex} = \mathcal{H}_0 + \sum_{\mathbf{R}_i} J^{sp-d}(\mathbf{r} - \mathbf{R}_i) \mathbf{S}_i \cdot \boldsymbol{\sigma} . \quad (4.5)$$

Dabei sind \mathbf{S}_i und $\boldsymbol{\sigma}$ die Spinoperatoren des Mn^{++} -Ions bzw. des Bandelektrons, \mathbf{R}_i und \mathbf{r} sind die jeweiligen Ortskoordinaten. J^{sp-d} ist die Elektron-Ion *sp-d*-Austauschkonstante. Die Summe wird ausschließlich über die mit Mn^{++} -Ionen besetzten Gitterplätze gebildet. \mathcal{H}_{ex} kann durch zwei Näherungen weiter vereinfacht werden. Die Wellenfunktionen der Elektronen können als ausgedehnt betrachtet werden. Dadurch tritt ein einzelnes Elektron in Wechselwirkung mit einer Vielzahl von lokalisierten Manganionen. Im Rahmen der Molekularfeldnäherung können deshalb die einzelnen Spinoperatoren \mathbf{S}_i der Mn^{++} -Ionen durch das thermische Mittel $\langle \mathbf{S}_i \rangle$ ersetzt werden. Wird ein homogenes äußeres Magnetfeld $\mathbf{B} = (0, 0, B)$ parallel zur z -Achse angenommen, ist für paramagnetische Systeme $\langle \mathbf{S}_i \rangle = \langle S_z \rangle$ und $\sigma = \sigma_z$. Die Summation über die von Mn^{++} -Ionen besetzten Gitterplätze \mathbf{R}_i kann man ersetzen durch eine Summe über alle Gitterplätze \mathbf{R} des fcc-Kationuntergitters, gewichtet mit dem Anteil x an Mn^{++} -Ionen. Der Austausch-Operator lässt sich nun innerhalb der Kristallsymmetrie behandeln und lautet

$$\mathcal{H}_{ex} = \sigma_z \langle S_z \rangle x \sum_{\mathbf{R}} J^{sp-d}(\mathbf{r} - \mathbf{R}) . \quad (4.6)$$

Gleichung 4.6 hat die Periodizität des Kristallgitters. Somit lösen die Wellenfunktionen, die \mathcal{H}_0 diagonalisieren, auch die Eigenwertgleichung mit dem Hamilton-Operator \mathcal{H} (Gleichung 4.5). Unter Annahme eines parabolischen Bandverlaufs ergeben sich die Energieeigenwerte für ein Γ_6 -Leitungsbandelektron im l -ten Landauniveau zu

$$E_l^{\uparrow\downarrow} = \underbrace{E_g + (l + \frac{1}{2})\hbar\omega_c}_{\mathcal{H}_0} \pm \underbrace{(\frac{1}{2}g^*\mu_B B - \frac{1}{2}N_0\alpha x\langle S_z \rangle)}_{\mathcal{H}_{ex}} . \quad (4.7)$$

Dabei bezeichnet E_g die Höhe der Bandlücke, der Ausdruck $(l + \frac{1}{2})\hbar\omega_c$ mit der Zyklotronfrequenz ω_c stellt die Landauniveaus und $\pm \frac{1}{2}g^*\mu_B B$ die intrinsische Zeeman-

Energie der Leitungsbandelektronen dar. Der Proportionalitätsfaktor g^* ist der intrinsische g-Faktor der Leitungsbandelektronen und ist bestimmt durch die Kopplung von Bahndrehimpulsen und Spins. Die Lösungen des Austauschoperators \mathcal{H}_{ex} bilden die Terme $\pm \frac{1}{2} N_0 \alpha x \langle S_z \rangle$ mit dem Austauschintegral α der s-artigen Γ_6 Elektronen.

Sowohl der Zeeman- als auch der Austauschterm beschreiben die Antwort der Leitungsbandelektronen auf ein äußeres Magnetfeld. Man kann deshalb beide Energien unter Einführung eines effektiven g-Faktors zusammenfassen und den Formalismus einer Zeeman-Energie beibehalten:

$$E_l^{\uparrow\downarrow} = E_g + (l + \frac{1}{2}) \hbar \omega_c \pm \frac{1}{2} g_{eff} \mu_B B . \quad (4.8)$$

Der effektive g-Faktor ist dann gegeben durch

$$g_{eff} = g^* + g_{sp-d} = g^* - \frac{N_0 \alpha x \langle S_z \rangle}{\mu_B B} = g^* + \alpha \frac{M}{g_{Mn} \mu_B^2 B} . \quad (4.9)$$

Mit Gleichung 4.1 lässt sich g_{eff} mit der Magnetisierung des Materials verknüpfen. Damit wird g_{eff} nun auch vom externen Magnetfeld und der Temperatur abhängig. Bei tiefen Temperaturen und hohen Magnetfeldern ist der Anteil g_{sp-d} mit Werten über 100 gegenüber dem normalen g-Faktor ($g^* \approx 2$ für freie Elektronen) dominant. In verdünnten magnetischen Halbleitern großer Bandlücke ist also die durch die $sp-d$ -Austauschwechselwirkung \mathcal{H}_{ex} vermittelte Aufspaltung der Energieniveaus viel größer als die Landau- und die intrinsische Zeeman-Aufspaltung aus \mathcal{H}_0 . In guter Näherung kann man daher Terme mit $\hbar \omega_c$ und g^* vernachlässigen und die Aufspaltung der Energieniveaus ganz aus den Eigenwerten des Austauschoperators \mathcal{H}_{ex} bestimmen. Die Energieverschiebung der Leitungs- und Valenzbandkanten im Magnetfeld erhält man so für verschiedene Spinorientierungen aus folgenden Gleichungen [Koe99]:

$$E_{LB} = N_0 \alpha x \langle S_z \rangle m_s \quad m_s = \pm \frac{1}{2} , \quad (4.10)$$

$$E_{VB} = \frac{1}{3} N_0 \beta x \langle S_z \rangle m_j \quad m_j = \pm \frac{1}{2}, \pm \frac{3}{2} . \quad (4.11)$$

β ist das Austauschintegral der p -artigen Γ_8 Elektronen. Die Variablen m_s und m_j sind die jeweiligen Drehimpulsquantenzahlen der Elektronen und Löcher für die Spinprojektion entlang der z-Achse. Für Elektronen gilt $m_s = \pm \frac{1}{2}$, bei leichten Löchern nimmt m_j die Werte $\pm \frac{1}{2}$ an und für schwere Löcher ist $m_j = \pm \frac{3}{2}$. Der thermische Erwartungswert der Manganspins $\langle S_z \rangle$ wurde schon zur Beschreibung der makroskopischen Magnetisierung verwendet und β ist das Austauschintegral der p -artigen Γ_8 Elektronen. Unter Einbeziehung der Korrekturen durch die antiferromagnetische

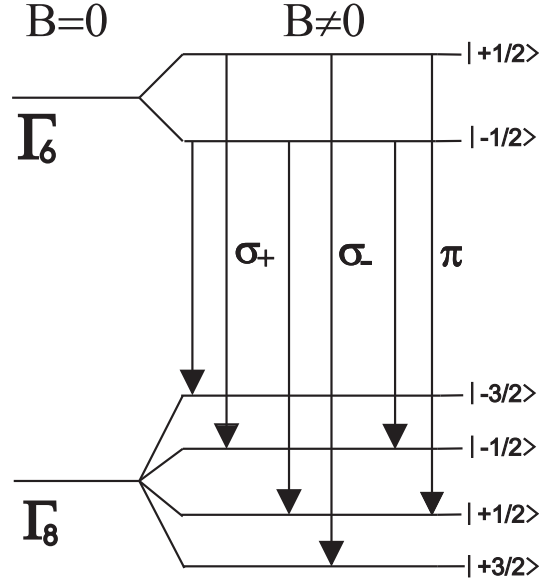


Abbildung 4.2. Schematische Darstellung der Spinaufspaltung der Leitungs- und Valenzbandkanten am Γ -Punkt im magnetischen Feld.

d-d-Superaustauschwechselwirkung unter benachbarten Mn^{++} -Ionen erhält man

$$\Delta E_{LB} = N_0 \alpha x m_s S_{eff}(x) \mathcal{B}_{\frac{5}{2}} \left(\frac{g_{Mn} \mu_B \frac{5}{2} B}{k_B (T_{eff}(x))} \right) \quad m_s = \pm \frac{1}{2}, \quad (4.12)$$

$$\Delta E_{VB} = \frac{1}{3} N_0 \beta x m_j S_{eff}(x) \mathcal{B}_{\frac{5}{2}} \left(\frac{g_{Mn} \mu_B \frac{5}{2} B}{k_B (T_{eff}(x))} \right) \quad m_j = \pm \frac{1}{2}, \pm \frac{3}{2}. \quad (4.13)$$

Abbildung 4.2 verdeutlicht schematisch die Aufspaltung der Energieniveaus. Mit zwei Spinniveaus für das Γ_6 -Leitungsband und vier für das Γ_8 -Valenzband ist diese qualitativ identisch zu der gewöhnlichen Spinaufspaltung in nichtmagnetischen Halbleitern. Es ist deshalb legitim, den Effekt der Austauschwechselwirkung im Konzept eines effektiven *g*-Faktors zu beschreiben. Der Unterschied zu den nichtmagnetischen Halbleitern liegt in der um ein Vielfaches größeren Spinaufspaltung bzw. dem extrem großen effektiven *g*-Faktor der semimagnetischen Halbleiter.

Die Austauschintegrale α und β werden über die Bloch-Wellenfunktionen des Γ_6 Leitungs- bzw. des Γ_8 Valenzbands normiert auf das Volumen der Einheitszelle Ω_0 gebildet [Fur88a]:

$$\alpha = \frac{\langle S | J^{sp-d} | S \rangle}{\Omega_0}, \quad \beta = \frac{\langle X | J^{sp-d} | X \rangle}{\Omega_0}. \quad (4.14)$$

Sie lassen sich experimentell durch den Vergleich von Magnetisierungsmessungen und der optisch bestimmten Zeeman-Aufspaltung ermitteln. Für $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ wurden auf

diese Weise für verschiedene Mangankonzentrationen ($0,01 < x < 0,1$) und Temperaturen ($2,2\text{ K} < T < 10\text{ K}$) folgende Werte bestimmt [Twa84]:

$$\begin{aligned} N_0\alpha &= 0,26\text{ eV} , \\ N_0\beta &= -1,31\text{ eV} . \end{aligned}$$

Auffällig sind die unterschiedlichen Vorzeichen und Größenordnungen von α und β , die auf zwei verschiedene physikalische Prozesse hinweisen. Zum einen wirkt zwischen den Bandelektroden (s oder p) und den Mn- $3d$ -Elektronen eine spinabhängige Coulomb-Wechselwirkung. Dieser $\frac{1}{r}$ Potentialaustausch hat vorzugsweise eine parallele Ausrichtung der Spins zur Folge und führt somit zu einem ferromagnetischen Beitrag. Das Austauschintegral ist für Leitungs- und Valenzband gleichermaßen positiv und näherungsweise von gleichem Betrag.

Zum anderen liefert eine Hybridisierung der sp -Bandelektroden mit den $3d$ -Orbitalen des Mangan einen starken antiferromagnetischen Beitrag zur Austauschwechselwirkung. Während die s - d -Hybridisierung am Γ -Punkt aus Symmetriegründen verboten ist, dominiert die p - d -Hybridisierung die Austauschwechselwirkung der p -artigen Löcher mit den lokalisierten Elektronen der Mn^{++} -Ionen. Das resultierende Austauschintegral β der Valenzbandelektroden ist somit stark negativ. Das Austauschintegral α der Leitungsbandelektroden wird vom ferromagnetischen Potentialaustausch dominiert und ist deshalb positiv [Lar88]. Es ist erwähnenswert, dass sowohl der Mn^{++} - Mn^{++} -Superaustausch als auch der p - d -Austausch auf der p - d -Hybridisierung beruhen. Der d -(p)- d -Superaustausch wird durch den Überlapp der am Anion lokalisierten Wellenfunktionen der vollbesetzten p -Orbitale vermittelt. Der p - d -Austausch findet dagegen mit den delokalisierten Löchern, also Fehlstellen in den p -Orbitalen des Anions, statt.

4.4 Zeeman-Aufspaltung und optische Übergänge

Die starke Austauschkopplung zwischen den Bandelektroden und den lokalisierten Elektronen der Manganionen lässt sich in mehreren charakteristischen Effekten nachweisen. Magnetooptische Experimente erweisen sich als besonders geeignet, die Magnetisierung und die Austauschkonstanten der semimagnetischen Halbleiter zu bestimmen, da hier eine direkte Spektroskopie der Energieniveaus erfolgt. Die riesige Zeeman-Aufspaltung der Elektronen- und Lochzustände führt zu einer starken energetischen Verschiebung optischer Übergänge mit dem Magnetfeld. Abbildung 4.2 gibt eine Übersicht über die erlaubten Dipolübergänge. Die in Faraday-Geometrie ($\mathbf{k}_{\text{Licht}} \parallel \mathbf{B}$) gültigen Auswahlregeln $\Delta m_j = \pm 1$ liefern rechts- bzw. links zirkular polarisiertes Licht (σ_+ , σ_-). Linear

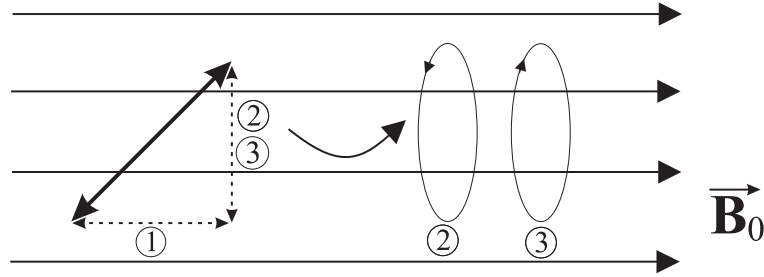


Abbildung 4.3. Schematische Darstellung eines strahlenden Übergangs als schwingender Oszillator, der in drei Ersatz-Oszillatoren parallel und senkrecht zum Magnetfeld \vec{B}_0 zerlegt wird.

(π) polarisierte Übergänge mit $\Delta m_j = \pm 0$ sind nur in Voigt-Geometrie ($\mathbf{k}_{\text{Licht}} \perp \mathbf{B}$) erlaubt. Dies lässt sich einfach an einer klassischen Überlegung [Hak96] nachvollziehen. Man betrachtet dazu einen strahlenden Übergang als schwingenden Oszillator mit beliebiger Orientierung zu den magnetischen Feldlinien, wie es Abbildung 4.3 schematisch darstellt. Dieser Oszillator kann nach den Gesetzen der Vektoraddition in drei Ersatz-Oszillatoren zerlegt werden. Oszillator 1 schwingt linear parallel zur Richtung des angelegten Magnetfelds \vec{B}_0 . Die lineare Schwingungskomponente senkrecht zu \vec{B}_0 lässt sich durch die Ersatz-Oszillatoren 2 und 3 ersetzen, die zueinander entgegengesetzt zirkular in der Ebene senkrecht zu \vec{B}_0 schwingen. Der Ersatz-Oszillator 1 hat die Strahlungscharakteristik eines Hertz'schen Dipols, dessen \mathbf{E} -Feld-Vektor parallel zu \vec{B}_0 schwingt. Es wird somit keine Ausstrahlung in \vec{B}_0 -Richtung erwartet. Beobachtet man die Ausstrahlung der Ersatz-Oszillatoren 2 und 3 in \vec{B}_0 -Richtung, so ist diese zirkular polarisiert. Bei Beobachtung senkrecht zu \vec{B}_0 erscheint sie linear polarisiert.

Im Folgenden werden die zirkular polarisierten Schwerlochübergänge aus dem Leitungsband mit $m_s = \pm \frac{1}{2}$ in Valenzbandzustände $m_j = \pm \frac{3}{2}$ im Energieschema in Abbildung 4.2 betrachtet. Die sp - d -Austauschwechselwirkung verursacht eine Verschiebung des niederenergetischen σ_+ -Übergangs zu kleineren und des höherenergetischen σ_- -Übergangs zu höheren Energien. Die Zeeman-Aufspaltung zwischen dem σ_+ - und σ_- -Ast erreicht bei verdünnten magnetischen II-VI-Halbleitern großer Bandlücke Werte von deutlich über 100 meV. Bei Temperaturen von wenigen Kelvin ist die mittlere thermische Energie der Ladungsträger im Leitungs- und Valenzband wesentlich geringer als die Zeeman-Aufspaltung. Es sind nur die jeweils niedrigsten Energieniveaus mit $m_s = -\frac{1}{2}$ bzw. $m_j = -\frac{3}{2}$ besetzt. In Photolumineszenzspektren beobachtet man deshalb lediglich den σ_+ -polarisierten Schwerlochübergang.

4.5 Spinpolarisation der Leitungsbandelektronen

Mittels Lumineszenzspektren lassen sich einfach Aussagen über die Aufspaltung der Energieniveaus im äußeren Magnetfeld treffen. Wie das Betragsverhältnis der Austauschkonstanten α und β für $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ erwarten lässt, findet der größte Teil der Aufspaltung im Valenzband statt. Im Folgenden soll allerdings das Leitungsband betrachtet werden, da für unsere Transportexperimente Elektronen als Ladungs- und Spinträger verwendet werden. Die Zeeman-Aufspaltung ist hier durch die Differenz der Energieniveaus der Spin- \uparrow - ($m_s = +\frac{1}{2}$) und der Spin- \downarrow -Elektronen ($m_s = -\frac{1}{2}$) gegeben. Mit Gleichung 4.12 findet man

$$\begin{aligned}\Delta E_C &= \Delta E_{LB} \left(m_s = +\frac{1}{2} \right) - \Delta E_{LB} \left(m_s = -\frac{1}{2} \right) \\ &= N_0 \alpha x S_{eff}(x) \mathcal{B}_{\frac{5}{2}} \left(\frac{g_{Mn} \mu_B \frac{5}{2} B}{k_B (T_{eff}(x))} \right) .\end{aligned}\quad (4.15)$$

Die Aufspaltung des Leitungsbands steigt also proportional zur Magnetisierung und erreicht bei Temperaturen des flüssigen Heliums, einem Mangangehalt von etwa 5 % und einem Magnetfeld von $B = 6$ T Werte von $\Delta E_C \approx 16$ meV. Dieser Wert ist deutlich größer als die thermische Energie. Man kann deshalb in $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ von einer nahezu vollständigen Spinpolarisation der Leitungsbandelektronen ausgehen.

Bedingt durch die hohen Zeeman-Aufspaltung im Leitungsband bilden sich im thermischen Gleichgewicht unterschiedliche Besetzungswahrscheinlichkeiten P_\uparrow und P_\downarrow für das energetisch höher gelegene Spin- \uparrow -Niveau ($m_s = +\frac{1}{2}$) und das energetisch tiefer gelegene Spin- \downarrow -Niveau ($m_s = -\frac{1}{2}$) aus. Wegen $\Delta E_C \gg k_B T$ kann man die Besetzung des spinaufgespaltenen Leitungsbands in guter Näherung als Boltzmann-verteiltes zwei-Niveau-System beschreiben.

$$P_\uparrow(m_s = +\frac{1}{2}) = P_\downarrow(m_s = -\frac{1}{2}) e^{-\frac{\Delta E_C}{k_B T}} , \quad (4.16)$$

$$P_\uparrow(m_s = +\frac{1}{2}) + P_\downarrow(m_s = -\frac{1}{2}) = 1 . \quad (4.17)$$

Für die einzelnen Besetzungswahrscheinlichkeiten ergibt sich dann

$$P_\uparrow(m_s = +\frac{1}{2}) = \frac{e^{-\frac{\Delta E_C}{k_B T}}}{1 + e^{-\frac{\Delta E_C}{k_B T}}} , \quad (4.18)$$

$$P_\downarrow(m_s = -\frac{1}{2}) = \frac{1}{1 + e^{-\frac{\Delta E_C}{k_B T}}} . \quad (4.19)$$

Der Grad der Spinpolarisation ρ_e der Leitungsbandelektronen kann als normierte Differenz der Besetzungswahrscheinlichkeiten von \downarrow - und \uparrow -Elektronen definiert werden:

$$\rho_e = \frac{P_{\downarrow} - P_{\uparrow}}{P_{\downarrow} + P_{\uparrow}} = \frac{1 - e^{-\frac{\Delta E_C}{k_B T}}}{1 + e^{-\frac{\Delta E_C}{k_B T}}} . \quad (4.20)$$

Durch das angelegte Magnetfeld lässt sich über ΔE_C die Spinpolarisation zwischen 0 für eine Gleichverteilung und 1 für vollständige Spinpolarisation variieren. Im konkreten Fall erhält man bei $T = 4,2 \text{ K}$ und $\Delta E_C = 16 \text{ meV}$ eine Spinpolarisation von annähernd 100 %. Der Wert der Differenz $1 - \rho_e$ beträgt $1 \cdot 10^{-19}$.

4.6 Magnetowiderstand

Eine vielfältige Methode zur Charakterisierung von Halbleitern ist das Verhalten des elektrischen Widerstands in einem äußeren Magnetfeld. Magnetotransportuntersuchungen an komplexen Halbleiterheterostrukturen erfordern auch die Kenntnis der elektrischen Leitfähigkeit der einzelnen Materialien in Abhängigkeit eines äußeren Magnetfelds. Ein äußeres Magnetfeld \mathbf{B} ändert die Energie der Ladungsträger nicht direkt, beeinflusst aber deren Verteilungsfunktion und daher mittelbar deren elektrischen Widerstand. Als Magnetowiderstand bezeichnet man die Änderung des elektrischen Widerstands in Abhängigkeit von Betrag und Richtung von \mathbf{B} bezogen auf den Widerstand im feldfreien Fall:

$$\frac{\Delta \varrho}{\varrho(0)} = \frac{\varrho(\mathbf{B}) - \varrho(0)}{\varrho(0)} . \quad (4.21)$$

Bei nichtmagnetischen Volumenhalbleitern ist der Einfluss eines Magnetfelds auf das Transportverhalten eher gering und wird, wie in Kapitel 2.2.2 angesprochen, von Quanteninterferenzen und Phasenübergängen dominiert. Im Allgemeinen tritt in den nichtmagnetischen Wirtshalbleitern wie GaAs, ZnSe oder CdSe ein negativer Magnetowiderstand auf ([Hal68], [Sha98], [Saw86]). In semimagnetischen Halbleitern bestimmen die magnetischen Ionen und, indem sie die Bandstruktur beeinflusst, die *sp-d*-Austauschwechselwirkung den Magnetowiderstand. Der Magnetowiderstand von $n\text{-Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ oder $n\text{-Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{O}$ weicht deshalb stark von dem des jeweiligen nichtmagnetischen Wirtsmaterials CdSe bzw. ZnO ab. Einem steilen Anstieg des Magnetowiderstands bis zu einem Maximum bei einem kritischen Magnetfeld B_c folgt ein negativer Magnetowiderstand bei höheren Magnetfeldern. Der aktuelle Stand der Forschung kann den Verlauf des Magnetowiderstands von *n*-leitenden semimagnetischen Halbleitern allenfalls qualitativ, jedoch noch nicht quantitativ beschreiben.

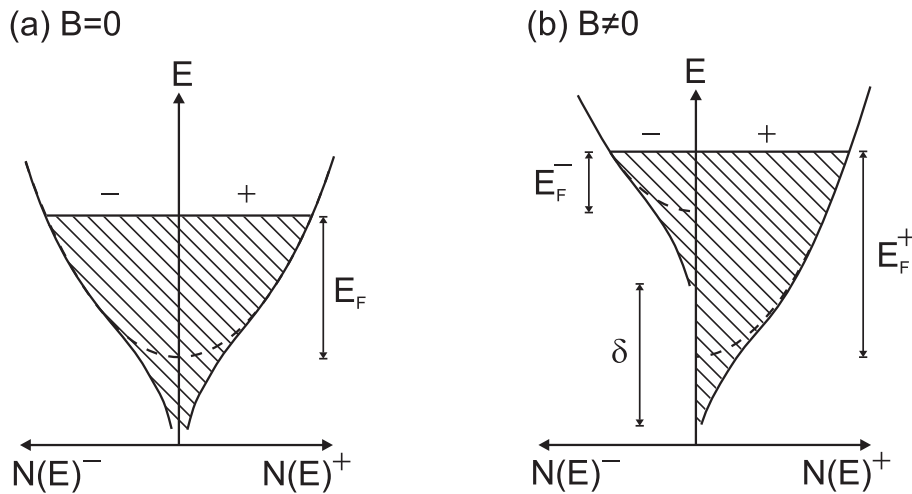


Abbildung 4.4. Schematische Darstellung der Zustandsdichte $N(E)$ für Majoritätsspinladungsträger (+) und Minoritätsspinladungsträger (-): Die gestrichelte Linie beschreibt den parabolischen Verlauf der Bandkante, die durchgezogene Linie deutet auch Bereiche stärkerer Lokalisierung in einem Störstellenband an. (a) Ohne äußeres Magnetfeld, (b) im äußeren Magnetfeld sind die Spinsubbänder um die Spinaufspaltung δ gegeneinander verschoben. Es kommt zu einer Umverteilung der Ladungsträger und so zu einer Änderung in den jeweiligen Fermi-niveaus E_F^\pm der Majoritätsspin- und Minoritätsspinladungsträger (nach [Sha86]).

In dotierten Halbleitern großer Bandlücke sind die Elektronen nahe am Übergang zur Lokalisierung. In diesem Regime wird der Ladungstransport stark von Quanteninterferenzen der gestreuten Wellen und der Elektron-Elektron-Wechselwirkung beeinflusst. Die Leitfähigkeit ist dann auf phasenbrechende Mechanismen wie Spinrelaxation und auf symmetriereduzierende Störungen empfindlich, wie sie ein Magnetfeld und die daraus resultierende Zeeman-Aufspaltung der elektronischen Zustände bewirken [And05].

Der Einfluss der starken Spinaufspaltung im Leitungsband semimagnetischer Halbleiter auf deren Leitfähigkeit bedingt zwei konkurrierende Mechanismen. Zum einen wirkt die Spinaufspaltung des Leitungsbands destruktiv auf die durch die Elektron-Elektron-Wechselwirkung im Regime der schwachen Lokalisierung hervorgerufenen Quantenkorrekturen zur Leitfähigkeit ([Lee85], [Saw86], [Sha90]). Dieser Effekt überwiegt bei kleinen Magnetfeldern und führt zu einem positiven Magnetowiderstand. Die Streuung aufgrund der Spinunordnung spielt hier nur eine untergeordnete Rolle, da im Halbleiter - im Gegensatz zum Metall - der Fermiimpuls vergleichsweise klein und die Streuung an kurzreichweitigen Potentialen relativ schwach ist [Saw86].

Zum anderen kommt es durch die stetig wachsende Spinaufspaltung zu einer Umverteilung der Elektronen zwischen den Spinsubbändern. Dies führt zu einem Anstieg des Fermivektors der Majoritätsspinladungsträger und somit zu einem Anstieg der Mobili-

tät, wenn bei höheren Magnetfeldern die Spinaufspaltung vergleichbar zur Fermienergie wird. In Abbildung 4.4 ist die beschriebene Situation anhand der Zustandsdichte $N(E)$ skizziert. Mit steigender Spinaufspaltung δ wird durch die Umverteilung von Elektronen aus dem Minoritätsspinsubband ($-$) in das Majoritätsspinsubband ($+$) die Fermienergie E_F^+ im ($+$) Spinband erhöht und E_F^- im ($-$) Spinband erniedrigt. Dadurch steigt die Mobilität im ($+$) Subband bzw. verringert sich die Mobilität im ($-$) Subband. Der resultierende Nettoeffekt ist ein negativer Magnetowiderstand ([Sha90], [Fuk79]).

Das Schema in Abbildung 4.4 trifft dabei besonders für Halbleiter auf der metallischen Seite des Mott-Übergangs zu. In der Nähe des Metall-Isolator-Übergangs kann der niederenergetische Bandverlauf deutlich abweichen und die Fermienergie geringer sein. Die Aufhebung der Spinentartung kann in diesem Fall einen Anstieg der Leitfähigkeit bewirken. Durch eine Konversion von Elektronenpaaren in Singlet-Zuständen zu Triplet-Zuständen verringert sich die energetische Breite des Störstellenbands. Die Zustandsdichte an der Fermienergie wird erhöht und die Beweglichkeit nimmt zu [Die91]. Der Umverteilungsprozess der Ladungsträger auf die beiden Spinsubbänder kann allerdings auch zu einem positiven Magnetowiderstand führen. In parabolischer Näherung bedingt die Spinaufspaltung im Leitungsband einen Anstieg der Thomas-Fermi-Abschirmlänge und somit eine geringere Abschirmung von Coulomb-Streuern. Unter Berücksichtigung von Austauscheffekten erfolgt die Abschirmung geladener Störstellen hauptsächlich durch Majoritätsspinelektronen, die dadurch wiederum stärker gestreut werden als Minoritätsspinelektronen. Da bei sehr großer Spinaufspaltung die Leitung vornehmlich im Majoritätsspinsubband erfolgt, resultiert daraus ein positiver Magnetowiderstand. Im Vergleich zu den anderen hier behandelten Prozessen spielt dieser Effekt für $B \leq 8$ T nur eine untergeordnete Rolle [Sha90].

In p-leitenden DMS kommt es durch die Spinaufspaltung aufgrund der p - d -Austauschkopplung zu besonders drastischen Effekten. Die Umverteilung der Ladungsträger zwischen den Γ_8 -Subbändern ist mit einem Wechsel von Löchern aus dem Schwerloch- in das Leichtlochband verbunden. Hierdurch wird die effektive Masse der Löcher reduziert und ihre Beweglichkeit vergrößert. Darüber hinaus resultiert die Mischung von Beiträgen des Leicht- und Schwerlochbands zur Akzeptorwellenfunktion in einem Anstieg des Akzeptor-Radius mit dem Magnetfeld. Die Ionisierungsenergie der Akzeptorniveaus sinkt und es kommt mit steigender Störstellenleitung zu einem magnetfeldinduzierten Isolator-Metall-Übergang. Als Konsequenz tritt in p-dotiertem $\text{Hg}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ bei tiefen Temperaturen ein riesiger negativer Magnetowiderstand mit einer Änderung über mehrere Größenordnungen auf ([Woj83], [Woj89]).

Andere phänomenologische Erklärungsansätze beruhen auf der Bildung, der Magnetisierung und dem Aufbrechen gebundener magnetischer Polaronen: Ein an einem Dona-

toratom lokalisiertes Elektron kann die Spins der Mn^{++} -Ionen innerhalb seines Orbits polarisieren. So entsteht bei sehr tiefen Temperaturen eine lokale Spinwolke ferromagnetischer Ordnung um den Donator. Solche Komplexe bezeichnet man im Bild der Quasiteilchen als *gebundene magnetische Polaronen* (BMP von engl.: **B**ound **M**agnetic **P**olarons) [Hei83]. Sie können, je nach der Anzahl der im Elektronorbit einbezogenen Mn^{++} -Ionen, ein magnetisches Moment von vielen Bohrschen Magnetonen erreichen. In den BMP wirkt neben der Coulomb-Anziehung der Donatoratome die Austauschkopplung der Elektronen an die umgebenden $3d$ -Spins als zusätzliche Potentialsenke. Die Lokalisierung der Leitungselektronen wird dadurch erhöht, die Leitfähigkeit sinkt. Ein äußeres Magnetfeld polarisiert zunehmend alle Mn^{++} -Spins und führt so zu einem Aufbrechen der gebundenen magnetischen Polaronen. Dies reduziert den Einfluss der Austauschwechselwirkung auf die Lokalisierung der Elektronen. Der resultierende Magnetowiderstand ist negativ.

4.7 $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ als Spinaligner

Eine der wichtigsten Voraussetzungen für die halbleiterbasierte Spinelektronik ist die Bereitstellung spinpolarisierter Elektronen und ihre Injektion aus den Spinreservoirs in die aktiven Bereiche der spinelektronischen oder spinoptoelektronischen Bauelemente. Wie auch andere verdünnte magnetische Halbleiter verfügt $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ schon bei kleinen Magnetfeldern über eine riesige Zeeman-Aufspaltung und eine damit einhergehende vollständige Spinpolarisation der Leitungsbandelektronen. Dadurch ist gerade diese Materialklasse am besten für das Konzept eines *Spinausrichters* geeignet [Oes99], der in Abbildung 4.5 schematisch dargestellt ist. Eine Heterostruktur aus einem nichtmagnetischen Halbleiter und einem DMS, der mit einem Metallkontakt versehen ist, befindet sich in einem äußeren Magnetfeld. Über den metallischen Kontakt werden unpolarisierte Elektronen in den DMS injiziert. Dort relaxieren die Elektronen in wenigen Picosekunden in das energetisch tiefer liegende Majoritätsspinniveau, wodurch die Polarisation des Elektronengases erfolgt. Anschließend diffundieren oder driften die spinpolarisierten Elektronen in den nichtmagnetischen Halbleiter und stehen dort für weitere Messungen zur Verfügung.

Photolumineszenzmessungen am System $\text{CdMnTe}/\text{CdTe}$ bestätigten sowohl die schnelle und effiziente Relaxation der Elektronen beim Durchlaufen einer 360 nm dicken $\text{Cd}_{0,98}\text{Mn}_{0,02}\text{Te}$ -Schicht als auch die spinerhaltende Diffusion von Elektronen über die $\text{CdMnTe}/\text{CdTe}$ -Grenzfläche [Oes99]. In einem anderen Experiment wurde der spinerhaltende elektronische Transport von einem *spin aligner* aus ZnBeMnSe über eine

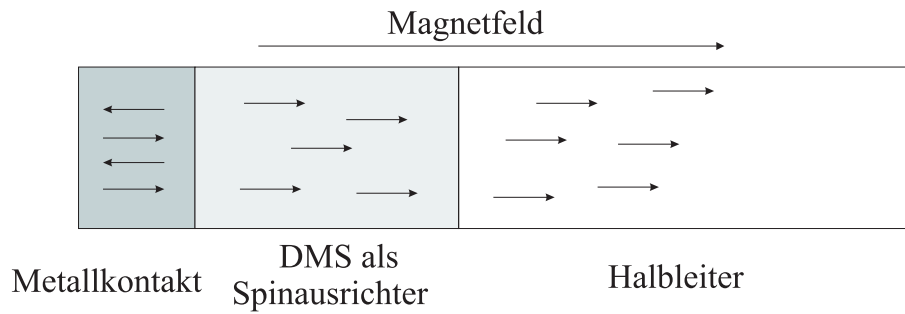


Abbildung 4.5. Modell eines DMS-Kontakts als Spinausrichter nach [Oes99].

Grenzfläche zu AlGaAs in eine GaAs/AlGaAs-LED-Struktur nachgewiesen [Fie99]. Vergleichbare Resultate konnten mit nicht gitterangepasstem ZnMnSe erreicht werden [Jon00]. Dabei lieferten Schichtdicken von 300 nm ZnBeMnSe [Fie99] bzw. 200 nm ZnMnSe [Jon00] eine ausreichende Wegstrecke für die Thermalisierung der Elektronen im jeweiligen Spinausrichter. In einer 3 nm dicken Schicht ist eine effiziente thermische Relaxation der Elektronen in das Majoritätsspinniveau nicht mehr gegeben [Fie99].

Kapitel 5

Experimenteller Nachweis der Spininjektion - das Konzept

Es wurden bereits viele Experimente zur Injektion spinpolarisierter Ladungsträger aus magnetischen Materialien in nichtmagnetische Halbleiter durchgeführt. Zum Nachweis einer erfolgreichen Spininjektion wurden dabei sowohl optische Messungen als auch elektrische Transportmessungen herangezogen. Den größten Erfolg hatten bisher Experimente an so genannten Spin-LED-Strukturen [Fie99], bei denen das Verhältnis von links- zu rechtszirkularer Polarisation des emittierten Lichts als Maß für den Spininjektionsgrad diente.

Soll der Nachweis der Spininjektion über elektrische Transportmessungen geführt werden, verwenden viele Arbeitsgruppen Kontakte aus ferromagnetischem Material auf einem nichtmagnetischen Halbleiter, ähnlich der Struktur des Datta-Spintransistors [Dat90]. In diesen Experimenten wird die Änderung des Längswiderstands $\frac{\Delta R}{R}$ über das Bauteil in Abhängigkeit von der relativen Ausrichtung der Magnetisierung der ferromagnetischen Kontakte zueinander zur Bestimmung des Spininjektionsgrads herangezogen. Die beobachteten Effekte bleiben jedoch weit hinter den theoretischen Voraussetzungen zurück. Die um mehrere Größenordnungen voneinander abweichende elektrische Leitfähigkeit von Metall- und Halbleitermaterial sowie die nicht vollständige Spinpolarisation der ferromagnetischen Metallkontakte stehen einer effizienten Spininjektion von ferromagnetischen Metallen in den Halbleiter im Wege [Sch00].

Verdünnte magnetischen Halbleiter, wie zum Beispiel ZnMnSe, weisen bei tiefen Temperaturen durch die extrem starke Zeeman-Aufspaltung des Leitungsbands schon bei geringen äußeren Magnetfeldern ($B < 1$ T) eine vollständige Spinpolarisation der Ladungsträger auf. Durch die Dotierung des Halbleiters können die elektrischen Eigen-

schaften sowie die Art der Ladungsträger den Erfordernissen angepasst werden. Für Experimente mit spinpolarisierten Ladungsträgern verwendet man vorzugsweise Elektronen, weil sie eine geringere Spindephasierung aufweisen als Löcher.

5.1 Spininjizierende Kontakte im Landauer-Büttiker-Formalismus

Im Folgenden soll ein neues Konzept zum rein elektrischen Nachweis einer erfolgreichen Spininjektion in ein zweidimensionales Elektronengas vorgestellt werden [Her04]. Die relevante Messgröße ist nicht länger der relative Magnetowiderstand $\frac{\Delta R}{R}$, sondern der im Quanten-Hall-Regime bei Füllfaktor ν gemessene Hallwiderstand.

Man betrachte eine GaAs/AlGaAs-Heterostruktur mit einem zweidimensionalen Elektronensystem, strukturiert zu einer Hallbar-Geometrie mit sechs Kontakten. Wie bereits aus Kapitel 3.6 bekannt ist, können verschiedene Widerstandsmessungen, die an einer solchen Geometrie möglich sind, im Rahmen des Landauer-Büttiker-Formalismus beschrieben werden. Die Zeeman-aufgespaltenen Landauniveaus werden als separate Randkanäle betrachtet. Der Anschauung halber betrage der magnetfeldabhängige Füllfaktor des 2DEG $\nu = 2$. Die Spinentartung der Landauniveaus sei aufgehoben. Der Transport wird also von zwei Randkanälen für Elektronen von jeweils einer Spinsorte, Spin-up und Spin-down getragen.

Um die Vorteile semimagnetischer Halbleiter zu nutzen, wird ZnMnSe als spinpolarisierendes Kontaktmaterial verwendet. Die spinausrichtende Funktion des ZnMnSe kann in den Landauer-Büttiker-Formalismus durch Spinselektoren vor den Kontakten implementiert werden. Der vollständigen Spinpolarisation des ZnMnSe Rechnung tragend, wird die Majoritätsspinsorte mit einer Wahrscheinlichkeit von Eins in die entsprechenden Randkanäle des 2DEG eingespeist. Elektronen mit Minoritätsspin werden von den Spinselektoren hingegen mit einer Wahrscheinlichkeit ε zur Verfügung gestellt.

Abbildung 5.1 zeigt eine schematische Darstellung des Modellsystems. Die exakte Lage der Spinselektoren in den Armen des Hallbar hat keine physikalische Bedeutung. Ein exemplarisch dargestellter Randkanal (1) für Majoritätsspinelektronen verläuft ungehindert von einem Kontakt zum nächsten. Minoritätsspinrandkanäle (2) sind dem Einfluss der Spinselektoren unterworfen.

Die Wahrscheinlichkeit ε reflektiert die Wahrscheinlichkeit der thermischen Anregung von Majoritätsspinelektronen in Minoritätsspinniveaus und stellt somit ein Maß für die Abweichung vom vollständig spinpolarisierten Transport dar. Sie charakterisiert ebenso

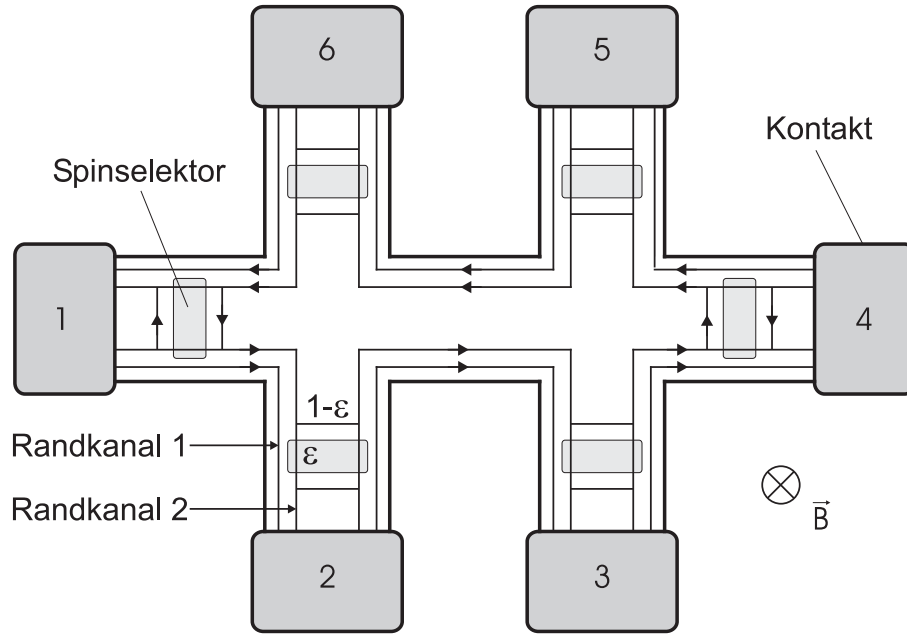


Abbildung 5.1. Darstellung spininjizierender Kontakte zu einem 2DEG-Hallbar im Landauer-Büttiker-Formalismus. Skizziert sind die spinaufgespaltenen Randkanäle eines Quanten-Hall-Systems bei Füllfaktor $\nu = 2$. Pfeile kennzeichnen die Stromrichtung.

das Ungleichgewicht in der Verteilung der Spinströme auf die zur Verfügung stehenden Randkanäle des 2DEG. Beträgt $\varepsilon = 0$, erfolgt eine zu 100 % spinpolarisierte Injektion der Elektronen. Es herrscht ein maximales Ungleichgewicht der Stromverteilung auf die Randkanäle. Im Falle von $\varepsilon = 1$ werden ebenso viele Minoritätsspin- wie Majoritätsspinelektronen injiziert und die Spinpolarisation des Stroms verschwindet. Die zur Verfügung stehenden Randkanäle werden zu gleichen Teilen befüllt und befinden sich im Gleichgewicht.

Zunächst soll die Annahme gelten, dass keine Übergänge von Ladungsträgern zwischen verschiedenen Randkanälen stattfinden. Dies führt zu $R_i^{mn} = 0$ und $T_{ji}^{mn} = 0$ für alle $m \neq n$, wodurch eine Spinequilibration im 2DEG nicht erlaubt ist. Alle Majoritätsspinelektronen, die am Kontakt i in einen Randkanal 1 eintreten, erreichen ungestört den Kontakt $i+1$, an dem sie das 2DEG wieder verlassen. Etwas komplizierter gestaltet sich der Transport der Minoritätsspinladungsträger: Sie treten an einem Kontakt i mit der Wahrscheinlichkeit ε in einen Randkanal 2 ein und können ebenso am Kontakt $i+1$ das 2DEG mit einer Wahrscheinlichkeit ε verlassen. Sie können aber auch an Kontakt $i+1$ mit einer Wahrscheinlichkeit von $(1-\varepsilon)$ reflektiert werden und Kontakt $i+2$ erreichen, an dem sie das 2DEG, wiederum mit der Wahrscheinlichkeit ε , verlassen. Die Gesamtwahrscheinlichkeit für die Transmission eines Minoritätsspinelektrons von Kontakt i zu Kontakt $i+2$ errechnet sich somit zu $\varepsilon(1-\varepsilon)\varepsilon$.

Darüber hinaus besteht die Möglichkeit, dass ein Minoritätsspinelektron in einem Randkanal 2 auch an Kontakt $i+2$ und allen weiteren Kontakten mit der Wahrscheinlichkeit $(1-\varepsilon)$ reflektiert wird, bis es nach einem oder mehreren kompletten Umläufen schließlich Kontakt $i+2$ erreicht. Die Transmissionswahrscheinlichkeiten für andere Kontaktpaare erschließen sich analog. Während die ZnMnSe-Kontakte für Majoritätsspinelektronen als reflexionslos angenommen werden, setzt sich der Reflexionskoeffizient für Minoritätsspinelektronen aus der unmittelbaren Rückstreuung in den Kontakt sowie der Injektion und Extraktion der Ladungsträger durch denselben Kontakt nach einem oder mehreren Umläufen zusammen.

Befindet sich das Modellsystem mit sechs spinselektiven Kontakten bei einem Füllfaktor von $\nu = 2$, erhält man durch einfache Rechnung nach oben dargestelltem Prinzip die Reflexionskoeffizienten R_i und die Elemente T_{ji} der Transmissionsmatrix des Gleichungssystems 3.38, von denen hier einige exemplarisch genannt werden. Die Wahrscheinlichkeiten multipler Umläufe werden in einer geometrischen Reihe zusammengefasst, wobei der Exponent im Nenner mit der Anzahl der Kontakte korreliert.

$$T_{21} = 1 + \frac{\varepsilon^2}{1 - (1 - \varepsilon)^6}, \quad T_{31} = \frac{\varepsilon^2(1 - \varepsilon)}{1 - (1 - \varepsilon)^6}, \quad T_{41} = \frac{\varepsilon^2(1 - \varepsilon)^2}{1 - (1 - \varepsilon)^6}, \quad \dots$$

$$R_i = (1 - \varepsilon) + \frac{\varepsilon^2(1 - \varepsilon)^5}{1 - (1 - \varepsilon)^6}.$$

Lässt man den Strom von Kontakt 1 nach Kontakt 4 fließen, so ergibt sich der Hallwiderstand aus Messung der Potentialdifferenz zwischen den Kontakten 3 und 5. Die Anwendung des eben modifizierten Landauer-Büttiker-Formalismus auf diese Kontaktgeometrie liefert für den Hallwiderstand $R_H = R_{14,35}$

$$R_H = \frac{h}{e^2} \frac{1 - \varepsilon + 2\varepsilon^2}{1 + 3\varepsilon^2}. \quad (5.1)$$

Indem man bei gleichem Strompfad die Längsspannung zwischen den Kontakten 2 und 3 abgreift, lässt sich analog der Längswiderstand $R_{xx} = R_{14,23}$ berechnen:

$$R_{xx} = \frac{h}{e^2} \frac{\varepsilon(1 - \varepsilon)^2}{2(1 + 3\varepsilon^2)}. \quad (5.2)$$

Der Verlauf von Hall- und Längswiderstand in Abhängigkeit von der Injektionswahrscheinlichkeit ε für Minoritätsspinelektronen ist in Abbildung 5.2 dargestellt. Erfolgt eine Injektion der beiden unterschiedlichen Spinsorten zu gleichen Teilen ($\varepsilon = 1$), ist der Hallwiderstand bekanntermaßen $R_H = R_K/2$, mit $R_K = h/e^2$, und der Längswi-

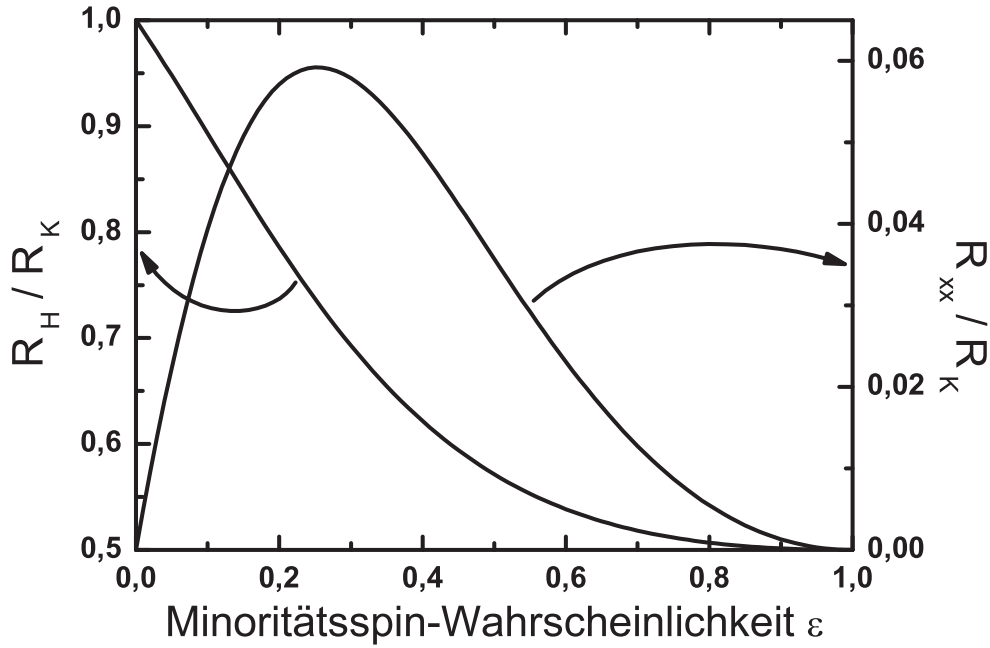


Abbildung 5.2. Hallwiderstand R_H (linke Achse) und Längswiderstand R_{xx} (rechte Achse) normiert auf den Klitzing-Widerstand $R_K = h/e^2$ als Funktion der Minoritätsspinwahrscheinlichkeit ε für Füllfaktor $\nu = 2$ unter Vernachlässigung der Spinequilibration.

derstand $R_{xx} = 0$. Im Falle einer vollständig spinpolarisierten Injektion ($\varepsilon = 0$) nimmt der Hallwiderstand für Füllfaktor $\nu = 2$ den doppelten Wert $R_H = R_K$ an, während der Längswiderstand auch hier verschwindet. Für eine teilweise Besetzung des Minoritätsspinrandkanals ($0 < \varepsilon < 1$) fällt der Hallwiderstand kontinuierlich von $R_H = R_K$ auf $R_H = R_K/2$ ab. Das Ungleichgewicht in der Besetzung der beiden Randkanäle verringert sich für $\varepsilon \rightarrow 1$. Der Längswiderstand R_{xx} nimmt für ε zwischen 0 und 1 endliche Werte an. Dieses Verhalten resultiert aus einer nicht verschwindenden Wahrscheinlichkeit der Rückstreuung für Minoritätsspinelektronen, die mit einer Wahrscheinlichkeit ε in den entsprechenden Randkanal injiziert werden. Diese Elektronen werden mit einer Wahrscheinlichkeit $(1 - \varepsilon)$ an den Stromkontakten 1 und 4 reflektiert und können so den gegenüberliegenden Rand des Hallbars erreichen. Rückstreuung kann so stattfinden.

Ist $\varepsilon = 1$, werden an allen Kontakten beide Spinsorten gleichermaßen in die Randkanäle bis zu ihrem elektrochemischen Potential injiziert. Im so herrschenden Gleichgewicht ist keine Rückstreuung möglich. Ist $\varepsilon = 0$, werden keine Minoritätsspinelektronen in das 2DEG injiziert, die durch Reflexion an den Kontakten den gegenüberliegenden Probenrand erreichen könnten. Als Konsequenz folgt für den Längswiderstand in beiden Fällen $R_{xx} = 0$.

5.2 Einfluss der Spinequilibration auf Hall- und Längswiderstand

Wie man aus Abschnitt 3.6.1 ersehen kann, ist die Annahme, dass Streuprozesse zwischen verschiedenen Randkanälen ausgeschlossen werden können, nicht länger haltbar. Von besonderer Relevanz ist hierbei Streuung zwischen den Zeeman-aufgespaltenen Randkanälen für die Spin-up- und die Spin-down-Elektronen innerhalb eines Landau-niveaus. Sie führt eine Equilibrierung der ungleichen Besetzung der spinaufgespaltenen Randkanäle herbei. Die Streuung von Elektronen von einem Randkanal eines Landau-niveaus in einen Randkanal eines anderen Landau-niveaus ist in mehreren Experimenten zu einem deutlich geringeren Maße beobachtet worden [Alp90, Mül90]. Eine Inter-Landauniveau-Streuung soll deshalb an dieser Stelle keine Beachtung finden.

Der Einfluss der Spin-Flip-Streuung von Elektronen zwischen zwei benachbarten Randkanälen wird im Landauer-Büttiker-Formalismus durch eine Wahrscheinlichkeit $P(l)$ ausgedrückt, die angibt, dass ein Elektron auf dem Weg zwischen zwei benachbarten Kontakten im Abstand l in seinem Randkanal verbleibt. Um diese Wahrscheinlichkeit zu erhalten geht man von zwei besetzten Randkanälen aus, einem Spin-up- und einem Spin-down-Randkanal. Es wird eine konstante Rate von Inter-Randkanal-Streuereignissen, $1/l_{eq}$, angenommen. Hierbei definiert die Equilibrierungslänge der Elektronen l_{eq} den Abstand zwischen zwei Inter-Randkanal-Streuereignissen.

Bezeichnet nun $P_{\downarrow}(l)$ die Wahrscheinlichkeit, ein Elektron im Spin-down-Randkanal anzutreffen, und $P_{\uparrow}(l)$ die entsprechende Wahrscheinlichkeit für den Spin-up-Randkanal, so lässt sich ein System von Ratengleichungen aufstellen.

$$\frac{dP_{\downarrow}}{dl} = -\frac{1}{l_{eq}} P_{\downarrow} + \frac{1}{l_{eq}} P_{\uparrow} , \quad (5.3)$$

$$\frac{dP_{\uparrow}}{dl} = \frac{1}{l_{eq}} P_{\downarrow} - \frac{1}{l_{eq}} P_{\uparrow} . \quad (5.4)$$

Mit den Randbedingungen $P_{\downarrow}(0) = 1$ und $P_{\uparrow}(0) = 0$ erhält man für obige Differentialgleichungen folgende Lösungen:

$$P_{\downarrow} = \frac{1}{2} + \frac{1}{2} \exp\left(-\frac{2l}{l_{eq}}\right) , \quad (5.5)$$

$$P_{\uparrow} = \frac{1}{2} - \frac{1}{2} \exp\left(-\frac{2l}{l_{eq}}\right) . \quad (5.6)$$

Ein Elektron verbleibt in einem Randkanal mit der Wahrscheinlichkeit $P(l) = P_{\downarrow}$. Folglich ist die Wahrscheinlichkeit, dass ein Elektron auf dem Weg zwischen zwei Kontakten in einen benachbarten Randkanal gestreut wird, durch $1 - P(l) = P_{\uparrow}$ gegeben. Bezieht man die Spinequilibration-Wahrscheinlichkeit in den Landauer-Büttiker-Formalismus ein, kann mit Hilfe von Gleichung 3.38 für eine Kontaktgeometrie gemäß Abbildung 5.1 und einem Füllfaktor $\nu = 2$ der resultierende Hallwiderstand $R_H = R_{14,35}$ berechnet werden. Zur besseren Übersicht gelte $P = P(l)$.

$$R_H = \frac{h}{e^2} \frac{2\varepsilon^2 P^2 - 4\varepsilon P^2 + 2\varepsilon P + \varepsilon + 2P^2 - 2P + 1}{4\varepsilon^2 P^2 - 2\varepsilon^2 P + \varepsilon^2 - 8\varepsilon P^2 + 8\varepsilon P + 4P^2 - 6P + 3}. \quad (5.7)$$

Zur Berechnung des Längswiderstands $R_{xx} = R_{14,23}$ findet man den Ausdruck

$$R_{xx} = -\frac{h}{e^2} \frac{2\varepsilon^3 P^2 - \varepsilon^3 P - 6\varepsilon^2 P^2 + 5\varepsilon^2 P - \varepsilon^2 + 6\varepsilon P^2 - 7\varepsilon P + 2\varepsilon - 2P^2 + 3P - 1}{2(4\varepsilon^2 P^2 - 2\varepsilon^2 P + \varepsilon^2 - 8\varepsilon P^2 + 8\varepsilon P + 4P^2 - 6P + 3)(\varepsilon P - \varepsilon - P)}. \quad (5.8)$$

Aus Experimenten an Kontaktgeometrien mit verschiedenen Kontaktabständen l können Aussagen über den Wert der Spin-Flip Equilibrierungslänge l_{eq} in einem 2DEG im Quanten-Hall-Regime getroffen werden.

In Arbeiten an zweidimensionalen Elektronengasen in GaAs/AlGaAs-Heterostrukturen konnten bereits Erkenntnisse zur Spinequilibration von Elektronen gewonnen werden, indem die beiden spinpolarisierten Randkanäle des untersten Landauniveaus ($\nu = 2$) durch Gate-Elektroden über einer strukturierten Leiterbahn selektiv besetzt wurden [Mül92]. Bei einer Temperatur von 100 mK wurden für l_{eq} typische Werte zwischen 100 μm und 1 mm ermittelt. Bei Temperaturen über 250 mK war eine signifikante Abnahme der Equilibrierungslänge zu verzeichnen.

Gemäß den Gleichungen 5.7 und 5.8 sind in den Abbildungen 5.3(a) der Hallwiderstand und in Abbildung 5.3(b) der Längswiderstand jeweils als Funktion der Wahrscheinlichkeit ε der von den ZnMnSe-Kontakten injizierten Minoritätsspinelektronen und dem Kontaktabstand l aufgetragen. Für die Berechnungen wurde eine Spinequilibration-länge von $l_{eq} = 200 \mu\text{m}$ angenommen.

Im Falle einer vollständig spinpolarisierten Injektion ($\varepsilon = 0$) fällt der Hallwiderstand R_{xy} exponentiell mit dem Abstand l der ZnMnSe-Kontakte von R_K auf $R_K/2$ ab und zeigt so die wachsende Equilibrierung der beiden spinaufgespaltenen Randkanäle an. Während der Längswiderstand R_{xx} für $l = 0$ verschwindet, nimmt er bei endlichen Kontaktabständen l von Null verschiedene Werte an. Letzteres lässt sich auf eine Streuung der Elektronen zwischen benachbarten Randkanälen zurückführen, welche Rückstreuung ermöglicht. Für sehr große Kontaktabstände l wird eine vollständige Equilibrierung der Elektronen erreicht und der Längswiderstand nähert sich abermals an Null an.

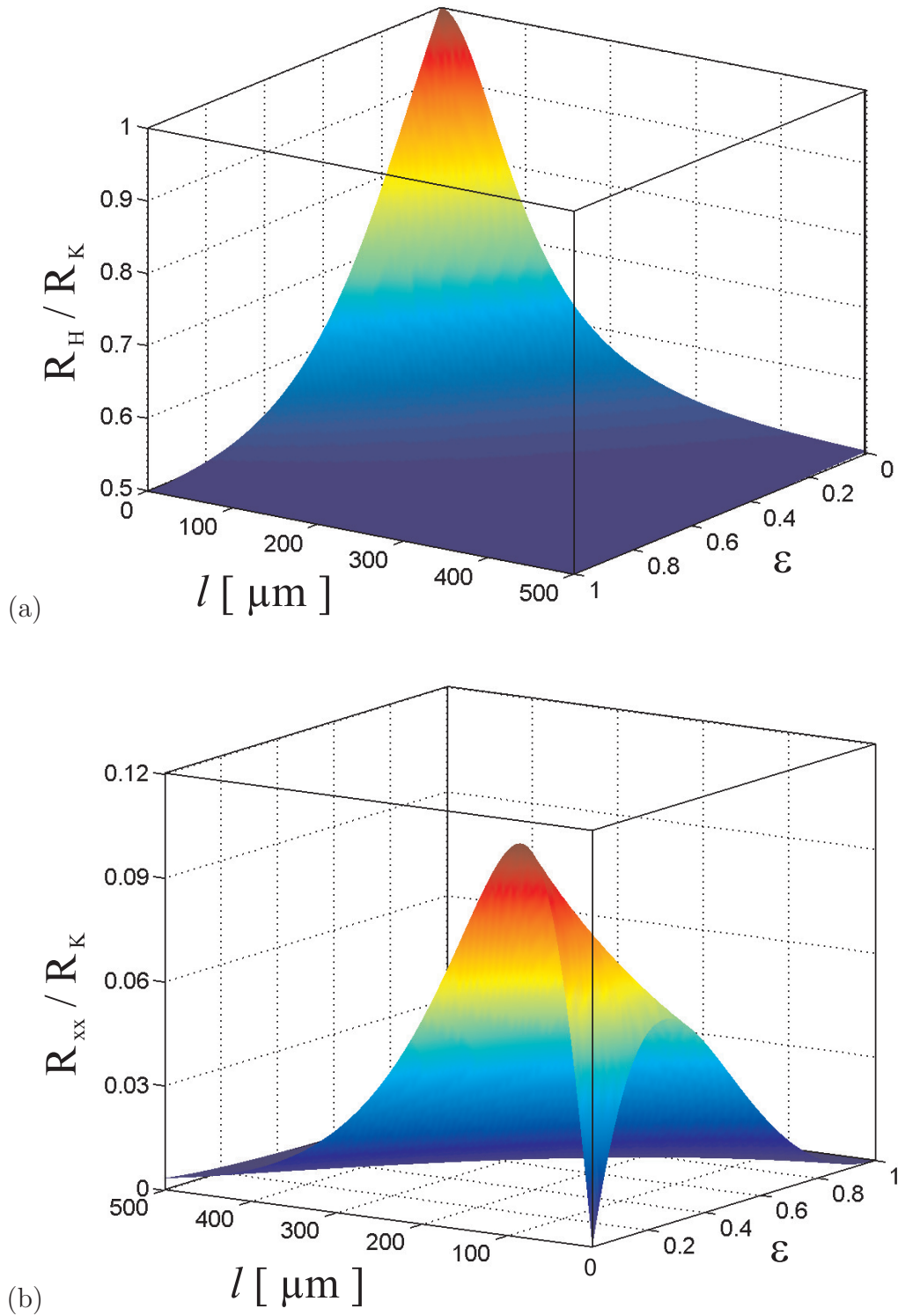


Abbildung 5.3. (a) Hallwiderstand R_H und (b) Längswiderstand R_{xx} normiert auf den Klitzing-Widerstand $R_K = h/e^2$ als Funktion der Minoritätsspinwahrscheinlichkeit ε und des Kontaktabstands l für Füllfaktor $\nu = 2$ bei einer angenommenen Equilibrierungslänge von $l_{eq} = 200 \mu\text{m}$.

Wie das eben dargestellte Verhalten von Hall- und Längswiderstand eines mit ZnMnSe-Kontakten versehenen 2DEG im Quanten-Hall-Regime deutlich macht, eignet sich der in 4-Punkt-Geometrie gemessene Längswiderstand nicht dazu, Aussagen über den Grad der Spininjektion oder der Spinequilibration zu treffen. Für den experimentellen Nachweis der Injektion spinpolarisierter Elektronen in ein zweidimensionales Elektronengas werden deshalb die Widerstandswerte der Hallplateaus bei ganzzahligen Füllfaktoren ν herangezogen.

5.3 Nachweis der Spininjektion im Quanten-Hall-Regime

Um den Hallwiderstand in dem in Abbildung 5.1 dargestellten System in Abhängigkeit vom Magnetfeld zu beschreiben, ist es nötig, Gleichung 5.7 auf beliebige ganzzahlige Füllfaktoren ν zu erweitern. Für ein 2DEG mit einer Ladungsträgerdichte n_s kann man den Füllfaktor bei einem äußeren Magnetfeld B gemäß Gleichung 3.28 durch $\nu = n_s h / e B$ berechnen. Die Kenntnis der durch den Füllfaktor gegebenen Zahl der Randkanäle erlaubt eine Berechnung der Reflexions- und Transmissionswahrscheinlichkeiten aus Gleichung 3.40 und 3.39 für verschiedene Magnetfelder. Die Wahrscheinlichkeit ε der Injektion von Minoritätsspinelektronen durch die ZnMnSe-Kontakte ist ebenfalls magnetfeldabhängig. Im äußeren Magnetfeld unterscheiden sich die Energien der beiden Spinzustände in den ZnMnSe-Kontakten in etwa um die in Gleichung 4.15 angegebene Zeeman-Aufspaltung ΔE_C des Leitungsbands von ZnMnSe. Liegt das Minoritätsspinniveau energetisch oberhalb des Fermi-niveaus, ist das Ziel einer nahezu vollständigen Spinpolarisation in den ZnMnSe-Kontakten erreicht. Während das Majoritätsspinniveau bis zur Energie E_F gefüllt ist, muss eine Besetzung des Minoritätsspinniveaus durch thermische Anregung erfolgen.

Durch Wahl einer Dotierung in der Nähe des Metall-Isolator-Übergangs kann ein Regime erreicht werden, in dem Majoritätsspin- und Minoritätsspinniveau als Zwei-Niveau-System behandelt werden können [Sch01]. Wie schon in Kapitel 2.2.2 dargelegt wurde, bildet sich im Halbleiter bei Dotierkonzentrationen knapp oberhalb der kritischen Mott-Konzentration n_C ein Störstellenband aus, das aufgrund der Spinentartung in erster Näherung nur halb gefüllt ist. Dieses Band ist vom Leitungsband energetisch getrennt, solange die Donatorkonzentration einen zweiten kritischen Wert von $5n_C$ nicht überschreitet. Die Zeeman-Aufspaltung im äußeren Magnetfeld führt innerhalb des Störstellenbands zu einer Umverteilung der Ladungsträger, bis sich schließlich das Minoritätsspinband vollständig entleert oberhalb von E_F befindet. Der Stromtransport wird nun ganz vom Majoritätsspinband getragen.

Die Zustandsdichte der Elektronen im Störstellenband weicht stark vom parabolischen Bandmodell ab. Nähert man die beiden um ΔE_C verschobenen Spinsubbänder durch δ -Funktionen an, ist die Interpretation als Zwei-Niveau-System gerechtfertigt. Wie bereits in Kapitel 4.5 beschrieben, ist das Verhältnis der Besetzungswahrscheinlichkeiten von Majoritätsspin- und Minoritätsspinniveau in Boltzmann-Näherung durch $P_\uparrow/P_\downarrow = \exp(-\Delta E_C/k_B T)$ gegeben. Die Wahrscheinlichkeit ε lässt sich mit Hilfe von Gleichung 4.20 als die Abweichung von der vollständigen Spinpolarisation der ZnMnSe-Kontakte schreiben.

$$\varepsilon = 1 - \frac{P_\downarrow - P_\uparrow}{P_\downarrow + P_\uparrow} = 1 - \frac{1 - e^{-\frac{\Delta E_C}{k_B T}}}{1 + e^{-\frac{\Delta E_C}{k_B T}}} = \frac{2}{1 + e^{\frac{\Delta E_C}{k_B T}}} . \quad (5.9)$$

Da $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ bereits bei kleinen Magnetfeldern einen sehr hohen Grad der Spinpolarisation aufweist, ist der Anteil der injizierten Minoritätsspinelektronen verschwindend gering. Für einen Mangananteil von $x = 4\%$ und eine Temperatur $T = 100\text{ mK}$ fällt der Wert der Wahrscheinlichkeit ε schon bei einem Magnetfeld von $B = 100\text{ mT}$ auf $8 \cdot 10^{-88}$.

In der hier gewählten Darstellung der Injektionswahrscheinlichkeit ε für Minoritätsspinelektronen wird nicht auf eine eventuelle Spin-Flip-Streuung im Material zwischen der ZnMnSe-Kontaktschicht und dem 2DEG eingegangen. An der Heterogrenzfläche zwischen ZnMnSe und den III-V-Halbleitern Ga(Al)As mag es sehr wohl zu spindephasierenden Streuprozessen kommen [Str02], die jedoch aufgrund zu geringer Erkenntnisse über die Verhältnisse an dieser heteropolaren Grenzfläche nicht in dem bestehenden Modell berücksichtigt werden können. Des Weiteren kann Spin-Flip-Streuung am Dipolpotential von Versetzungslinien in der Ebene des Heteroübergangs durch gitterangepasstes Wachstum von $\text{Zn}_{1-x-y}\text{Be}_y\text{Mn}_x\text{Se}$ auf GaAs weitgehend vermieden werden. Darüber hinaus ließen sich in GaAs bei geeigneter Dotierung in verschiedenen Experimenten Spinkohärenzlängen von mehreren Mikrometern nachweisen [Hae98, Kik99].

Im Folgenden wird anhand einer Simulation die Abhängigkeit des Hallwiderstands R_H vom Magnetfeld in einem der Spinequilibration unterworfenen Quanten-Hall-System mit spinpolarisierenden ZnMnSe-Kontakten veranschaulicht. Als Ladungsträgerdichte des 2DEG werden $n_s = 2 \cdot 10^{15}\text{ m}^{-2}$ angenommen, die Mangankonzentration des $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ sei $x = 4\%$. Die Temperatur der Probe betrage $T = 100\text{ mK}$. An einer Kontaktgeometrie nach Abbildung 5.1 werden für verschiedene Kontaktabstände l Modellrechnungen in dem gemäß Abschnitt 5.1 und 5.2 erweiterten Landauer-Büttiker-Formalismus durchgeführt. Das Modell für die Spinequilibration berücksichtigt nur Streuung unter benachbarten, spinaufgespaltenen Randkanälen. Da in GaAs die Zeeman-Aufspaltung erheblich kleiner als die Landau-Aufspaltung ist, überlappen

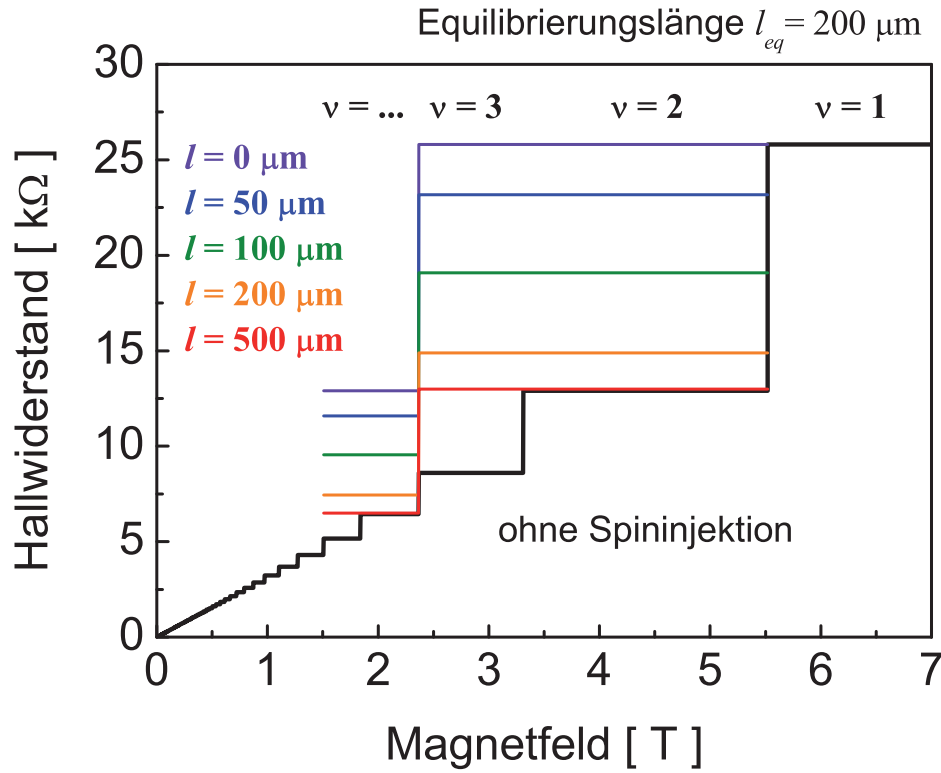


Abbildung 5.4. Simulation des Hallwiderstands in Abhängigkeit vom Magnetfeld für verschiedene Abstände l der sechs ZnMnSe-Kontakte bei einer angenommenen Equilibrierungslänge von $l_{eq} = 200 \mu\text{m}$. Zum Vergleich in Schwarz der Hallwiderstand bei Verwendung nicht spinpolarisierender Kontakte.

die Wellenfunktionen der Spinniveaus zu einem deutlich höheren Maße als die der Landauniveaus. Die Streuung zwischen unterschiedlichen Landauniveaus lässt sich deshalb vernachlässigen. Als Parameter für die Berechnung des Hallwiderstands R_H aus Gleichung 3.38 wird eine Spinequilibrierungslänge von $l_{eq} = 200 \mu\text{m}$ angenommen. Sie liegt damit in der Größenordnung experimentell bestimmter und theoretisch abgeschätzter Equilibrierungslängen vergleichbarer Systeme [Mül92].

Abbildung 5.4 zeigt das Ergebnis der Simulation. Für verschiedene Abstände l der ZnMnSe-Kontakte sind die Plateauwerte des Hallwiderstands R_H bei unterschiedlichen Füllfaktoren gegen das Magnetfeld aufgetragen. Zum Vergleich ist das erwartete Verhalten des Hallwiderstands für den Fall nicht spinpolarisierender Kontakte aufgetragen.

Bei Abwesenheit einer Spinequilibrierung zwischen spinaufgespaltenen Randkanälen, dargestellt durch einen verschwindenden Kontaktabstand $l = 0$, nimmt der Hallwiderstand höhere Werte als im Fall einer nichtpolarisierten Elektroneninjektion an.

Für einen Füllfaktor $\nu = 2$ ist der Hallwiderstand für nicht equilibrierte Spinströme $R_H = R_K$ gerade doppelt so groß wie für unpolarisierte Injektion ($R_H = R_K/2$). Bei vollständiger Spininjektion koppelt bei $\nu = 2$ nur ein Randkanal an die Kontakte und trägt so e^2/h zur Leitfähigkeit bei, der Kanal für Majoritätsspinelektronen. Mit steigendem Abstand l zwischen den ZnMnSe-Kontakten nimmt die Equilibrierung der Spinströme zu. Der Randkanal für Minoritätsspinelektronen kann durch Spin-Flip-Streuung an den transmittierten Majoritätsspinkanal ankoppeln und so zum Ladungstransport beitragen. Bei vollständiger Equilibrierung der Spinströme tragen beide Randkanäle vollwertig zum Stromfluss bei. Der Hallwiderstand nimmt ab und nähert sich für gerade Füllfaktoren ν exponentiell an den ohne Spininjektion üblichen Wert an.

Für ungerade Füllfaktoren ν verbleibt der Hallwiderstand im Modell auf dem Niveau des nächstkleineren, geraden Füllfaktors. Dies liegt unter anderem an dem unterschiedlichen Vorzeichen des g-Faktors von ZnMnSe und GaAs, wodurch die energetisch günstigere Spinsorte des 2DEG gerade die Minoritätsspinsorte des ZnMnSe ist und somit von den Kontakten nur mit einer Wahrscheinlichkeit ε zur Verfügung gestellt wird. Im 2DEG sind bei einem Füllfaktor $\nu = 3$ drei Spinkanäle am Fermi-niveau. Je ein Randkanal für Majoritätsspin- und Minoritätsspinelektronen lässt sich dem energetisch tieferen spinaufgespaltenen Landauniveau zuordnen, während ein weiterer Randkanal, der in GaAs die Majoritätsspinsorte trägt, bereits dem nächsthöheren Landauniveau angehört. Unter Vernachlässigung von Streuung zwischen verschiedenen Landauniveaus steht somit effektiv nur ein Randkanal zum Transport der Majoritätsspinelektronen der ZnMnSe-Kontakte sowie ein weiterer, Zeeman-abgespaltener Randkanal zur Verfügung, in den Elektronen gegebenenfalls durch Spin-Flip-Streuung equilibrieren können. Wird eine Spinequilibrierung unterdrückt, liegt somit nur ein stromführender Randkanal vor. Setzt Spinequilibrierung ein, trägt ein zweiter Randkanal zu einem der fortschreitenden Equilibrierung zwischen den Zeeman-aufgespaltenen Niveaus entsprechenden Grad zum ballistischen Transport bei. Das resultierende Hallplateau bei Füllfaktor $\nu = 3$ hat somit den selben Widerstandswert wie das bei Füllfaktor $\nu = 2$.

Dies wäre nicht der Fall, würde man Streuung zwischen verschiedenen Landauniveaus in das Modell mit einbeziehen. Der Hallwiderstand würde bei zunehmendem Kontaktabstand zwar auch für ungerade Füllfaktoren auf ohne Spininjektion bestimmte Werte absinken. Der Effekt würde sich jedoch, entsprechend der für Equilibrierung zwischen Landauniveaus vergleichsweise größeren Equilibrierungslänge, auf einer anderen Längenskala manifestieren.

Die in diesem Kapitel vorgestellten Modellrechnungen treffen Aussagen über zu erwartende Ergebnisse in Transportmessungen an strukturierten und mit spinpolarisierenden Kontakten versehenen 2DEG. Sie können so zum rein elektronischen Nachweis einer

erfolgreichen Spininjektion in zweidimensionale Elektronengase dienen. Um den vorhergesagten Effekt im Experiment beobachten zu können, sind Hallbarstrukturen mit Kontaktabständen unterhalb einer minimalen Equilibrierungslänge von $l_{eq} = 100 \mu\text{m}$ und Temperaturen niedriger als $T = 250 \text{ mK}$ nötig. Aus dem Vergleich von Experiment und Modellrechnung können Rückschlüsse über die temperaturabhängigen Equilibrierungslängen in den vermessenen 2DEG sowie die Effizienz der Spininjektion gezogen werden. Das Modell liefert allerdings keine allumfassende theoretische Behandlung des Experiments. So wird eine Equilibrierung über die Grenzen eines Landauniveaus hinweg, die, wenn auch auf einer deutlich größeren Längenskala und mit geringerer Wahrscheinlichkeit, auftreten kann, nicht berücksichtigt.

Die in diesem Modell gemachte Annahme gleicher Spinequilibrierungslängen l_{eq} für alle betrachteten Füllfaktoren ν stellt sicherlich eine Vereinfachung dar. Schließlich erhöht sich der Überlapp der Wellenfunktionen der spinaufgespaltenen Niveaus mit steigendem Füllfaktor ν entsprechend der bei fallendem Magnetfeld abnehmenden Zeeman-Aufspaltung im GaAs. Da diese Vereinfachung besonders für kleine Füllfaktoren durchaus brauchbar ist und keine genaueren Angaben für Equilibrierungslängen bei höheren Füllfaktoren vorliegen, stellt diese Annahme einen guten Startpunkt für weitere Experimente dar.

Bei der Bestimmung der Injektionswahrscheinlichkeit ε für Minoritätsspinelektronen wird nicht auf Effekte eingegangen, die auf Spinakkumulation beruhen. Kapazitive Effekte aufgrund einer Anhäufung von Majoritätsspinelektronen und eine daraus resultierende Bandverbiegung an der Grenzfläche vom ZnMnSe zum nichtmagnetischen Halbleiter können zu einer verminderten Zeeman-Aufspaltung im ZnMnSe führen [Sch04]. Die Wahrscheinlichkeit ε wird somit erhöht, was zu einer Ankopplung der Minoritätsspinsorte in den ZnMnSe-Kontakten an Randkanäle mit ungeraden Füllfaktoren ν führen kann. Diese Vorgänge treten vor allem bei höheren elektrischen Feldern auf. Die vorgestellten Modellrechnungen basieren allerdings auf der Annahme einer Quanten-Hall-Messung im Bereich der linearen Antwort. Es werden nur kleine elektrische Felder an die Probe angelegt ($V_{14} \leq 300 \mu\text{V}$), die die Eigenschaften des 2DEG nicht beeinflussen.

Darüber hinaus ist es durch eine ausreichend hohe Mangankonzentration in den ZnMnSe-Kontakten möglich, die vollständige intrinsische Spinpolarisation des ZnMnSe zu erhalten. Ebenso können die Spinakkumulations- und Bandverbiegungseffekte bei einer sorgfältigen Gestaltung der Bandstruktur am Heteroübergang vermieden werden [Sch04].

5.4 Die invertierte 2DEG-Struktur

Bei einem Experiment zum Nachweis der Spininjektion aus einem magnetischen Kontakt in eine 2DEG-Heterostruktur gilt es, die Spin-Flip-Streuung im spinpolarisierten Elektronen-Ensemble auf dem Weg zwischen Kontakt und der zweidimensionalen Transportschicht sowie im zweidimensionalen Elektronengas selbst so gering wie möglich zu halten.

In herkömmlichen GaAs/ $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Heterostrukturen, die bereits in Kapitel 3 behandelt wurden und in Schema 5.5(a) erneut illustriert sind, konnten durch optimierte Herstellungsverfahren sehr hohe mittlere freie Weglängen für Elektronen erreicht werden, die sich in gemessenen Elektronenbeweglichkeiten von mehr als $10 \cdot 10^6 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ niederschlagen. Je geringer die Anzahl der Streuvorgänge im Elektronengas ist, desto geringer ist auch die Wahrscheinlichkeit eines Spin-Flip. Für den Spintransport an sich wären Strukturen ideal, in denen das 2DEG beidseitig von einer modulationsdotierten Barriere umgeben ist, so dass sich ein symmetrisches Potential ausbildet. Eine strukturbedingte Asymmetrie gegen Inversion, die über die Spin-Bahn-Kopplung zur Spinstreuung beiträgt, könnte so vermieden werden.

In einem Spininjektionsexperiment müssen die spinpolarisierten Elektronen aus den ZnMnSe-Kontakten zunächst die modulationsdotierte Barriere zwischen 2DEG und Kontaktschicht durchtunneln. Die Potentialbarriere und auch die hohe Konzentration geladener Störstellen führen allerdings zu einer erhöhten Spinstreuung. Der Polarisationsgrad des injizierten Elektronenstroms würde dadurch deutlich abnehmen und eine erfolgreiche Spininjektion wäre nicht mehr nachweisbar. Für das vorgeschlagene Experiment wird eine Struktur angestrebt, bei der keine oder nur eine sehr geringe Tunnelbarriere zu durchdringen ist. Dies gelingt durch die Verwendung einer *invertierten* Struktur, wie sie Abbildung 5.5(b) schematisch zeigt. Die Reihenfolge der Halbleiterschichten ist hier gegenüber der nebenstehenden MDSI-Struktur vertauscht. Das 2DEG bildet sich zwischen der Oberfläche und der GaAs/ $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Grenzfläche aus und liegt somit oberhalb der modulationsdotierten $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Barriere.

Im Verlauf dieser Arbeit wurden mehrere invertierte 2DEG-Strukturen konzipiert, auf ihre Transporteigenschaften optimiert und schließlich mit ZnMnSe-Kontakten versehen. Um detaillierte Vorhersagen über die Bandstruktur der entwickelten Schichtstrukturen treffen zu können, wurden die Computerprogramme *1D-Poisson/Schrödinger* [Sni90a, Sni90b] und *nextnano*³ [Nex04] verwendet. Durch selbstkonsistentes Lösen einer ein- oder mehrdimensionalen Poissongleichung werden Banddiagramme und Ladungsträgerstatistiken im thermischen Gleichgewicht berechnet. Durch das Lösen der Schrödingergleichung werden diskrete Energieniveaus sowie die dazugehörigen Wellenfunktionen gebundener Zustände ermittelt.

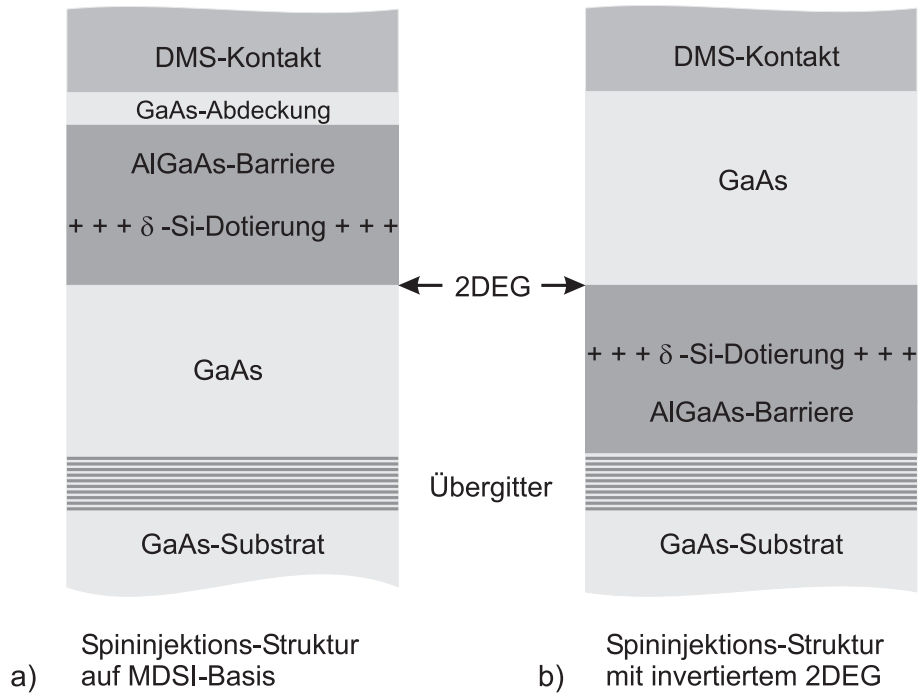


Abbildung 5.5. Schematische Gegenüberstellung der Schichtfolgen der DMS/2DEG-Spininjektionsstrukturen auf Basis einer MDSI-Heterostruktur (a) und auf Grundlage einer invertierten $\text{GaAs}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Heterostruktur (b). Die Schichtdicken sind nicht maßstabsgetreu.

Im Folgenden wird auf die drei wichtigsten Schichtdesigns und ihre Vor- und Nachteile eingegangen. Dabei werden auch experimentell gefundene Erkenntnisse angesprochen, die die Entwicklung der nachfolgenden Konzepte motiviert und beeinflusst haben. Die detaillierte Präsentation der Ergebnisse dieser Experimente erfolgt an anderer Stelle.

5.4.1 Das oberflächennahe invertierte 2DEG

Die erste Iteration einer invertierten 2DEG-Struktur basiert auf der Grundidee eines leitenden Kanals, der sich in geringem Abstand von etwa 40 nm von der Probenoberfläche befindet. Dieses Prinzip wird schon in MDSI-Strukturen dazu verwendet, die leitende Schicht zuverlässig zu kontaktieren und den Transport im oberflächennahen Kanal einfach zu manipulieren [Hel98]. Um zur Abschirmung des zweidimensionalen Leitungs Kanals von den Oberflächenzuständen genügend Ladungsträger bereitzustellen, werden meist mehrere deltadotierte Schichten nacheinander aufgebracht.

Bei der Entwicklung der Heterostruktur auf der Basis von GaAs und AlGaAs reicht es nicht aus, die III-V-Schichten in ihrer Eigenschaft als Träger des zweidimensionalen Elektronensystems für sich allein zu betrachten. Vielmehr muss ihre Eignung für Spininjektionsexperimente im Verbund mit einer aufgetragenen ZnMnSe-Kontaktschicht

im Vordergrund stehen. Abbildung 5.6(c) zeigt die Schichtfolge des im Rahmen dieser Arbeit entworfenen oberflächennahen invertierten 2DEG neben und unterhalb einer ZnMnSe-Kontaktsäule. Die Größe d gibt die Tiefe von der Probenoberfläche bzw. von der II-VI/III-V-Grenzfläche parallel zur Wachstumsrichtung an. Auf eine GaAs-Pufferschicht wird die $\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ -Barriere aufgebracht. Bei $d \approx 75 \text{ nm}$ befindet sich die Deltadotierung. Nach einer Spacer-Schicht von etwa 22 nm $\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ folgen 25 nm GaAs, in denen sich das Maximum der Elektronenwellenfunktion des zweidimensionalen Elektronengases befindet. Der Abstand des 2DEG von der Probenoberfläche beträgt somit nur etwas mehr als 50 nm .

An der (001)-orientierten Grenzfläche von GaAs zu ZnSe kommt es je nach Wachstumsbedingungen zu einem Sprung im Leitungsband von $100 - 700 \text{ meV}$ [Nic94]. Durch eine Beimischung von 10% Aluminium zu GaAs kann dieser Sprung auf nur 10 meV abgesenkt werden. Aus diesem Grund und um keine zusätzlichen Barrieren einzubauen, wird eine 20 nm dicke $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Anpassungsschicht mit einem linearen Anstieg des Aluminiumgehalts von $x = 0 - 10\%$ aufgebracht. Da eine entsprechende Erhöhung der Temperatur der Aluminium-Effusionszelle während des Wachstums der Anpassungsschicht technisch nicht realisierbar ist, wird das Prinzip einer digitalen Legierung angewendet. Zur Probenoberfläche hin wird der Wachstumsprozess von GaAs in immer kürzer werdenden Abständen von einer Atomlage $\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ unterbrochen, bis sich ein mittlerer Aluminiumgehalt von $x = 10\%$ einstellt.

Obwohl ein direkter Übergang von der $\text{Al}_{0,1}\text{Ga}_{0,9}\text{As}$ -Schicht zu ZnMnSe wünschenswert wäre, wird das III-V-Wachstum von einer dünnen GaAs-Schicht abgeschlossen. Diese dient der ansonsten zwischen den ZnMnSe-Kontakten freiliegenden AlGaAs-Schicht als Schutz vor Oxidation. Die Oberflächenzustände des GaAs halten die Leitungsbandunterkante auf einem Wert von etwa $0,7 \text{ eV}$ fest. Um den leitenden Kanal der invertierten 2DEG-Struktur von den Oberflächenzuständen des Halbleiters abzuschirmen, ist die GaAs-Abdeckschicht sehr stark dotiert.

Das Ergebnis einer Schrödinger/Poisson-Simulation des im Rahmen dieser Arbeit entworfenen oberflächennahen invertierten 2DEG ist in den Graphen 5.6(a)-(b) zu sehen. Der Leitungsbandverlauf E_C , das Fermi-niveau E_F und die Wellenfunktionen der gebundenen Zustände Ψ_n sind gegen den Abstand d von der Grenze der III-V-Heterostruktur zum Vakuum bzw. zu einer aufgetragenen ZnMnSe-Kontaktschicht aufgetragen. Abbildung 5.6(a) stellt die Struktur zwischen den strukturierten Kontaktsäulen dar. Durch die hohe Dotierung der abdeckenden n^+ -GaAs-Schicht wird der Energieunterschied zwischen Leitungsband und Fermi-niveau innerhalb weniger Nanometer überwunden. Im dreieckigen Potentialtopf bildet sich ein gebundener Zustand aus. Darstellung 5.6(b) zeigt die Situation nach dem Wachstum der ZnMnSe-Kontaktschicht. Für den sich an

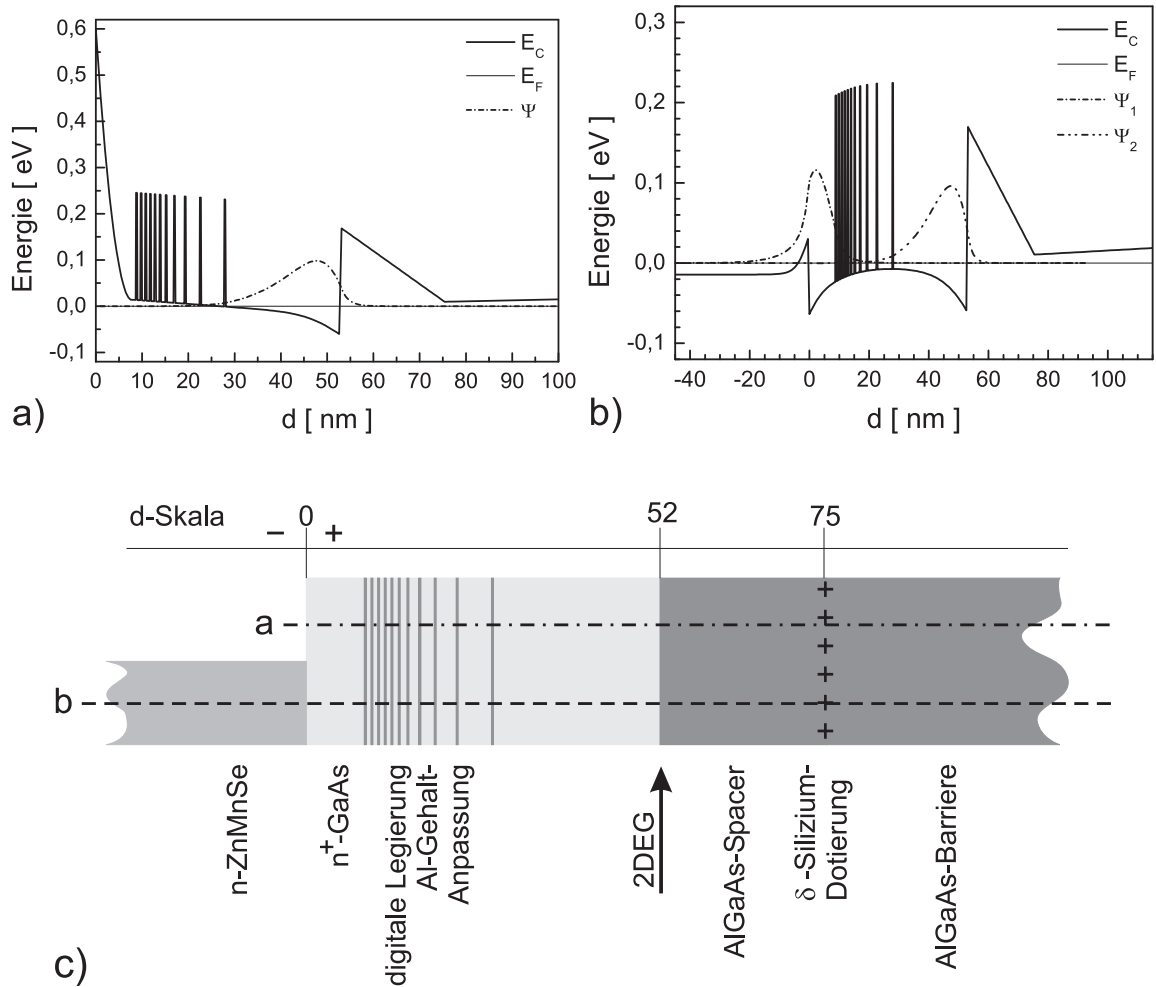


Abbildung 5.6. Ausschnitt des errechneten Leitungsbandverlaufs einer oberflächen-nahen inversen 2DEG-Struktur, (a) an der Vakuumgrenzfläche, (b) zwischen einer aufgewachsenen ZnMnSe-Kontaktschicht und der δ -Dotierung in Abhängigkeit von der Tiefe d in Wachstumsrichtung. Die Wellenfunktionen der Elektronen in den gebundenen Zuständen sind dem Potentialverlauf überlagert. (c) Schematische Schichtfolge der inversen 2DEG-Struktur mit ZnMnSe-Kontakt. Die Längenskala in Wachstumsrichtung ist zum Vergleich mit markanten Punkten skizziert. Der besseren Übersicht halber erstreckt sich die DMS-Schicht in negative Bereiche von d . Die Linien a und b bezeichnen die Schnittachsen entlang derer die entsprechende Berechnungen erfolgten.

der ZnMnSe/GaAs-Grenzfläche ausbildenden Sprung im Leitungsband wird ein Wert von 100 meV angenommen. Der größte Teil der Stufe liegt unterhalb der Fermienergie, so dass die Elektronen in beide Richtungen lediglich eine kleine Barriere durchqueren müssen.

Folgende Vorteile dieser Struktur vereinfachen den Ladungsträgertransport aus dem ZnMnSe-Kontakt in das 2DEG und in umgekehrte Richtung. Die hohe Dotierung der GaAs-Abdeckschicht hilft versetzungsbedingte Grenzflächendipole abzusättigen. Die li-

neare Anpassung des Aluminiumgehalts optimiert den Leitungsbandversatz zu ZnMnSe ohne eine Potentialbarriere zwischen Kontakt und zweidimensionaler Ladungsträgerschicht einzufügen. Da die räumliche Ausdehnung der Wellenfunktionen der Elektronen viel größer ist als die Dicke der einzelnen GaAs- und $\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ -Schichten gilt für die Elektronen effektiv ein gemittelter Leitungsbandverlauf. Schließlich erlaubt die vertauschte Materialreihenfolge an der $\text{GaAs}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Grenzfläche, dass sich der dreieckförmige Potentialtopf, der das zweidimensionale Elektronengas enthält, oberhalb der deltadotierten $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Barriere ausbildet.

Die vorgestellte Struktur für ein oberflächennahes invertiertes 2DEG birgt allerdings auch einige Nachteile im Hinblick auf ihre Eignung für Spininjektionsexperimente und hinsichtlich der Transporteigenschaften des zweidimensionalen Kanals. Das Wachstum von $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ auf einer GaAs-Oberfläche führt grundsätzlich zu besseren Resultaten als das Wachstum in umgekehrter Reihenfolge. Demzufolge erreicht die invertierte Heterogrenzfläche nicht die Qualität der Grenzfläche bei herkömmlicher Schichtfolge. Die Elektronenbeweglichkeiten von invertierten Strukturen sind dadurch schlechter als die nicht invertierter Strukturen. Überdies ist die Ladungsträgerdichte im zweidimensionalen Kanal nicht mehr nur von der Höhe und dem Abstand der Deltadotierung abhängig, sondern auch von der Dotierung der GaAs-Abdeckschicht. Es liegt konstruktionsbedingt keine Barriere vor, die eine Diffusion von Elektronen aus der Abdeckschicht in das 2DEG verhindern könnte. Die zur Absättigung der Oberflächenzustände nötige Höhe der Dotierkonzentration der GaAs-Abdeckschicht ist darüber hinaus nicht mehr durch eine herkömmliche Volumendotierung, sondern nur durch zusätzlich in die volumendotierte Schicht eingebrachte Deltadotierungen zu bewerkstelligen. Da dieses Verfahren sehr sensibel auf kleine Änderungen in den Wachstumsbedingungen reagiert, stellt die reproduzierbare Herstellung von Proben mit definierter Ladungsträgerdichte und Elektronenbeweglichkeit eine hohe Herausforderung dar. Die überaus hohe Konzentration an ionisierten Störstellen in der GaAs-Abdeckschicht verringert die Spinrelaxationszeit in diesem Material um mehrere Größenordnungen [Dzh02]. Die Symmetriebrechung durch den mehrfachen Materialwechsel in der digitalen Legierschicht sowie die Anzahl der zu durchquerenden Grenzflächen kann ebenfalls zu einer erhöhten Spinstreuung beitragen.

Der vorgestellte Aufbau eines oberflächennahen invertierten 2DEG stellt eine richtungsweisende, wenn auch nicht ideale Lösung dar. Es gilt nunmehr das Konzept hinsichtlich der Transporteigenschaften der zweidimensionalen Ladungsträgerschicht und des widerstandsarmen und spinerhaltenden Transfers der Elektronen aus der ZnMnSe-Kontaktschicht in den Potentialtopf, nicht zuletzt aber auch im Hinblick auf die Güte und die Reproduzierbarkeit der Probenherstellung zu optimieren.

5.4.2 Das tiefliegende invertierte 2DEG

Um die Transporteigenschaften des invertierten 2DEG unabhängig von Oberflächeneffekten zu verbessern und eine reproduzierbar herstellbare Plattform für weitere Strukturen zu liefern, wurde eine invertierte 2DEG-Struktur entworfen, die auf die Anpassungsschicht für den Aluminiumgehalt und die hochdotierte GaAs-Abdeckschicht verzichtet. Das Schichtsystem besteht, wie schon in Schema 5.5(b) gezeigt, im Wesentlichen nur noch aus dem invertierten GaAs/ $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Heteroübergang und der darunter liegenden Deltadotierung.

Die Ladungen in den Oberflächenzuständen von GaAs fixieren die Leitungsbandunterkante an der Materialoberfläche bei etwa 0,7 eV oberhalb der Fermienergie. Ein zweidimensionales Elektronengas kann sich an der GaAs/ $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Grenzfläche nur dann ausbilden, wenn die Energie des Leitungsbands dort lokal unterhalb des Fermi-niveaus liegt. Dies wird erreicht, indem die Ladungen in den Oberflächenzuständen durch die mit der Deltadotierung in das $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ eingebrachten Ladungen kompensiert werden. Die Höhe der Dotierkonzentration und der Abstand der Deltadotierung von der GaAs/ $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Grenzfläche geben die Höhe des intrinsischen elektrischen Felds vor, das gleich der Änderung der Leitungsbandenergie pro Längeneinheit ist. Will man einen parallelen Leitungskanal in der dotierten $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Region vermeiden, ist die Flächendichte der Donatoratome und somit die Höhe des intrinsischen elektrischen Felds nach oben hin begrenzt. Um so die Energiedifferenz im Leitungsband von mindestens 0,7 eV zwischen der Oberfläche und dem 2DEG zu überwinden, muss der Abstand des 2DEG von der Oberfläche hinreichend groß gewählt werden. Im tiefliegenden invertierten 2DEG bildet sich die zweidimensionale Ladungsträgerschicht in einer Tiefe von 400 nm aus.

Die Beschränkung der Struktur auf die invertierte Grenzfläche ermöglicht eine unabhängige Optimierung der Transporteigenschaften der zweidimensionalen Ladungsträgerschicht. Durch Variation von Dotierkonzentration und Spacer-Dicke sowie der Wahl geeigneter Parameter für das epitaktische Wachstum kann die Elektronenbeweglichkeit reproduzierbar um zwei Größenordnungen gesteigert werden. Die verringerte Streurate begünstigt auch den Spintransport. Der Verzicht auf die dotierte Abdeckschicht führt zu einer verringerten Ladungsträgerdichte im 2DEG. Dies ermöglicht die Beobachtung der gesuchten Effekte bei kleineren und somit technisch einfacher realisierbaren Magnetfeldern.

Von nachteiliger Wirkung ist vor allem der Wegfall einer Übergangsschicht zu einem höheren Aluminiumgehalt an der Grenzfläche zur ZnMnSe-Kontaktschicht anzusehen. Die Elektronen müssen so die bedeutend höhere Potentialstufe an der Grenzfläche von GaAs zu ZnMnSe überwinden.

Durch die im Gegensatz zum oberflächennahen invertierten 2DEG größere Tiefe des leitenden Kanals muss das spinpolarisierte Elektronenensemble auf dem Weg von der ZnMnSe-Kontaktschicht zum 2DEG eine deutlich dickere, nominell undotierte GaAs-Schicht durchqueren. Bei einer herstellungsbedingten, üblichen Hintergrunddotierung des GaAs ist die Spinrelaxationszeit ([Dzh02]) allerdings hinreichend groß, um eine Zerstörung der Spinpolarisation zu vermeiden.

5.4.3 Die Injektorstruktur

Eine Kooperation mit dem Lehrstuhl für Experimentelle Physik III unter Prof. Dr. Laurens Molenkamp an der Universität Würzburg gestattete die Nutzung einer Molekularstrahlepitaxieanlage (MBE), in der je eine Wachstumskammer für $\text{Zn}_{1-x-y}\text{Be}_y\text{Mn}_x\text{Se}$ und $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ durch einen Ultrahochvakuumtunnel miteinander verbunden sind. Dies ermöglicht eine gezielte Präparation der Oberfläche der abschließenden Schicht der III-V-Heterostruktur und ein sofortiges Überwachsen mit dem semimagnetischen II-VI-Verbindungshalbleiter, ohne die III-V-Halbleiteroberfläche zu passivieren und das Vakuum zu brechen. Darüber hinaus kann gitterangepasstes $\text{Zn}_{1-x-y}\text{Be}_y\text{Mn}_x\text{Se}$ als Spinausrichter verwendet werden.

Das optimierte tiefliegende invertierte 2DEG weist vielversprechende Transporteigenschaften im zweidimensionalen Elektronenkanal auf. Die Barriere im Leitungsband an der Grenzfläche des n-dotierten ZnMnSe zum intrinsischen GaAs schränkt die aus der ZnMnSe-Kontaktschicht in die GaAs/ $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Heterostruktur ein und stellt den Erfolg des Experiments in Frage. Es wurde deswegen eine Injektorstruktur konzipiert, die den spinerhaltenden Übergang der Ladungsträger aus der semimagnetischen Kontaktschicht in das 2DEG gewährleisten soll. Diese Struktur verfolgt den Ansatz, den Verlauf des Leitungsbands zwischen dem Spinausrichter und dem zweidimensionalen Kanal so flach wie möglich zu gestalten. Zwischen den Kontakten soll der Injektor keinen Einfluss auf die Funktion des 2DEG nehmen. Das Schema 5.7(a) skizziert die Schichtfolge der tiefliegenden invertierten 2DEG-Heterostruktur mit Injektor und einer aufgetragenen ZnMnSe-Kontaktschicht. Die Tiefenskala d entlang der Wachstumsrichtung wird abermals von der II-VI/III-V-Grenzfläche ausgehend aufgetragen und zeigt markante Stationen des Schichtwachstums.

An die deltadotierte $\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ -Barriere schließt sich eine etwa 100 nm dicke Schicht aus reinem GaAs an, in dem sich die zweidimensionale Ladungsträgerschicht ausbildet. Ähnlich der oberflächennahen invertierten Struktur folgt eine $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Schicht, in der der Aluminiumgehalt x kontinuierlich bis zu einem Wert zwischen 11 % und 15 % erhöht wird, der einen minimalen Leitungsbandversatz zu $\text{Zn}_{1-x-y}\text{Be}_y\text{Mn}_x\text{Se}$ in der

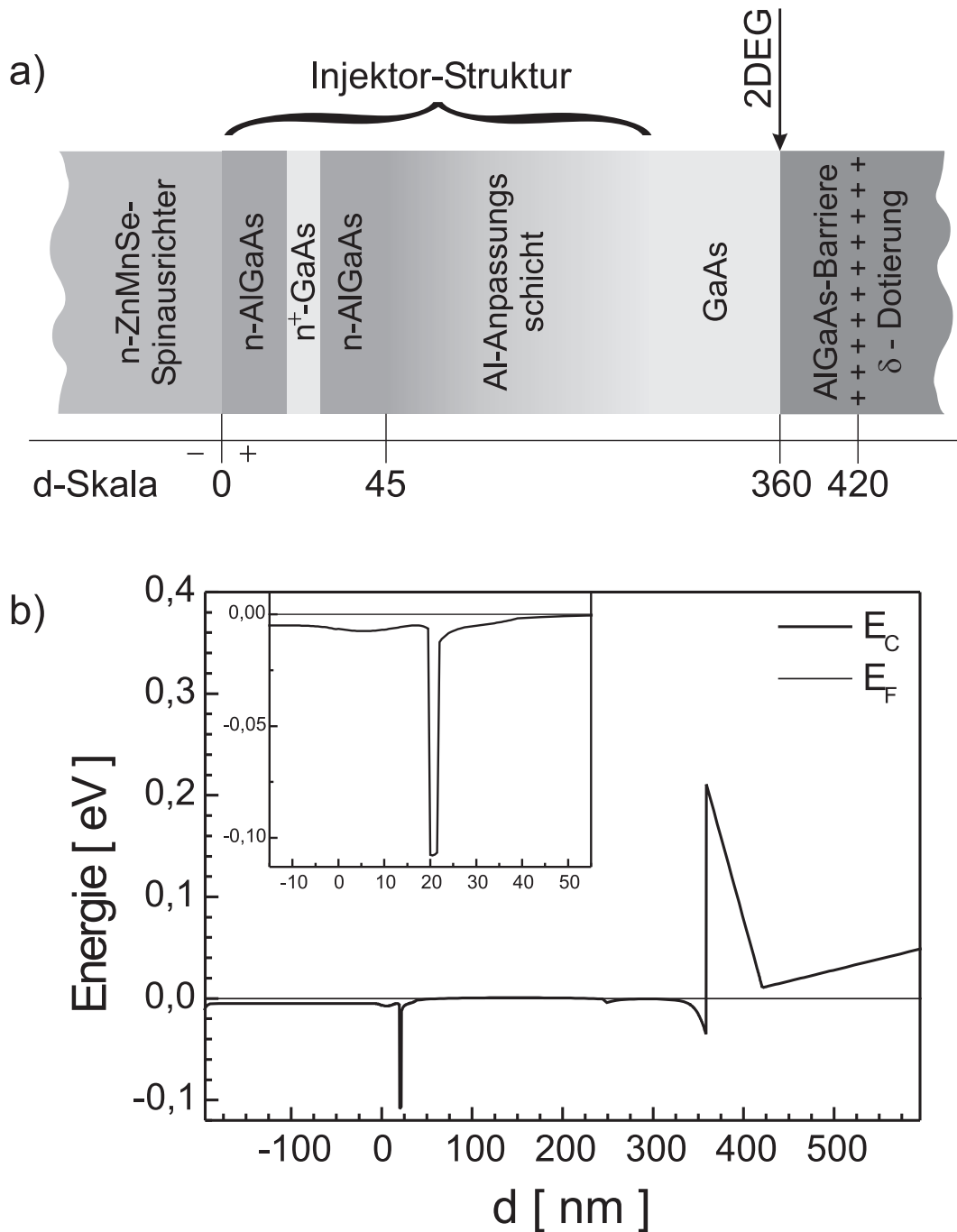


Abbildung 5.7. (a) Nicht maßstabsgetreue Skizze der Schichtfolge einer tiefliegenden invertierten 2DEG-Struktur, versehen mit einer Injektorstruktur und einer ZnMnSe-Kontaktschicht. Die Längenskala d in Wachstumsrichtung ist zur besseren Übersicht mit markanten Punkten versehen. Der Nullpunkt der d -Skala kennzeichnet den II-VI/III-V-Übergang. Die DMS-Schicht erstreckt sich in den negativen Bereich von d . (b) Errechneter Verlauf des Leitungsbands E_C und der Fermienergie E_F im gezeigten Ausschnitt der Schichtfolge. Die vergrößerte Darstellung gibt eine bessere Übersicht über den Bandverlauf am Übergang von der ZnMnSe- zur Injektorschicht.

gewählten Stöchiometrie verspricht. Im Vergleich zu einer bereits beschriebenen digitalen Legierung hat eine kontinuierliche Anpassungsschicht eine größere Dicke von mehr als 200 nm, je nach Wahl der Parameter. Die Erhöhung des Aluminiumgehalts wird über eine Temperatursteigerung der Effusionszelle und somit des emittierten Teilchenflusses erzielt. Dieser Vorgang erfolgt während des Wachstums und benötigt eine endliche Zeit. Mit dem gleichen Aluminiumgehalt wird nun eine 20 nm dicke, dotierte Schicht mit einer Ladungsträgerdichte von etwa $1 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ aufgebracht. Die Wahl der Dotierung im Bereich des Metall-Isolator-Übergangs des Materials hat die Aufgabe, die Spinrelaxationszeit zu maximieren. Ein analoger Zusammenhang wird auch in dotiertem GaAs beobachtet [Kik98]. Zum Schutz der Heterostruktur vor tieferreichender Oxidation bei dem mehrstündigen Transfer von der institutseigenen Epitaxiekammer zum Kooperationspartner wird abschließend eine möglichst dünne GaAs-Abdeckschicht aufgebracht. Im gekoppelten MBE-System für III-V- und II-VI-Halbleiter des Kooperationspartners wird zunächst eine weitere, schwach dotierte $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Schicht mit dem entsprechenden Aluminiumgehalt gewachsen. Auf die frisch präparierte Oberfläche des III-V-Halbleiters wird nach dem Transfer unter Ultrahochvakuum die n-leitende $\text{Zn}_{1-x-y}\text{Be}_y\text{Mn}_x\text{Se}$ -Spinausrichterschicht aufgebracht.

Als Ergebnis der Bandstrukturberechnungen zeigt Graph 5.7(b) den simulierten Leitungsbandverlauf E_C und die Lage des Fermi-niveaus E_F der vorgestellten Struktur. Der zusätzliche Ausschnitt stellt die Verhältnisse am Übergang von $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ zur III-V-Injektorstruktur vergrößert dar. Zur besseren Anpassung der Leitungsbandstruktur wird für die GaAs-Abdeckschicht eine Dotierung von etwa $2 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ gewählt. Die Spinrelaxationszeit wird dadurch beträchtlich verkürzt. Im Vergleich zur Abdeckschicht der oberflächennahen invertierten Struktur stellt die um eine Größenordnung geringere Dotierung hinsichtlich des Spintransports jedoch einen Fortschritt dar. Bei einer geringeren Dotierung des GaAs, die für den Spintransport vorteilhafter wäre, würde aufgrund der Leitungsbanddiskontinuität an den Grenzflächen zu $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ das Leitungsband über das Fermi-niveau gehoben und eine Potentialbarriere entstehen. Um das Auftreten gebundener Elektronenzustände am Ort der in der fertigen Struktur vergrabenen GaAs-Abdeckschicht zu verhindern, wird ihre Dicke auf 2 nm begrenzt. Steht ein korrosionsbeständiges und für weitere Epitaxieprozesse rückstandsfrei entfernbare Verfahren zur Abdeckung der $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Oberfläche zur Verfügung, kann auf eine GaAs-Abdeckschicht verzichtet werden. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit durchgeführte Experimente erfolgten an beiden Varianten.

Das mit einer Injektorstruktur versehene tiefliegende invertierte 2DEG vereint viele Voraussetzungen für eine Injektion spinpolarisierter Elektronen aus einer Spinausrichterschicht in ein zweidimensionales Elektronengas. Die Potentialstufe im Leitungsband

am Heteroübergang von $\text{Zn}_{1-x-y}\text{Be}_y\text{Mn}_x\text{Se}$ zu $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ kann bei geeigneter Wahl der Stöchiometrie auf ein Minimum begrenzt werden, so dass sie weder bei der Injektion noch bei der Extraktion der Ladungsträger ein Hindernis darstellt. Die gewählte Dotierung der $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Schichten des Injektors sorgt für eine lange Spinrelaxationszeit bei guter Leitfähigkeit. Durch die kontinuierliche Anpassung des Aluminiumgehalts kann auf eine Vielzahl von $\text{GaAs}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Grenzflächen verzichtet und somit eine weitere Quelle der Spinstreuung eliminiert werden. Die sehr guten Transporteigenschaften des tiefliegenden invertierten 2DEG ermöglichen eine große Spinequilibrationslänge im zweidimensionalen Kanal.

Zusammenfassend steht mit der hier vorgestellten Heterostruktur ein geeignetes Werkzeug zur Verfügung, um das zum Nachweis der Spininjektion angestellte Experiment zu realisieren und den in Abschnitt 5.3 beschriebenen Effekt zu beobachten.

Kapitel 6

Experimentelle Aufbauten und Methoden

Die Herstellung der in dieser Arbeit behandelten Halbleiterstrukturen erfolgte ausschließlich mittels Molekularstrahlepitaxie (MBE, von engl.: **M**olecular **B**eam **E**pitaxy). Für das Wachstum der GaAs/ $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Heterostrukturen wurde eine in einigen Punkten modifizierte modulare Gen-II-Anlage der Firma Veeco verwendet. Genauere Angaben des speziell für die Herstellung hochbeweglicher Elektronenstrukturen konzipierten Systems sind bereits an anderer Stelle veröffentlicht [Rei05]. Das Wachstum eines Großteils der ZnSe- und ZnMnSe-Schichten fand in einer am Institut selbst entworfenen und gebauten Epitaxiekammer für II-VI-Halbleiter statt [Rei96]. Diese Anlage mit ihren Komponenten wird im Verlauf dieses Kapitels eingehender präsentiert.

Die Charakterisierung der Proben erfolgt bereits in-situ durch Reflexionsbeugung hochenergetischer Elektronen RHEED (**R**eflection **H**igh **E**nergy **E**lectron **D**iffraction). Die angewendeten ex-situ Untersuchungsmethoden umfassen die Röntgendiffraktometrie XRD (**X**-**R**ay **D**iffraction) sowie magnetfeldabhängige Photolumineszenz- und Transportexperimente zur Bestimmung der strukturellen, magnetischen und elektronischen Eigenschaften der Halbleiterstrukturen.

6.1 Molekularstrahlepitaxie-Anlage

6.1.1 Allgemeines zur MBE

Die Molekularstrahlepitaxie ist eine inzwischen weit etablierte Ultrahochvakuum-Verdampfungs-technik zur Herstellung dünner, epitaktischer Strukturen. Sie wird besonders in der Grundlagenforschung für das Wachstum definierter Halbleiterheterostrukturen, dünner Metallschichten und anderer kristalliner Materialien eingesetzt. In Effusionszellen werden hochreine ($> 99,9999\%$) Ausgangsstoffe thermisch verdampft und gelangen als gerichtete Strahlen von Atomen oder Molekülen auf ein Substrat von definierter Kristallstruktur, Oberflächenorientierung und -morphologie. Die mittlere freie Weglänge der Moleküle ist dabei deutlich größer als der Abstand zwischen den Effusionszellen und dem Substrat. Die Kristallisation erfolgt über Reaktionen der Moleküle in der Gasphase mit der Oberfläche des Substrats, das auf einer geeigneten Temperatur gehalten wird. Die Wachstumsrate ist mit bis zu $1\text{ }\mu\text{m}$ pro Stunde gering genug, um eine Migration der ankommenden Atome auf der Substratoberfläche zu ermöglichen. Die Oberfläche des gewachsenen Films weist dadurch nur eine geringe Rauigkeit auf. Eine gezielte Kontrolle der Materialflüsse erlaubt die Herstellung atomar glatter Heterogrenzflächen.

Die Komposition der abgeschiedenen Epischicht lässt sich durch das relative Verhältnis der Molekülflüsse der konstituierenden Elemente und Dotierstoffe definieren. Die hohe Reinheit und strukturelle Qualität wird erreicht, indem sich nur wenige ungewollte Verunreinigungen aus dem Restgas an der Substratoberfläche anlagern und dort in die Epischicht eingebaut werden. Die Zahl der Restgasmoleküle, die pro Flächen- und Zeiteinheit auf dem Substrat auftreten, muss deshalb um mehrere Größenordnungen (Faktor 10^{-5}) geringer als die Partikelflüsse der Aufdampfmaterialien sein. Die für einen MBE-Prozess von höchster Qualität nötige Voraussetzung einer geringen Restgasdichte erfordert die Erzeugung eines Ultrahochvakuums (UHV) mit einem Hintergrunddruck von $p < 2 \cdot 10^{-11}$ mbar in der Wachstumskammer. Die Anforderungen an die apparative Gestaltung der MBE-Anlage sind entsprechend hoch.

Im UHV herrscht eine weitgehende thermische Trennung der Effusion in den Verdampferquellen von der Kristallisation der Moleküle auf dem Substrat. Das MBE-Wachstum erfolgt deshalb weit ab vom thermodynamischen Gleichgewicht. Es wird vor allem durch die Kinetik der Oberflächenprozesse bei der Reaktion der auftreffenden Molekülstrahlen mit der obersten Atomlage des Substrats dominiert. Hierdurch können Interdiffusionseffekte minimiert und atomar scharfe Grenzflächen zwischen Schichten unterschiedlicher chemischer Zusammensetzung in einer Heterostruktur erzielt werden.

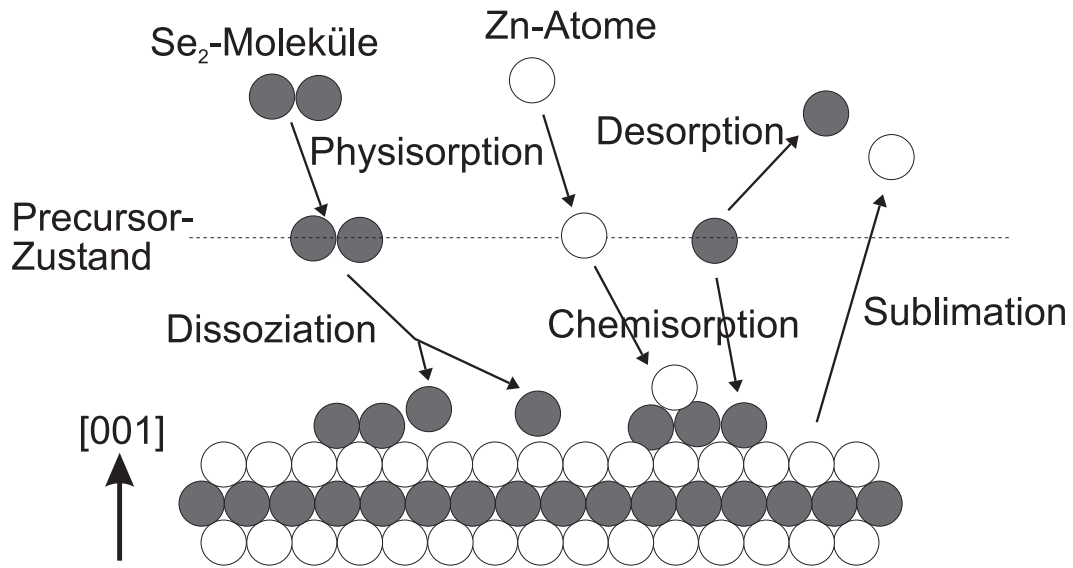


Abbildung 6.1. Oberflächenprozesse beim MBE-Wachstum von ZnSe nach [Zhu89].

Während es nicht möglich ist, eine globale Gleichgewichtsbedingung für das MBE-Wachstum zu formulieren, lässt sich in einer oberflächennahen Grenzschicht zwischen Gasphase und Festkörper ein partielles und in lateral begrenzten Bereichen der Kristalloberfläche ein lokales Gleichgewicht definieren [Mad83]. Das Schichtwachstum ist in verschiedene Einzelprozesse unterteilbar. Ankommende Gasteilchen der Molekularstrahlen werden durch van der Waals-Kräfte an die Oberfläche gebunden. Sie erfahren so eine *Physisorption* in einen *Precursorzustand*, der zum einen durch eine hohe Beweglichkeit und eine leichte thermische *Desorption* gekennzeichnet ist, sich zum anderen aber auch durch eine geringe Potentialbarriere für einen Einbau in das Kristallgefüge auszeichnet. Diese als *Chemisorption* bezeichnete Phase setzt durch Ausbildung einzelner chemischer Bindungen (ionisch oder kovalent) zur Festkörperoberfläche ein. Gelangen Adatome wie Selen oder Arsen als Moleküle in den Precursorzustand, geht der Chemisorption deren Zersetzung voraus:



Im chemisorbierten Zustand verfügen adsorbierte Atome oder Cluster über eine markante Beweglichkeit, die zwar geringer als im physisorbierten Fall, jedoch deutlich größer als bei Festkörperbestandteilen ist. Die Dichte chemisorbierter Atome verringert sich, indem sie sich durch *Sublimation* zurück in den Precursorzustand von der Oberfläche lösen. Haben Adatome allerdings alle Bindungen zu den nächsten Nachbarn vollzogen, sind sie vollständig in den Festkörper eingefügt. Der Ablauf des MBE-Wachstums und die daran beteiligten Prozesse in der Grenzschicht sind in Abbildung 6.1 anhand der

Homoepitaxie von ZnSe skizziert [Zhu89]. Die räumliche Ausdehnung der Grenzschrift beträgt je nach Material und Wachstumsparametern zwischen zwei und drei Monolagen [Her89].

6.1.2 Epitaktische Wachstumsmodi

Die oben angeführten Betrachtungen zur Homoepitaxie beziehen sich auf das Abscheiden der in den Molekülstrahlen angelieferten Einzelbestandteile auf der schon vorhandenen Oberfläche eines Halbleitersystems. Insbesondere bei der Molekularstrahlepitaxie von II-VI-Halbleitern verwendet man meist ein Substratmaterial, das sich von dem Material der Epitaxie-Schicht unterscheidet. Man bezeichnet diesen Prozess als Heteroepitaxie. Mit entscheidend für die spätere Qualität der Epischicht ist das anfängliche Wachstum des II-VI-Halbleiters auf dem III-V-Substrat. Anhand der morphologischen Formation der Kristalloberfläche lassen sich drei epitaktische Wachstumsmodi unterscheiden, die in Abbildung 6.2 illustriert sind [Ven84].

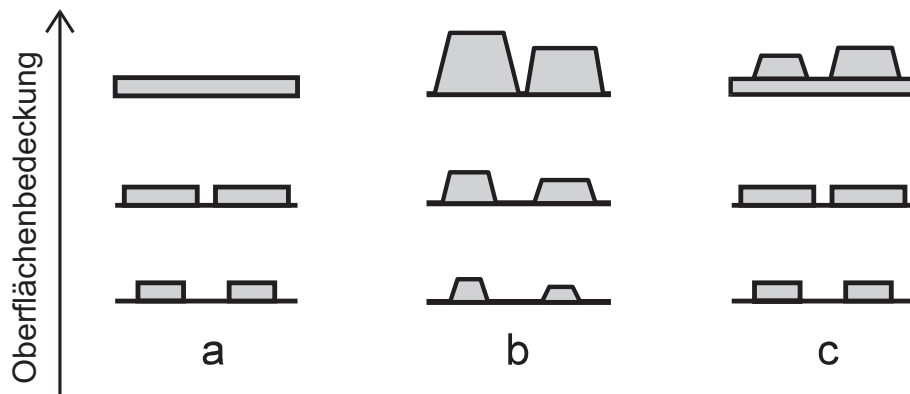


Abbildung 6.2. Unterschiedliche Wachstumsmodi in der Epitaxie nach [Ven84]: (a) Frank-van der Merwe-Wachstum, (b) Volmer-Weber-Wachstum, (c) Stranski-Krastanow-Wachstum.

Das *Frank-van der Merwe*-Wachstum bezeichnet ein zweidimensionales Wachstum aufeinander folgender Atomlagen [Fra49]. Ist eine Bindung zwischen Substrat- und Schichtatomen energetisch günstiger als zwischen benachbarten Schichtatomen, folgt einer flächigen Keimbildung im Idealfall zunächst das Zusammenwachsen einer geschlossenen Monolage, bevor das Wachstum der nächsten Atomlage begonnen wird. Dieser Modus ist zur Herstellung von Quantenfilmen mit geringer Grenzflächenrauigkeit am besten geeignet. Ist die Wechselwirkung benachbarter Schichtatome untereinander stärker als zwischen Schicht- und Substratatomen, spricht man von *Volmer-Weber*-Wachstum [Vol26]. An den Nukleationszentren auf der Substratoberfläche bilden sich bevorzugt dreidimensionale Keime, an denen sich weitere Schichtatome zu stabilen Inseln anla-

gern. Dazwischen befindet sich anfangs noch unbedecktes Substrat. Im weiteren Verlauf expandieren größere auf Kosten kleinerer Inseln und wachsen in einer Koaleszenzphase zu einem Netzwerk zusammen. Eine epitaktische, homogene Schicht kommt erst durch Auffüllen der Zwischenräume zustande. An der Kontaktfläche zusammenwachsender Inseln können während der Koaleszenz unerwünschte Fehler in der Kristallstruktur entstehen, die die Qualität der Epischicht nachhaltig beeinflussen. Der Anwachsprozess von ZnSe auf GaAs wird entscheidend von der Vorbehandlung der Substratoberfläche geprägt und findet meist im 3D-Modus gemäß Volmer-Weber statt. Erst nach Ausbildung einer geschlossenen ZnSe-Oberfläche kann subsequentes Lagenwachstum erfolgen. Dementsprechend entscheidet gerade die Fehlstellendichte an der Grenzfläche zum GaAs-Substrat über die strukturelle Qualität.

Eine Kombination aus den beiden bereits beschriebenen Modellen stellt das *Stranski-Krastanow*-Wachstum dar [Str37], das vor allem bei der gitterfehlangepassten Heteroepitaxie auftritt. Zu Beginn erfolgt eine flächige Nukleation und lagenweises Wachstum einer oder mehrerer verspannter Monolagen, deren Struktur stark vom darunter liegenden Substrat abhängt. Der dem nachfolgendem Wachstum zugrunde liegende, veränderte Untergrund bedingt eine Änderung der Spannungsverhältnisse. Mit dem Abbau der Verspannung entkoppelt die neu wachsende Oberfläche von der Grenzfläche zum Substrat, wobei die Formation dreidimensionaler Keime dominiert. Die Epitaxie geht in ein Inselwachstum im Volmer-Weber-Modus über. Das Stranski-Krastanow-Modell findet in der gezielten Herstellung selbstorganisierter Quantenpunkte in den Systemen CdSe/ZnSe oder InAs/GaAs seine Anwendung.

6.1.3 Aufbau der II-VI-MBE-Anlage

Die am Institut entworfene und aufgebaute MBE-Anlage zur II-VI-Halbleiterepitaxie ist bereits seit mehreren Generationen von Doktoranden im Einsatz. Sie wurde bisher zur Herstellung binärer Halbleiterschichten aus den Kationen Zink und Cadmium, den Anionen Selen und Tellur sowie diversen ternären und quaternären Verbindungen unter Zugabe von Magnesium und Schwefel verwendet.

Das in Abbildung 6.3 schematisch skizzierte System besteht aus einer Belade- und einer Epitaxiekammer, die von zwei separaten Turbomolekularpumpen evakuiert werden. Eine trockenlaufende Klauenpumpe gewährleistet das notwendige Vorvakuum. Die Pumpenanordnung ist weniger auf einen niedrigen Enddruck, sondern auf eine hohe Pumpleistung und eine Resistenz gegen aggressive Reaktionsgase optimiert, um auch bei Prozessschritten mit hohem Gasdurchsatz eine Hochvakuumumgebung aufrecht zu erhalten. An einem mit flüssigem Stickstoff durchflossenen Zylinder (LN₂-Kryoschild) werden

Restgase ausgefroren. Während der Epitaxie erreicht man damit einen Hintergrunddruck von $5 \cdot 10^{-9}$ mbar. Zur Messung des Hintergrunddrucks stehen Pirani-, Penning- und Bayard-Alpert-Messröhren zur Verfügung. Ein Quadrupol-Massenspektrometer QMS (Quadrupole Mass Spectrometer) ermöglicht die Analyse der Zusammensetzung des Restgases für Verbindungen bis zu einer Atommasse von 100 u.

Die Trennung des Vakuumsystems in Belade- und Epitaxiekammer gestattet es, die Anlage ohne Belüften der Epitaxiekammer mit Substraten zu beladen. Das Substrat wird mit einer eutektischen Legierung aus Indium und Gallium auf einem Substratblech aus Tantal fixiert. Das InGa-Eutektikum ist bei Raumtemperatur flüssig, zeichnet sich

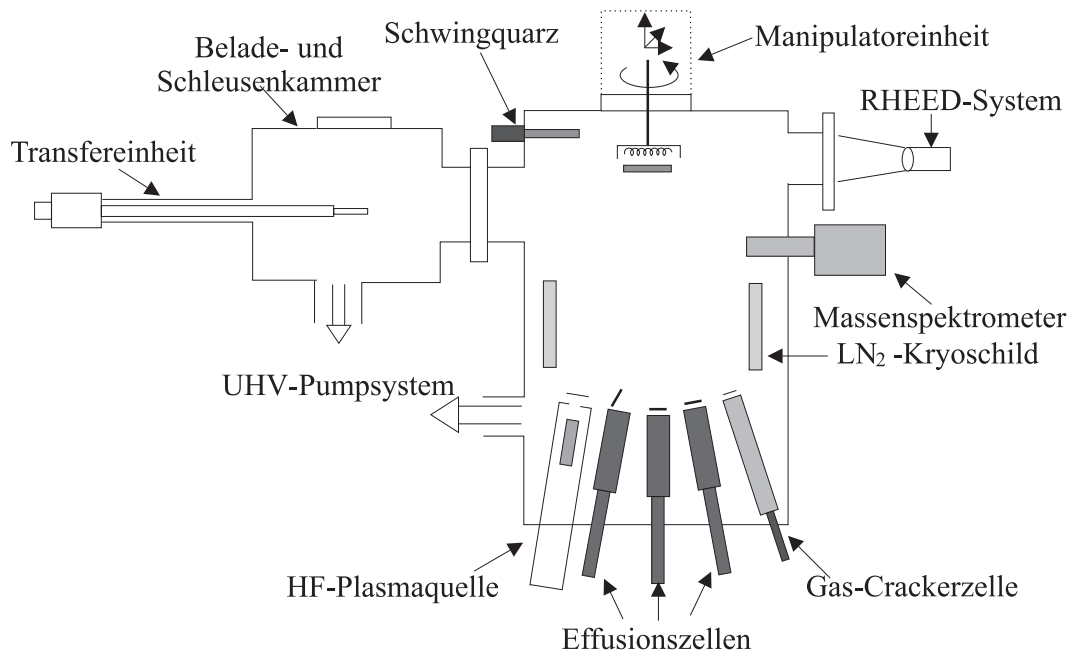


Abbildung 6.3. Schematische Darstellung der verwendeten II-VI-MBE-Anlage.

durch einen sehr geringen Dampfdruck aus und garantiert den thermischen Kontakt zwischen Probe und Substratblech. Mittels einer magnetisch geführten Gabel wird die Probe in die Wachstumskammer transferiert und an einem beheizbaren Probenmanipulator befestigt. Der Manipulator ist hängend angeordnet, kann in drei Raumrichtungen bewegt und um die vertikale Achse gedreht werden. Dies ermöglicht den Substrattransfer und die exakte Einstellung von Azimut- und Polarwinkel zwischen RHEED-Strahl und Kristalloberfläche. Die Substratheizung für Temperaturen bis 650°C besteht aus Tantal-Draht, dessen bifilare Wicklung eine Ablenkung der Elektronen des RHEED-Systems vermeidet. Die Temperaturmessung erfolgt über ein neben dem Substratblech angebrachtes Thermoelement. Über eine Proportional-Integral-Differential (PID)-Regelung wird die Substrattemperatur eingestellt.

Quellenmaterial	Reinheit	Effusionszellen- temperaturen [°C]
Zn Rundstab	> 6N	260 – 340
Se Rundstab	> 6N	180 – 230
Mn Flocken	4N5	770 – 800
Mn Rundstab	> 6N	780 – 810

Tabelle 6.1. *Verwendete Quellenmaterialien mit dem jeweiligen Reinheitsgrad und der dazugehörigen Verdampfungstemperatur.*

Die Ausgangsmaterialien Zink, Selen und Mangan liegen im Reinheitsgrad 6N (99,9999%) vor und werden aus Bornitrid-Tiegeln in wassergekühlten Standard-Effusionszellen mit einer Widerstandsheizung verdampft. Die Temperaturregelung der Effusionszellen erfolgt über PID-Regler und gewährleistet einen konstanten Teilchenfluss.

Die Funktionsweise der Effusionszellen folgt dem Knudsen-Prinzip. Die ideale Knudsen-Zelle ist ein isothermer Behälter, in dem sich der molekulare Dampf, die kondensierte Phase des geheizten Ausgangsmaterials und die Innenwand des Tiegels im thermischen Gleichgewicht befinden. Die Dimension der Austrittsöffnung ist deutlich kleiner als die mittlere freie Weglänge der heißen Moleküle in der Zelle. Nur ein kleiner Teil der in das System eingebrachten Wärme gelangt über den heißen Molekülstrom und die Strahlung aus der Tiegelöffnung der Effusionszelle in den Rezipienten und schließlich auf die Probe.

Die realen Effusionszellen unterscheiden sich von einer idealen Knudsen-Zelle durch einen konischen Tiegel mit einer Austrittsöffnung über den ganzen Tiegeldurchmesser. Der Molekularstrahl ist im realen Fall weniger divergent, so dass bei einem geringeren Materialverbrauch höhere Wachstumsraten erzielt werden können. Die höhere Winkelabhängigkeit der Teilchenstrahldichte reduziert die Homogenität der gewachsenen Schicht. Bei einem Substratdurchmesser von 2 cm beträgt die Flussabweichung und somit der Schichtdickenunterschied etwa 5% [Rei96]. Die Effusionszellen sind mit elektromechanisch betätigten Blenden (engl. *shutter*) versehen, die ein gezieltes Unterbrechen einzelner Teilchenstrahlen erlauben. Eine zusätzliche Heizwicklung am oberen Tiegelrand verringert Materialablagerungen, die einen allmählichen Verschluss der etwas kälteren Austrittsöffnung zur Folge haben.

Zur Messung der Teilchenflüsse wird eine verschiebbare Schwingquarz-Mikrowaage exakt am Ort des Substrats positioniert und nacheinander dem Molekularstrahl je-

weils eines Materials ausgesetzt. Die Massenänderung des Quarzplättchens durch das abgeschiedene Material ändert die Oszillatorfrequenz, woraus die Aufdampftrate pro Zeiteinheit d/t ermittelt wird. Unter Verwendung der jeweiligen Materialkonstanten Dichte ρ_A und Atommasse m_A lässt sich der Teilchenfluss bestimmen.

$$J_A = \frac{\rho_A}{m_A} \frac{d}{t} . \quad (6.1)$$

Die Wachstumskammer ist auf eine n-Dotierung der Proben mit Chlor und eine p-Dotierung mit Stickstoff ausgelegt, wobei in der vorliegenden Arbeit ausschließlich n-leitendes Material gewachsen wurde. Die Dotierstoffe werden der Epitaxiekammer gasförmig zugeleitet. Die Gasaufbereitung erfolgt in einem separat evakuierbaren Bereich, in dem die Gasflüsse vor der Einleitung in das UHV stabilisiert werden.

Das zur n-Dotierung von ZnMnSe nötige Chlor wird aus dem bei Raumtemperatur flüssigen Organyl n-Butylchlorid ($n\text{-C}_4\text{H}_9\text{Cl}$) gewonnen, das in einem reagenzglasähnlichen Behälter vakuumdicht mit dem Gastrakt verbunden ist. Gasförmiges n-Butylchlorid entsteht durch den eigenen Dampfdruck der Flüssigkeit bei Raumtemperatur und wird über einen elektronischen Hinterdruckregler und ein Feinstnadelventil einer UHV-Pyrolyseeinheit zugeführt. In dieser Gas-Crackerzelle werden die Organylgasmoleküle durch vielfache Stöße an der etwa 400 °C heißen Innenwand aufgespalten und als Molekülstrahl auf das Substrat geleitet. An der geheizten Substratoberfläche wird freies Chlor abgespalten und in die gewachsene Kristallschicht eingebaut.

Ein weiteres Ausstattungsmerkmal der II-VI-MBE-Kammer ist eine Radiofrequenz-Plasmaquelle, die der Erzeugung eines Wasserstoffplasmas zur in-situ Reinigung der GaAs-Substrate dient. Angeregte Wasserstoffradikale und -moleküle werden dabei auf die Substratoberfläche gelenkt und entfernen durch eine chemische Reaktion eine vom Substrathersteller aufgebrachte, definierte Oberflächenoxidschicht. Durch einen Massenflussregler wird das Gas kontrolliert in einen Bornitrid-Tiegel eingeleitet, der von der wassergekühlten Spule eines Schwingkreises (13,56 MHz) umgeben ist. Durch eine optimale Abstimmung des Gasflusses in den Tiegel und der Leistung des Schwingkreises wird in dem angelegten Hochfrequenzfeld durch Stoßionisation ein Plasma erzeugt. Der austretende Gasstrom enthält einen hohen Anteil hochangeregter, nichtionisierter Radikale, die mit der Substrat- oder Schichtoberfläche reagieren. Die kinetische Energie der Moleküle ist dabei so klein ($< 1\text{ eV}$), dass eine mechanische Schädigung der Oberfläche vermieden wird. Betreibt man die RF-Plasmaquelle mit Stickstoff, lässt sie sich zur p-Dotierung von II-VI-Halbleitern nutzen.

6.2 Reflexionsbeugung hochenergetischer Elektronen

Zur in-situ Charakterisierung des Wachstums ist die Epitaxiekammer mit einem System zur Reflexionsbeugung hochenergetischer Elektronen, RHEED, ausgestattet. Auf Höhe der Probe ist eine Elektronenkanone und auf der gegenüberliegenden Seite ein Fluoreszenzschirm installiert, auf dem das in Vorwärtsstreuung erzeugte Beugungsbild beobachtet und von einer CCD-Kamera aufgenommen werden kann. Mit einer Framegrabberkarte werden die Videosignale digitalisiert und können im Computer verarbeitet werden. Das Software-Paket erlaubt sowohl die Aufnahme der RHEED-Beugungsbilder sowie die Echtzeitanalyse der integralen Intensität und des Intensitätsprofils einzelner Beugungsreflexe. Durch den in dieser Geometrie streifenden Einfall des Elektronenstrahls wird das MBE-Wachstum nicht behindert. Somit kann während des Wachstumsvorgangs eine Analyse der Kristallstruktur von Substrat und gewachsener Schicht sowie der Wachstumsdynamik erfolgen.

Die Elektronenkanone liefert durch thermische Kathodenemission freigesetzte Elektronen, die mit einer maximalen Spannung von 35 kV beschleunigt werden. Eine elektromagnetische Justiereinheit bündelt die Elektronen zu einem Strahl, der auf einen Durchmesser von $< 100 \mu\text{m}$ fokussiert und in alle Raumrichtungen abgelenkt werden kann. Der Strahlstrom kann bis zu $100 \mu\text{A}$ betragen.

Der Wellennatur der hochenergetischen Elektronen wird durch die de Broglie-Beziehung $\lambda = h/p$ zwischen der Wellenlänge λ und dem Impuls p Rechnung getragen. Der relativistische Zusammenhang mit der Beschleunigungsspannung V_0 lautet

$$\lambda = \frac{h}{\sqrt{2m_0eV_0(1 + \frac{eV_0}{2m_0c^2})}} \quad , \quad (6.2)$$

mit der Ruhemasse der Elektronen m_0 , der Elementarladung e und der Lichtgeschwindigkeit c . Für eine im Experiment verwendete Beschleunigungsspannung $V_0 = 10 \text{ kV}$ ist die de Broglie-Wellenlänge der Elektronen $\lambda = 0,122 \text{ \AA}$ und somit zur Auflösung atomarer Strukturen geeignet.

Die Grundlagen der Beugung elektromagnetischer Wellen oder Teilchenwellen an Kristallen werden in der kinematischen Streutheorie beschrieben. Die Streueigenschaften der Probe werden dabei von der periodischen Anordnung der Kristallatome dominiert. Nach Bragg kann die Beugung einer Welle an einem Kristall als Reflexion an einer Schar identisch orientierter Netzebenen des Kristalls interpretiert werden. Die Beugungsintensität ist maximal, wenn der Gangunterschied der reflektierten Wellen ein

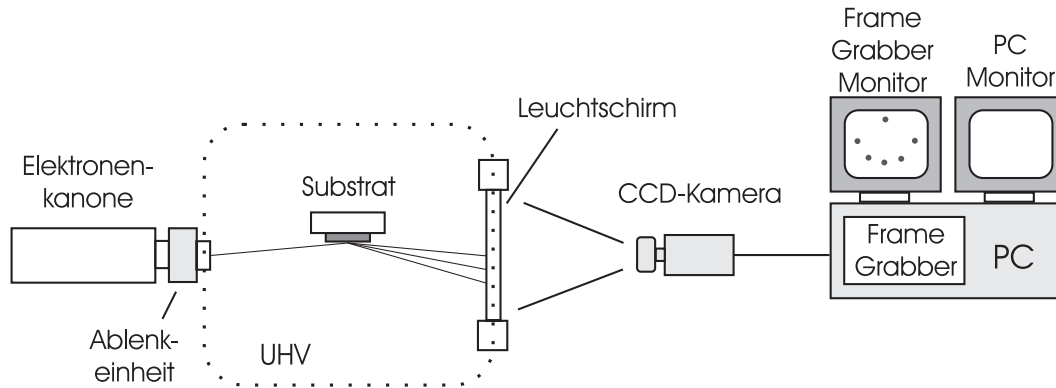


Abbildung 6.4. Schematischer Aufbau des RHEED-Systems.

ganzzahliges Vielfaches ihrer Wellenlänge λ beträgt. Die Bedingung für konstruktive Interferenz lautet

$$2 d_{hkl} \sin \theta_B = n \lambda, \quad (6.3)$$

mit dem Abstand d_{hkl} aufeinander folgender, paralleler Netzebenen mit den Millerschen Indizes hkl , dem Beugungswinkel θ_B und der Beugungsordnung n . Die Wechselwirkung der Wellen mit dem Kristall erfolgt dabei durch elastische Streuung an Atomen, die auf Gitterplätzen sitzen und so den jeweiligen Netzebenen zugeordnet werden können. Dies führt zu einer alternativen Beschreibung der Beugungsbedingung im Impuls-Raum. Die Wellenvektoren einer Schar ebener Wellen mit der Periodizität eines gegebenen Kristallgitters bilden das reziproke Gitter des Kristalls [Ash76], dessen Einheitszelle von der Basis

$$\vec{b}_i = \frac{\vec{a}_j \times \vec{a}_k}{|\vec{a}_1 \cdot (\vec{a}_2 \times \vec{a}_3)|}, \quad i, j, k \text{ zykl.}, \quad (6.4)$$

mit den Basisvektoren \vec{a}_1 , \vec{a}_2 und \vec{a}_3 des realen Gitters gebildet wird.

Jede Netzebene mit den Millerschen Indizes hkl wird durch einen reziproken Gittervektor $\vec{G}_{hkl} = h \vec{b}_1 + k \vec{b}_2 + l \vec{b}_3$ repräsentiert, der auf der Netzebene senkrecht steht. Sind \vec{k}_e und \vec{k}_s die Wellenvektoren der einfallenden und gestreuten Welle, so ist ihre Differenz der Streuvektor \vec{K} . Die Bedingung für konstruktive Interferenz nach Laue ist erfüllt, wenn der Streuvektor gerade gleich einem reziproken Gittervektor \vec{G} ist.

$$\vec{K} = \vec{k}_s - \vec{k}_e = \vec{G}. \quad (6.5)$$

Eine anschauliche, geometrische Darstellung der Laue-Bedingung unter Berücksichtigung der Energie- und Impulserhaltung stellt die Ewald-Konstruktion nach Abbildung 6.5 dar. Der \vec{k}_e -Vektor der einfallenden Welle wird auf den Ursprung des reziproken Gitters gerichtet. Bei elastischer Streuung folgt $|\vec{k}_e| = |\vec{k}_s|$, was für alle Punkte einer

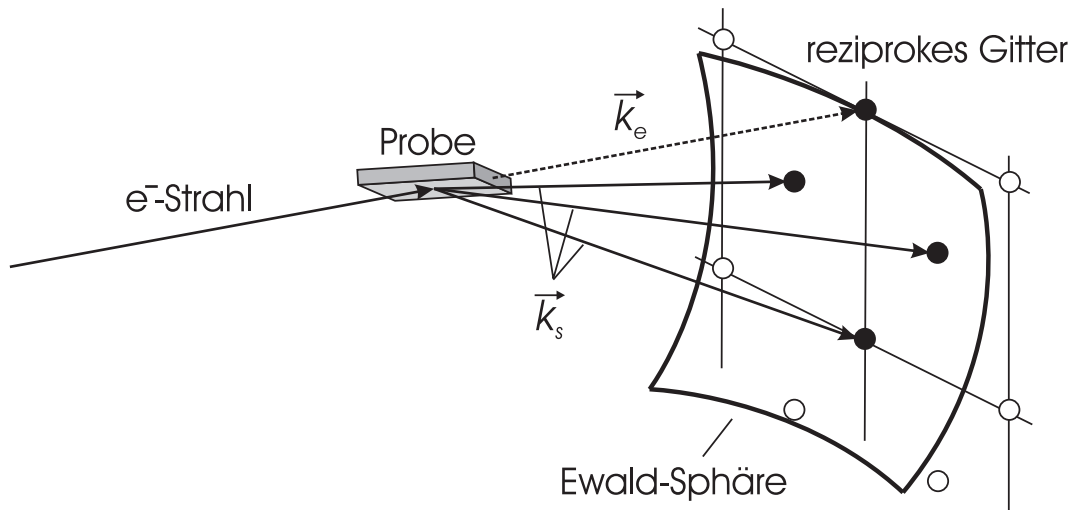


Abbildung 6.5. Ewald-Konstruktion bei Transmissionsbeugung.

Sphäre mit Radius $|\vec{k}_e|/2\pi$ um den Anfangspunkt von \vec{k}_e , der Ewald-Kugel, gilt. Die Laue-Bedingung ist für alle Schnittpunkte der Ewald-Sphäre mit dem reziproken Gitter erfüllt. Die so ausgezeichneten Beugungsreflexe werden mit den Koordinaten der reziproken Gitterpunkte $\{hkl\}$ indiziert.

Die Laue-Bedingung bestimmt die Lage aller möglichen Beugungsmaxima, nicht jedoch ihre Gewichtung im Beugungsbild. Ein Atomformfaktor quantifiziert die Streuamplitude der Elektronenhülle der beteiligten Atomsorten relativ zur Streuamplitude eines einzelnen Elektrons. Die Atomformfaktoren, aufsummiert über die Positionen der Atome in der Einheitszelle, ergeben die Strukturamplitude, die strukturbedingte Interferenzeffekte beschreibt und somit maßgeblich die Verteilung der Gesamtintensität auf alle möglichen Beugungsreflexe bestimmt.

Je nachdem unter welchem Winkel die Elektronen auf den Kristall treffen, unterscheidet man zwei Grenzfälle. Findet die Beugung in Transmission statt, durchstrahlt die einfallende Welle ein ganzes Volumenelement des Kristalls, dessen Periodizität in alle drei Raumrichtungen vorliegt. Dem Beugungsbild einer Zinkblende-Kristallstruktur liegt somit ebenfalls eine kubische Symmetrie zugrunde. Trifft wie bei der RHEED-Methode ein hochenergetischer Elektronenstrahl unter einem sehr geringen Einfallswinkel ($1-3^\circ$) auf die Kristalloberfläche, wird er nur an den obersten $1-2$ Atomlagen gebeugt. In der dadurch sehr oberflächenempfindlichen Reflexionsbeugung ist die periodische Struktur des Kristalls entlang der Schichtnormalen für den Elektronenstrahl nicht mehr erkennbar.

Die Fouriertransformation des Oberflächengitters ergibt unendlich ausgedehnte Stäbe, die senkrecht zur Oberfläche orientiert und in einem regelmäßigen, zweidimensiona-

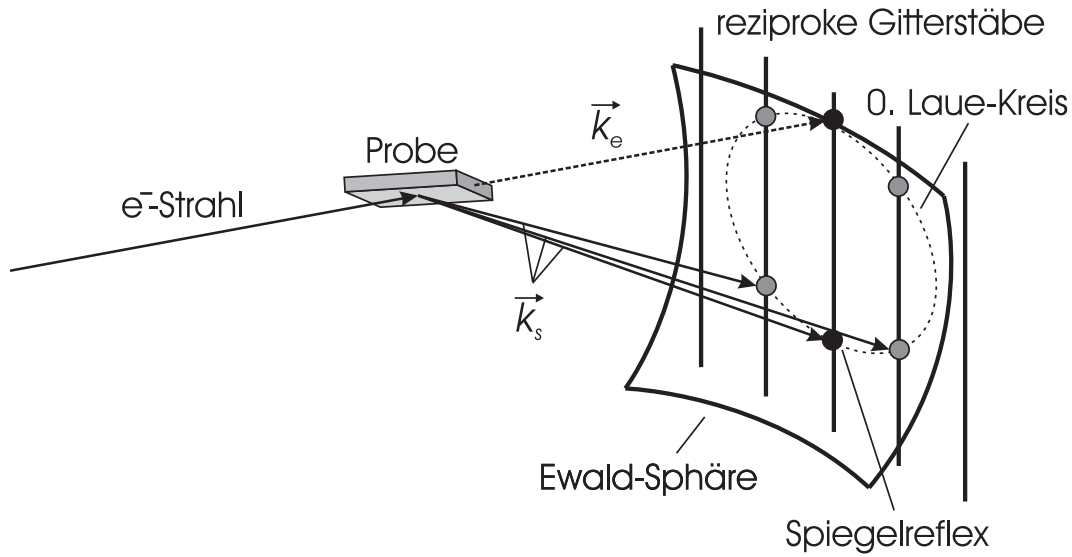


Abbildung 6.6. Ewald-Konstruktion bei Reflexionsbeugung.

len Gitter angeordnet sind. Unabhängig vom Einstrahlwinkel der einfallende Wellen \vec{k}_e existieren immer Streuwellen \vec{k}_s , die die Schnittpunkte der Ewald-Sphäre mit den Stäben im reziproken Raum angeben. Die dazugehörigen Beugungsreflexe liegen auf so genannten Laue-Kreisen und werden mit den Koordinaten der verbleibenden Indizes $\{hk\}$ bezeichnet. In Abbildung 6.6 ist lediglich der Laue-Kreis 0. Ordnung eingezeichnet.

Der einfallende Elektronenstrahl ist aufgrund chromatischer Aberration nicht perfekt monochromatisch und weist außerdem eine geringe Divergenz auf. Die Unschärfe in \vec{k} führt zu einer endlichen Dicke der Ewald-Kugelschale. Die endliche Ausdehnung des Kristalls, eine gestufte oder mit Inseln bedeckte Oberfläche und die thermische Bewegung der Atome und ihrer Elektronenhülle bedingt zudem eine endliche Ausdehnung der reziproken Gitterstäbe. Die resultierenden Beugungsreflexe werden dadurch verbreitert.

Der RHEED-Beugungsprozess ist im Allgemeinen keine reine Reflexion. Oft verlässt die gestreute Welle die Probe nicht durch die Oberfläche, in die die einfallende Welle eingedrungen ist [Her89]. Abbildung 6.7 skizziert das resultierende Beugungsbild einer Zinkblendestruktur in den beiden Extremfällen reiner Transmissions- und reiner Reflexionsbeugung. Die Einfallsrichtung des Elektronenstrahls ist parallel zu einer $[110]$ -Richtung des Kristalls. Die Schattengrenze wird durch die Schnittgerade zwischen der Probenebene und dem Leuchtschirm gebildet. Durch den streifenden Elektroneneinfall gelangt ein Teil des Elektronenstrahls ungebeugt an der Probe vorbei zum Leuchtschirm und wird als heller Punkt oberhalb der Schattengrenze sichtbar.

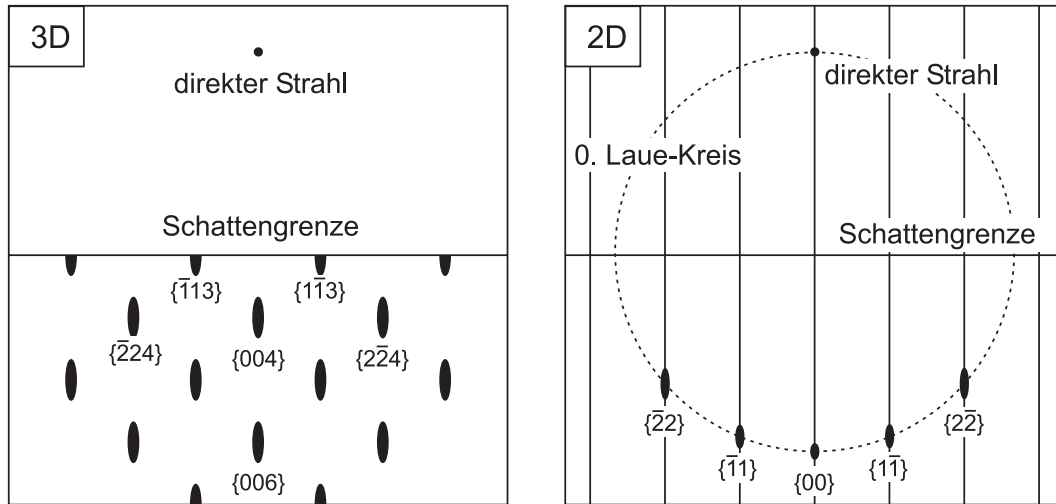


Abbildung 6.7. Beugungsbilder einer mit Inseln bedeckten (001)-Oberfläche (3D) und einer gestuften 2D-Oberfläche. Die Einfallsrichtung des Elektronenstrahls ist parallel zu einer [110]-Richtung des Kristalls.

An einer stark gestuften und mit mehrlagigen Inseln bedeckten, dreidimensionalen Probenoberfläche erfahren die Elektronen mehrheitlich eine Transmissionsbeugung. Das resultierende Beugungsbild berücksichtigt die Gitterperiodizität in allen drei Raumrichtungen und entspricht dem reziproken Gitter des Kristalls. Die Beugungsreflexe sind daher in kubischer Symmetrie angeordnet und aufgrund der Rauigkeit der Oberfläche sowie der endlichen Eindringtiefe der Elektronen verbreitert. Eine Reflexionsbeugung des Elektronenstrahls an einer atomar glatten, zweidimensionalen Oberfläche resultiert in kreisförmig angeordneten Beugungsreflexen. Der mit $\{00\}$ indizierte Reflex wird vom spiegelnd reflektierten Strahl hervorgerufen und als Spiegelreflex (engl. specular spot) bezeichnet. Die unendlich ausgedehnte, ideal glatte Oberfläche führt zu punktförmigen Beugungsmaxima. Eine reale, zweidimensionale Oberfläche weist dagegen eine gewisse Dichte von Stufen in der Höhe einer Monolage auf, was eine längliche Verbreiterung der Reflexe zur Folge hat.

Bei einer Elektronenenergie von 10 keV beträgt der Radius der Ewald-Kugel mit $|k| = 51,5 \text{ \AA}^{-1}$ beinahe das fünfzigfache der reziproken Gitterkonstante von ZnSe ($|\vec{g}| = 2\pi/a_{\text{ZnSe}} = 1,11 \text{ \AA}^{-1}$). Die Ewald-Sphäre bildet somit im zentralen Streubereich eine näherungsweise ebene Fläche, deren Schnittzone mit den reziproken Gitterstäben der Kristalloberfläche eine längliche Ausdehnung entlang der Stäbe besitzt. Somit zeigt auch eine zweidimensionale Oberfläche ein streifenförmiges Beugungsbild.

In der Praxis der Halbleiterepitaxie besteht ein reales RHEED-Beugungsbild aus einer Kombination von Anteilen der Reflexions- und der Transmissionsbeugung. Aus der zeitlichen Entwicklung des Beugungsbilds gewinnt man Einblicke über den vorherr-

schen Wachstumsmodus. Bei einem zweidimensionalen Lagenwachstum nach Frank und van der Merwe sind fast ausschließlich streifenförmige Reflexe zu erkennen, die von der Reflexionsbeugung stammen. Durch ein bevorzugtes Wachstum an Kristallbaufehlern treten vereinzelt flache Inseln auf, an denen die Elektronen in Transmission gebeugt werden. Im RHEED-Beugungsbild ist dies durch eine Zunahme der Intensität der dreidimensionalen Reflexe erkennbar. Wächst die Kristallschicht in mehrlagigen, dreidimensionalen Inseln nach Volmer-Weber, dominiert das verbreiterte Punktmuster der Transmissionsbeugung.

Durch die RHEED-Charakterisierung kann somit nicht nur erkannt werden, ob kristallines Wachstum stattfindet. Wachstumsmodus und strukturelle Qualität der aufgewachsenen Kristallschicht sind ebenfalls in-situ messbar. Gerade beim heteroepitaktischen Wachstum führt die Gitterfehlانpassung zwischen Substrat- und Schichtmaterial oberhalb einer kritischen Schichtdicke zu einer Spannungsrelaxation. Durch eine Auswertung der Reflexabstände kann die zeitliche Entwicklung der mittleren lateralen Gitterkonstante bestimmt werden. Die Halbwertsbreite des Spiegelreflex enthält Informationen über Beginn und Verlauf der Versetzungsbildung. Man erhält daraus Aufschluss über das plastische und elastische Relaxationsverhalten verspannter Heterostrukturen.

Intensitätsoszillationen

Da in der RHEED-Methode eine Beugung des streifend einfallenden Elektronenstrahls an der obersten Atomlage des Kristalls erfolgt, reagiert die Intensität des Spiegelreflexes empfindlich auf Veränderungen der Oberflächenbedeckung. Wächst die Kristallschicht durch Ausbreitung und Zusammenwachsen mehrerer Inseln innerhalb einer Monolage, ändert sich mit dem Grad der Bedeckung der Oberfläche auch deren Rauigkeit. Die bei vollständiger Bedeckung glatte Oberfläche weist bei einer unvollständigen Bedeckung viele Stufenkanten an den Inselrändern auf, die einen großen Teil der Elektronen in Richtung der Nebenreflexe beugen, deren Intensität dadurch auf Kosten des Spiegelreflexes zunimmt.

Die (001)-Oberfläche der Zinkblendestruktur kann entweder mit der anionischen oder der kationischen Komponente bedeckt sein. Deren unterschiedliche Atomformfaktoren sowie die Überstrukturbildung durch Absättigen freier Bindungorbitale können ebenfalls unterschiedliche Intensitäten des Spiegelreflexes bewirken [Pre00]. Die periodische Veränderung der Oberflächenbedeckung und -konfiguration während des zweidimensionalen Wachstums führt zu Intensitätsoszillationen des Spiegelreflexes mit einer Monolagen-Periode.

Bei bekannter Gitterkonstante des Materials lässt sich aus der Oszillationsperiode die exakte Wachstumsrate bestimmen und so die Schichtdicke kalibrieren. Beim Wachstum ternärer Halbleiterverbindungen liefert das Verhältnis der Wachstumsraten der beiden binären Ausgangsmaterialien zur Wachstumsrate des ternären Materials eine sehr gute Abschätzung für die stöchiometrische Zusammensetzung, sofern die wachstumsbegrenzende Komponente durch die dritte Komponente ersetzt wird.

Oberflächenrekonstruktionen

Eine exakte Präparation der Substratoberfläche sowie die Kenntnis und Kontrolle ihrer Struktur und stöchiometrischen Zusammensetzung sind entscheidend für das heteroepitaktische Wachstum in der Molekularstrahlepitaxie. Wie in Kapitel 2.3.1 erläutert, bedingen gerade diese Faktoren ein Abweichen der Anordnung der Atome an der Oberfläche gegenüber dem Volumen des Kristalls und die Bildung einer periodischen Überstruktur. Die durch eine bestimmte Rekonstruktion charakterisierte Oberfläche prägt entscheidend den Anwuchsprozess in der Heteroepitaxie und nimmt so Einfluss auf die Kristallqualität der gesamten Epischicht.

Die RHEED-Methode eignet sich besonders gut zur in-situ Analyse der sich vielfältig ausbildenden Rekonstruktionen der GaAs- und der ZnSe-Oberfläche. Bei einer $(m \times n)$ -rekonstruierten (001)-Oberfläche ist die modifizierte Elementarmasche im Ortsraum um das m -fache, senkrecht dazu um das n -fache gegenüber dem Volumenkristall vergrößert. Im reziproken Raum erhält man aufgrund dieser Überstruktur in der entsprechenden Raumrichtung $(m - 1)$ bzw. $(n - 1)$ zusätzliche Gitterstäbe. Das RHEED-Beugungsbild enthält dadurch entsprechend viele Zusatzreflexe, die zwischen den Haupt-Beugungsreflexen des Kristallgitters liegen.

Bei der Se-reichen (2×1) -Rekonstruktion der ZnSe(001)-Oberfläche treten zusätzliche RHEED-Reflexe in $[110]$ - und aus Gründen der Symmetrie in $[\bar{1}\bar{1}0]$ -Einstrahlrichtung auf. Für die Zn-stabilisierte $c(2 \times 2)$ -Rekonstruktion beobachtet man Zwischenreflexe im $[100]$ -, $[\bar{1}00]$ -, $[010]$ - und $[0\bar{1}0]$ -Azimuth.

Das RHEED-Beugungsbild der As-reichen $c(4 \times 4)$ -Rekonstruktion der GaAs(001)-Oberfläche weist je drei Zwischenreflexe in den Einstrahlrichtungen $[100]$, $[\bar{1}00]$, $[010]$ und $[0\bar{1}0]$ auf. Die ebenfalls As-reiche (2×4) -Rekonstruktion ist anhand von einem Zwischenreflex im $[110]$ - und $[\bar{1}\bar{1}0]$ -Azimuth und drei Zwischenreflexen in $[\bar{1}10]$ - und $[1\bar{1}0]$ -Richtung zu identifizieren. Bei der (4×2) -Rekonstruktion einer Ga-stabilisierten Oberfläche ist die Anzahl der Zusatzreflexe im RHEED-Beugungsbild entsprechend vertauscht.

Die RHEED-Methode erlaubt es auch, Übergänge zwischen den einzelnen Oberflächenrekonstruktionen und somit Änderungen in den Wachstumsbedingungen zu verfolgen.

6.3 Röntgendiffraktometer

Ein wichtiges Hilfsmittel zur ex-situ Bestimmung von Strukturparametern der $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Proben ist die Röntgendiffraktometrie. In einer Anordnung nach Abbildung 6.8 fällt monochromatische Röntgenstrahlung unter einem variablen Winkel auf die kristalline Probe und wird gemäß den Beugungsbedingungen 6.3-6.5 an planparallelen Netzebenen des realen Gitters gebeugt. Aus der Messung der winkelabhängigen Verteilung der Intensität im reziproken Raum erhält man durch Rücktransformation wertvolle Information über das Kristallgitter.

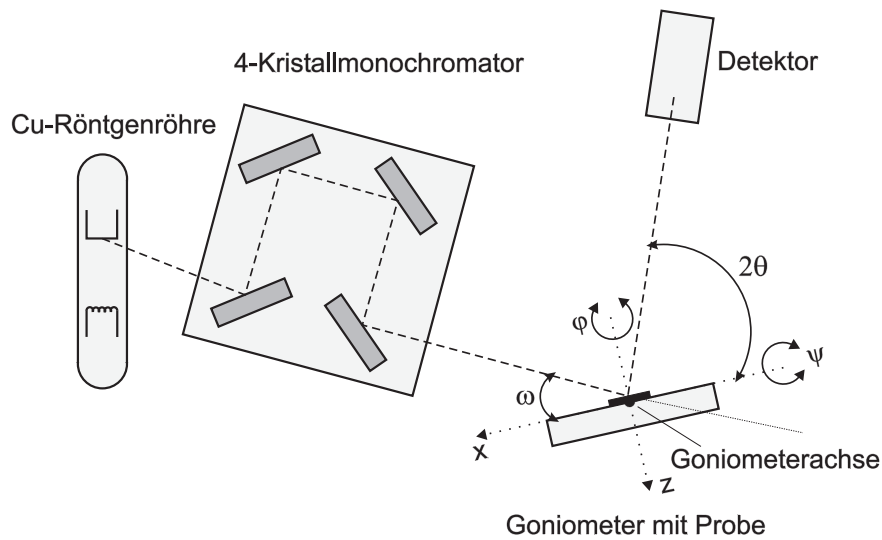


Abbildung 6.8. Schematischer Aufbau des Röntgendiffraktometers.

Die durch die Intensitätsmaxima angegebene Lage der reziproken Gitterpunkte \vec{G}_{hkl} gibt die Atomabstände im Kristallgitter wieder. Aus diesen kann nach dem Gesetz von Vegard (Gleichung 2.1) die Stöchiometrie der Proben ermittelt werden. Von besonderem Interesse war im Rahmen dieser Arbeit der strukturelle Mn-Anteil x der $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Schichten. Eine Analyse der Intensitätsverteilung um einen reziproken Gitterpunkt lässt Rückschlüsse auf Schichtdicke und strukturelle Qualität der Proben zu.

Zur kristallographischen Charakterisierung der Proben steht am Institut ein Triple Axis Diffraktometer *X'Pert MRD* der Firma *Philips* zur Verfügung. Als Strahlungsquelle dient eine 2 kW Röntgenröhre mit Cu-Anode. Ein Vier-Kristall-Monochromator nutzt vier (220)-Reflexionen an Ge-Einkristallen, um die Cu- $K\alpha_1$ -Linie der Wellenlänge $\lambda = 1,54056 \text{ \AA}$ mit einer Linienbreite von $\Delta\lambda/\lambda \sim 10^{-5}$ auszuwählen. Unter einem Winkel ω fällt der Primärstrahl auf die Probe, die sich auf einem um drei translatorische und drei Rotationsfreiheitsgrade beweglichen Goniometer befindet. Der gebeugte Strahl wird unter dem Winkel $2\theta_B$ in einer Ionisationsmesskammer detektiert. Bei dem relativ

großen Detektoröffnungswinkel von 3° (Receiving Slit Modus) können auch schwache Reflexe von sehr dünnen oder defektreichen Schichten vermessen werden.

	ZnSe	MnSe
Gitterkonstante [\AA]	5.6687	5.93
Debye Waller Faktor	0.824	0.82
Gitterverzerrung $\frac{C_{11}}{C_{11}+2C_{12}}$	0.454	0.423
Poissonverhältnis ν	0.361	0.405

Tabelle 6.2. Parameter für die Röntgensimulation bei $T = 20^\circ\text{C}$.

Die röntgendiffraktometrische Untersuchung der Proben erfolgte durch Aufnahme von Rockingkurven. Zur Messung der Streuintensität als Funktion des Einfallswinkels ω wird dabei der Goniometertisch mit dem Kristall gegen den Primärstrahl gedreht. Der Detektorarm wird synchron mit der doppelten Winkelgeschwindigkeit des Kristalls mitbewegt (ω - 2θ -Scan). Die Auswertung der Messkurven mit dem Softwarepaket *Philips X'Pert Epitaxy* erlaubt die Bestimmung der Halbwertsbreite des $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Reflexes, der Schichtdicke und des Mn-Anteils x der Probe.

Zusätzlich können unter Verwendung der dynamischen Takagi-Taupin-Theorie, die in [Kas97] ausführlich beschrieben wird, Rockingkurven simuliert werden. Durch Variation von Simulationsparametern wie Schichtdicke und Zusammensetzung wird die simulierte Kurve an die gemessene angepasst. In Tabelle 6.2 sind einige für die Simulation wichtige Materialparameter zusammengefasst. Die Gitterverzerrung errechnet sich, wie in Tabelle 6.2 angegeben, aus den elastischen Konstanten C_{ij} . In der Literatur ist auch die Angabe des Poissonverhältnisses ν geläufig, das ein Maß für die Querkontraktion der Schicht angibt. Für die $\langle 001 \rangle$ -Wachstumsrichtung kubischer Kristalle gilt folgende Beziehung [Kas93]:

$$\nu = \frac{C_{12}}{C_{11} + C_{12}} \quad \Rightarrow \quad \frac{1 - \nu}{1 + \nu} = \frac{C_{12}}{C_{11} + 2C_{12}} . \quad (6.6)$$

6.4 Magnetotransportmessplatz

Von besonderer Bedeutung für das geplante Experiment (siehe Kapitel 5) ist die elektrische Charakterisierung der $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Kontaktschichten und der $\text{GaAs}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Heterostrukturen. Wichtige Größen sind der Probenwiderstand bei tiefen Temperaturen, seine Änderung in einem äußeren Magnetfeld sowie die daraus gewonnenen Werte

für Ladungsträgerkonzentration und -beweglichkeit. Um den Zugang zu den erforderlichen Daten zu erlangen und darüber hinaus eine schnelle Standardcharakterisierung der in dem III-V-MBE-System hergestellten Proben zu gewährleisten, wurde ein Magnetotransportmessplatz entworfen und realisiert. Folgenden Eigenschaften wurde dabei eine besondere Beachtung geschenkt:

- Messung in Magnetfeldern bis zu 6 T und bei Temperaturen zwischen 1,2 K und 300 K.
- Geringer Wärmeeintrag für längere Standzeit auch bei 1,2 K.
- Schnelle Inbetriebnahme und unkomplizierter Austausch der Proben.
- Hohe Flexibilität und geringer Heliumverbrauch im Betrieb.

Ein kryostatischer Stabeinsatz mit supraleitender Magnetspule für die am Institut gängigen Heliumtransportbehälter versprach obige Anforderungen am besten zu erfüllen. Dieses Konzept konnte bereits am Walter-Schottky-Institut in Garching Erfolge verzeichnen und wurde auf die speziellen Bedürfnisse der institutseigenen Laboratorien angepasst und weiter verbessert. Man nutzt hierdurch den Transportbehälter gleichzeitig als isoliertes Heliumreservoir und als kühlendes Heliumbad. Ein aufwändig konstruierter Heliumtank innerhalb des Kryostaten kann somit entfallen. Abbildung 6.9 verschafft einen schematischen Überblick über die wichtigsten Komponenten des Magnetotransportmessplatzes.

Das System besteht aus drei ineinanderliegenden Rohren aus unmagnetischem, dünnwandigem Edelstahl mit geringer Wärmeleitung. Ihre Länge wurde so gewählt, dass sich der von dem inneren Rohr begrenzte Probenraum knapp über den Boden einer Air-Liquide-Heliumkanne mit einem Fassungsvermögen von 100 Liter befindet und so die zur Verfügung stehende Heliummenge optimal ausnutzt. Ein weiteres Rohr begrenzt ein das Kryostateninnere umgebendes Vakuum zur thermischen Isolation. Der Probenraum kann über ein Nadelventil und eine Kapillarleitung, die das Isoliervakuum durchquert, mit Helium aus dem Vorratsbehälter befüllt und auf eine Temperatur von 4,2 K gekühlt werden. Durch Abpumpen des Heliums aus dem Probenraum erzielt man eine Temperatur von 1,2 K, die aufgrund des geringen Wärmeeintrags bis zu 45 Minuten lang gehalten werden kann. Eine dritte Ummantelung schützt die an der Außenwand des Vakuums verlegten Versorgungs- und Kontrollleitungen für die supraleitende Magnetspule, die den unteren Probenraum umschließt und im Heliumbad gekühlt wird. Der Solenoid besteht aus etwa 11000 Windungen supraleitenden Niob-Titan-Drahtes, einer Kupfermatrix von 0,3 mm Durchmesser mit 54 eingearbeiteten Nb-Ti-Filamenten (Vacuumschmelze Vacryflux 5001 Typ F54/0,3 mm). Ein Epoxidharzverguss (Stycast

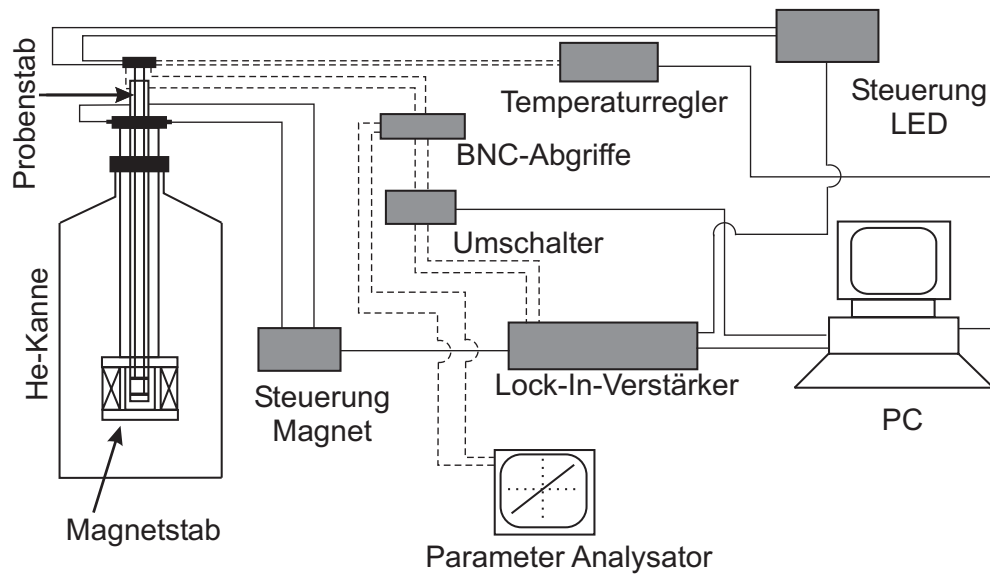
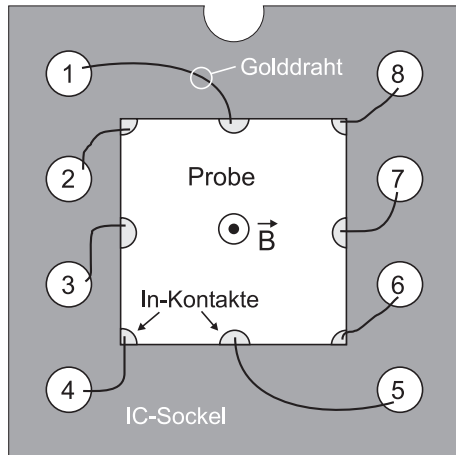


Abbildung 6.9. Schematischer Aufbau des Magnetotransportmessplatzes. Messleitungen sind gestrichelt gekennzeichnet.

2850 FT, Katalysator 11) verhindert eine Deformation der Wicklungen durch die Kraft des erzeugten Magnetfelds. Die kritische Stromstärke des Filamentdrahtes beträgt 65 A bei 6 T. Wegen des maximalen Innendurchmessers der Kannenöffnung von 50 mm erfährt der Durchmesser der Magnetspule aus Sicherheitsgründen eine Beschränkung auf 47,5 mm. Bei einem Strom von 58,5 A beträgt das generierte magnetische Feld etwa 6,4 T, entsprechend einem Kalibrierungsfaktor von 0,109 T/A, und die im Feld gespeicherte Energie erreicht 1,5 kJ. Wechselt die Spule sprunghaft vom supraleitenden in den normalleitenden Zustand über, erzeugt der Zusammenbruch des Magnetfelds einen starken elektrischen Strompuls. Eine Thyristor-Schutzschaltung erzeugt in diesem Fall einen Kurzschluss über der Spule und verhindert so eine Beschädigung der Stromversorgung des Magneten. An zusätzlichen Sicherheitseinrichtungen verfügt das Kannenmagnetsystem über je ein federgelagertes Überdruckventil für den Bereich des Isoliervakuums und des Probenraums.

Der Probenhalter besteht aus einem massivem OFHC-Kupferblock (**O**xxygen **F**ree **H**igh **C**onductivity) hoher Wärmeleitung und bietet Platz für zwei 8-polige IC-Sockel, eine Leuchtdiode, eine Widerstandsheizung und einen Temperatursensor. Letzterer ist ein Widerstandssensor vom Typ *Cernox* der Firma *Lakeshore Cryotronics* und zeichnet sich, im Gegensatz zu sonst gebräuchlichen Si-Dioden, durch eine äußerst geringe Abhängigkeit vom Magnetfeld aus. Eine zwischen den IC-Halterungen befestigte Leuchtdiode erlaubt eine Beleuchtung von 2DEG-Proben im gekühlten Zustand, um so unter Ausnutzung der persistenten Photoleitfähigkeit des Si-dotierten AlGaAs die Ladungsträgerdichte zu erhöhen (siehe Abschnitt 2.2.3). Versorgungs- und Messleitungen be-

**Abbildung 6.10.**

Zur Standardcharakterisierung kontaktierte Probe in IC-Sockel. Das Magnetfeld durchdringt die Probe senkrecht zur Schichtebene.

stehen aus je zwei miteinander verdrehten Drähten aus Manganin, einer $\text{Cu}_{84}\text{Ni}_4\text{Mn}_{12}$ -Legierung, die zwar einen höheren elektrischen Widerstand von etwa $100 \Omega/\text{m}$ aber gleichzeitig eine geringere thermische Leitfähigkeit als vergleichbar dicke Kupferdrähte aufweisen. Von jedem Paar fungiert der eine Draht als Signalleitung, der andere als elektrostatische Abschirmung.

Zur Standardcharakterisierung werden auf annähernd quadratischen Probenstücken von etwa 4 mm Kantenlänge mit einem LötKolben an jeder Ecke sowie in der Mitte jeder Kante kleine Indiumkontakte aufgebracht und in einer nichtoxidierenden Gasatmosphäre (Formiergas: 95 % N_2 , 5 % H_2) legiert. Nachdem mit dünnen Golddrähten und Indiumlot eine Verbindung zu den 8 Polen des IC-Probensockels gemäß Abbildung 6.10 hergestellt ist, erfolgt die Montage in den Probenhalter und der Einbau in den gekühlten Kannenmagnet durch ein Schleusensystem. Die Vermessung der Proben findet bei kleinen Transportspannungen im Bereich der linearen Antwort statt. Aus dem Oszillatorausgang eines Lock-In-Verstärkers wird der Probe über die Messleitungen ein niederfrequenter Wechselstrom von $0,1 - 1 \mu\text{A}$ aufgeprägt. Ein im Vergleich zum Probenwiderstand hoher Vorwiderstand vermeidet Stromschwankungen durch den sich ändernden Probenwiderstand. Der Spannungsabfall über der Probe wird wiederum durch den Lock-In-Verstärker phasenrichtig ausgewertet und der elektronischen Datenverarbeitung zugeführt.

Die Messungen erfolgen in 4-Punkt-Geometrie. Die Verwendung je eines Kontaktpaares zur Definition des Strompfads und als Spannungsabgriff reduziert den Einfluss der Kontaktwiderstände. Die gewählte Kontaktanordnung erlaubt Messungen nach der van der Pauw-Methode [vdP58], wodurch in den meisten Fällen auf eine lithographische Strukturierung der Proben verzichtet werden kann. Zur Bestimmung des Hallwiderstands fällt die Wahl auf zwei beliebige Kontaktpaare, die einen gekreuzten Strompfad definieren. Idealerweise verwendet man die 4 Kanten (1 – 5/3 – 7) oder die 4 Ecken (2 – 6/4 – 8).

Zum Abgriff der Längsspannung bedient man sich entsprechend zweier paralleler Kontaktpaare ($2 - 4/8 - 6$, etc.). Der Wechsel der Beschaltung findet wahlweise manuell an einem BNC-Schaltbrett oder an einem elektronischen Umschalter statt, der einen weitgehend automatisierten Ablauf der Probencharakterisierung erlaubt. Aussagen über die Qualität der Kontakte trifft man durch Aufnahme von Strom-Spannungs-Kennlinien mit einem *HP* Halbleiter-Parameter-Analysator.

In den supraleitenden Kannenmagnetstab kann anstelle des Probenstabs für die elektrische Charakterisierung auch der im folgenden Abschnitt beschriebene Glasfasermessstab zur Bestimmung optischer Probeneigenschaften eingeführt werden.

6.5 Photolumineszenzmessplatz

Die Photolumineszenz (PL) ist eine sehr vielseitige Methode zur kontaktlosen Charakterisierung von Halbleitern. Wird ein direkter Halbleiter mit Licht bestrahlt, dessen Photonenenergie größer ist als die Bandlücke des Halbleiters, kommt es zur Absorption. Elektronen werden aus dem Valenzband ins Leitungsband gehoben. Zusammen mit den so im Valenzband erzeugten Löchern bilden sie Elektron-Loch-Paare. Die so genannten Exzitonen rekombinieren nach einer gewissen Lebensdauer aus den Bandextrema oder anderen angeregten Zuständen. Bei direkter Bandlücke wird die dabei frei werdende Energie überwiegend in Form von Photonen abgegeben.

Energie, Intensität und Halbwertsbreite der gemessenen Emissionslinien geben wichtige Einblicke in die kristallographische Homogenität sowie in Art und Verteilung von Störstellen im Halbleiter. Bei tiefen Temperaturen und hoher Kristallqualität ist es möglich, die Rekombination von freien und störstellengebundenen Exzitonen in Abhängigkeit äußerer Felder zu studieren. Von konkretem Interesse ist die Messung der Energie des freien Exzitons in Abhängigkeit von einem senkrecht zur Probe angelegten Magnetfeld. In der gewählten Faraday-Geometrie (siehe Abschnitt 4.4) wird der σ_+ -polarisierte Schwerlochübergang von Elektronen aus Γ_6 -Leitungsbandzuständen mit Spinquantenzahl $m_s = -\frac{1}{2}$ in Γ_8 -Valenzbandzustände mit $m_j = -\frac{3}{2}$ gemäß Abbildung 4.2 beobachtet.

Zur Anregung der $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Proben mit ultravioletterem Licht stehen ein Argon-Ionen-Laser vom Typ *Spectra Physics 2045E* mit einer maximalen Leistung von 100 mW bei einer Wellenlänge $\lambda = 334$ nm sowie ein Helium-Cadmium-Laser *IK* der Firma *Kimmon* mit einer Leistung von 35 mW bei einer Wellenlänge $\lambda = 335$ nm zur Verfügung. Die Probe wird an einem eigens konstruierten Messstab befestigt, der eine Verwendung zusammen mit dem oben beschriebenen, supraleitenden Kannenmagnetstab erlaubt.

Die Messungen erfolgen bei tiefen Temperaturen von $1,2 - 4,2$ K in einem schichtsenkrechten Magnetfeld von $0 - 6$ T. Über je eine innerhalb des Probenstabs verlaufende, UV-transparente Glasfaser wird das Anregungslicht auf die Probe geleitet bzw. das Lumineszenzsignal aufgefangen und zur spektralen Analyse einem Gittermonochromator *TRIAX 550* der Firma *Jobin Yvon* zugeführt. Zur Detektion kommt eine mit flüssigem Stickstoff gekühlte CCD Kamera des gleichen Herstellers zum Einsatz. Das Photolumineszenzspektrum wird für verschiedene Werte des Magnetfelds aufgenommen. Aus der Änderung der Energie des freien Exzitons in Abhängigkeit vom Magnetfeld kann der Mn-Anteil x , der effektive g-Faktor g_{eff} und die Spinpolarisation der Elektronen ρ_e der $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Proben bestimmt werden.

Kapitel 7

Experimentelle Untersuchungen an $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$

7.1 MBE-Wachstum und strukturelle Charakterisierung

Da am Institut keine Erfahrung mit dem MBE-Wachstum verdünnter magnetischer Halbleiter bestand, war es zunächst von übergeordneter Priorität, das Wachstum von $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ zu etablieren. Dazu wurde die bisher für die Verdampfung von Magnesium verwendete Effusionszelle aus der bestehenden Epitaxieanlage für II-VI-Halbleiter ausgebaut, gereinigt und mit einem neuen Tiegel versehen. Als Aufdampfmaterial wurden zunächst Mangan(4N)-Flocken eingefüllt, in einer späteren Phase der Arbeiten wurde reineres Mn(6N) in Stabform verwendet. Die überholte Effusionszelle wurde auf der Position der früheren Mg-Quelle in die MBE-Anlage eingebaut.

7.1.1 Substratvorbehandlung, RHEED

Von der ZnSe-Epitaxie wurde das Substratmaterial GaAs übernommen, das sich aufgrund der sehr geringen Gitterfehlانpassung von lediglich $-0,3\%$ bei Wachstumstemperaturen um $T_S = 300^\circ\text{C}$ und seiner guten Verfügbarkeit in hoher Qualität bewährt hat. Als Substrate dienten zum einen $\text{GaAs}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Heterostrukturen, die in einer separaten Wachstumskammer entweder am Walter Schottky Institut in Garching oder in der lehrstuhleigenen III-V-MBE-Anlage hergestellt wurden. Zum anderen erfolgte das II-VI-Wachstum auf semiisolierende oder n-dotierte GaAs(001)-Wafer, deren Oberfläche vom Hersteller mit *epiready* gekennzeichnet war. Substratoberflächen, die mit diesem Verfahren behandelt wurden, weisen eine definierte, passivierende Ga_2O_3 -

Oxidschicht auf, die sich in einer Vakuumkammer rückstandsfrei entfernen lässt. Die strukturelle Qualität der epi-ready-Substrate war so gut, dass im II-VI-MBE-System eine H-Plasma-Reinigung der Oberfläche allein ausreichte, um einen zuverlässigen Anwachsprozess zu erreichen. Eine nasschemische Substratvorbehandlung, die noch von vorangegangenen Epitaxiegruppen zur Oberflächenreinigung praktiziert wurde [Rei96], konnte somit entfallen. Vor dem Einbau in die II-VI-MBE-Anlage wurden die Substrate in kleinere Stücke gespalten (maximal $2,5\text{ cm}^2$), deren Größe passend zum Bereich homogener Schichtdicke (vgl. Abschnitt 6.1.3) gewählt wurde.

Wasserstoffplasma-Desoxidation

In einer Molekularstrahlepitaxieanlage für GaAs wird die definierte Oxidschicht thermisch von der Substratoberfläche entfernt. Bei den dafür nötigen Temperaturen von etwa 590°C bewirkt der hohe Dampfdruck von As eine verstärkte As-Desorption und damit eine As-Verarmung der Oberfläche. Ein durch die geheizte Effusionszelle aufgebauter As-Gegendruck wirkt dem entgegen und sorgt für eine stöchiometrische Substratoberfläche.

Um eine ungewollte Dotierung zu vermeiden, verzichtet man im Allgemeinen in einer II-VI-Epitaxiekammer auf eine As-Atmosphäre. Nach einer thermischen Oxiddesorption würde eine raue, Ga-reiche Oberfläche auftreten, die die strukturelle Qualität einer aufgewachsenen II-VI-Epischicht nachhaltig verschlechtern würde. Alternativ bietet sich eine Kombination aus einer II-VI- und einer III-V-Epitaxiekammer, verbunden durch ein UHV-Transfersystem an. In der III-V-Kammer kann die Substratdesoxidation unter As-Gegendruck erfolgen und darüber hinaus eine GaAs-Pufferschicht mit einer glatten Oberfläche von definierter Stöchiometrie aufgewachsen werden. Nach dem UHV-Transfer kann das II-VI-Wachstum unter idealen Substratbedingungen stattfinden.

Das bei dem Großteil der im Rahmen dieser Arbeit hergestellten ZnSe- und ZnMnSe-Schichten angewendete Verfahren zur Entfernung der Oxidschicht der GaAs-Substrate beruht auf der reduzierenden Wirkung eines Wasserstoffplasmas (H-Plasma). Diese Oberflächenbehandlung ist für den Einsatz in einer As-freien ZnSe-Epitaxiekammer sehr gut geeignet und auch bei mäßigen Temperaturen effizient.

Wasserstoffgas der Reinheit 6N wird mit einem typischem Fluss von $0,2\text{ ml}_n/\text{min}$ Luftäquivalent in die Epitaxiekammer eingeleitet. Im Gleichgewicht mit der Leistung des Pumpsystems stellt sich ein Restgasdruck von $1 \cdot 10^{-5}\text{ mbar}$ ein. In einem Hochfrequenzfeld ($13,56\text{ MHz}$) werden hochangeregte H-Radikale und H_2 -Moleküle erzeugt. Bei einer Substrattemperatur von $350 - 400^\circ\text{C}$ wird die amorphe Oxidschicht durch

chemische Reaktion entfernt. Freie Valenzen an der Kristalloberfläche werden durch Wasserstoff abgesättigt. Bei der Wasserstoffplasma-Desoxidation wird nur die Oxidschicht der GaAs-Oberfläche angegriffen. Erst ab einem Wasserstoffangebot von ungefähr 100 L (Langmuir: $1 \text{ L} = 1,33 \cdot 10^{-6} \text{ mbar} \cdot \text{s}$) kommt es zu einem Aufbrechen der Arsenbindungen und zur Desorption von AsH_3 [Kub95]. Bei den hier verwendeten Prozessparametern beträgt die Dosis am Substrat etwa 1 – 10 L. Bei einer Restgasanalyse in dem Massenspektrometer konnte ebenfalls kein AsH_3 festgestellt werden.

Während der Plasma-Desoxidation löst der reaktive Wasserstoff Se-Ablagerungen von den Reaktorwänden und dem Substrathalter. Im Massenspektrum ist H_2Se nachweisbar, das mit der heißen GaAs-Oberfläche reagiert. Über einen Austauschprozess zwischen As und Se, der mehrere Atomlagen tief reichen kann, kommt es zur Bildung einer stabilen Ga_2Se_3 -Schicht [LiG90]. Diese enthält eine hohe Anzahl von Ga-Leerstellen, die als Nukleationskeime für Partialversetzungen dienen und zu einem dreidimensionalen Wachstum unter Bildung von Stapelfehlern führen [Kuo96]. Im RHEED-Beugungsbild tritt eine für eine GaAs(001)-Oberfläche untypische (2×1) -Rekonstruktion auf. Sie ist auf in $[1\bar{1}0]$ -Richtung gerichtete Ga-Se-Bindungen und Se-Dimere zurückzuführen und wird auch bei Se-bedeckten, getemperten GaAs(001)-Oberflächen beobachtet [LiP94].

In vorangegangenen Arbeiten wurde die Plasma-Desoxidation der GaAs(001)-Substrate hinsichtlich der strukturellen Qualität der aufgewachsenen ZnSe-Epischicht optimiert [Rei96]. Zu einer deutlichen Verbesserung der Strukturgüte führte ein zusätzlicher Zn-Fluss während der Desoxidation, durch den die Bildung von Ga_2Se_3 unterdrückt werden konnte. Ein Minimum der Defektdichte konnte bei einer Substrattemperatur von $T_S = 350^\circ\text{C}$ erzielt werden. Im Folgenden wird der in der vorliegenden Arbeit angewendete H-Plasma-Prozess zur Desoxidation der GaAs-Substrate zusammengefasst:

- Unmittelbar nach dem Einschleusen wird durch Heizen des Substrats auf $370 - 400^\circ\text{C}$ für ca. 20 Minuten anhaftende Feuchtigkeit entfernt.
- Abkühlen der Probe auf $T_S = 350^\circ\text{C}$.
- Einlass von $0,2 \text{ ml}_n/\text{min}$ H_2 . Hintergrunddruck konstant bei $p = 1 \cdot 10^{-5} \text{ mbar}$.
- Zünden des Plasmas bei einer Leistung $P = 350 \text{ W}$ des HF-Generators durch kurzzeitigen Einlass von N_2 (Druckspitze bei $2 \cdot 10^{-4} \text{ mbar}$).
- Stabilisierung des Plasmas durch gezieltes Verstimmen des Schwingkreises ($P \approx 280 \text{ W}$, $P_{\text{Verlust}} \approx 40 \text{ W}$) und Feinjustierung des H_2 -Flusses.
- Öffnen der Zn-Quelle, des Hauptshutters und der Plasmaquelle.
- 30 – 40 Minuten Plasmabehandlung unter Zn-Gegendruck bei $T_S = 350^\circ\text{C}$.

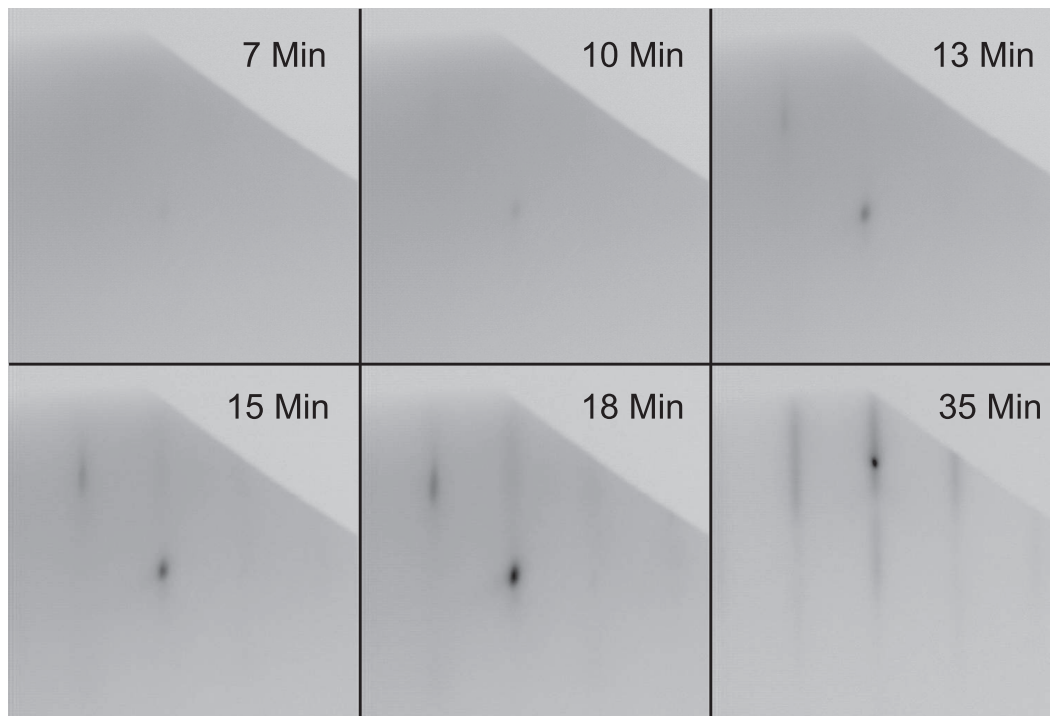


Abbildung 7.1. Entwicklung des RHEED-Beugungsbilds während der Plasma-Desoxidation einer GaAs(001)-Substratoberfläche zur angegebenen Zeit nach Prozessbeginn. Der einfallende Elektronenstrahl ist parallel zu einer $[1\bar{1}0]$ -Richtung.

- 10 Minuten Plasmabehandlung bei gleichzeitiger Abkühlung auf Wachstumstemperatur.
- Abschalten des Plasmas. Schließen der H_2 -Zufuhr und der Plasmaquelle.

Abbildung 7.1 zeigt mehrere RHEED-Beugungsbilder, die während der H-Plasma-Desoxidation eines GaAs(001)-Substrats zum angegebenen Zeitpunkt nach Prozessbeginn aufgenommen wurden. Im anfänglich diffusen Beugungsbild ist nach 10 Minuten der Spiegelreflex zu erkennen. Mit zunehmender Prozessdauer konzentriert sich die Intensität in den Beugungsreflexen. Nach 35 Minuten liegt das streifenförmige Beugungsbild einer glatten, zweidimensionalen Oberfläche vor. Der diffuse Streuhintergrund ist nahezu vollständig verschwunden, was als Beleg für eine erfolgreiche Desoxidation zu werten ist.

Der einfallende Elektronenstrahl ist parallel zu einer $[1\bar{1}0]$ -Richtung. Eine Oberflächenrekonstruktion ist hier nicht erkennbar. Dennoch zeigen RHEED-Beugungsbilder bei einem Elektroneneinfall parallel zu $[110]$ -Richtungen die schwachen Zwischenreflexe einer (2×1) -Rekonstruktion. Eine in [Rei96] berichtete Unterdrückung der $\times 2$ -Zwischenreflexe bei Zn-Exposition während der H-Plasmabehandlung konnte bei keiner der im Verlauf dieser Arbeit präparierten Proben beobachtet werden.

Dies weist zum einen darauf hin, dass eine Reaktion der GaAs-Oberfläche mit H_2Se während des Plasmaprozesses auch durch ein Überangebot von Zn-Atomen nicht verhindert werden konnte. Eine alternative Erklärung liefern zum anderen vorangegangene Experimente, in denen während der H-Plasmadesoxidation von GaAs-Substraten Oszillationen in der Intensität des Spiegelreflexes beobachtet wurden, sofern die Oberfläche einem Zn-Fluss ausgesetzt war [Blü98]. Es wird vermutet, dass sich aus angebotem Zink und dem in Form von H_2Se zur Verfügung stehendem Selen eine ZnSe-Schicht monolagenweise auf der GaAs-Kristalloberfläche abscheidet. Eine Seterminierte ZnSe-Oberfläche könnte ebenfalls die im RHEED-Beugungsbild auftretende (2×1) -Rekonstruktion erklären.

Aufbringen und Entfernen der As-Passivierung

Eine Kernaufgabe der vorliegenden Arbeit ist das Wachstum spinausrichtender ZnMnSe-Kontaktschichten auf $\text{GaAs}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Heterostrukturen mit zweidimensionalem Transportkanal. Die III-V-Heterostrukturen wurden in einer separaten MBE-Anlage gewachsen, die auf die Herstellung von Strukturen mit sehr hoher Ladungsträgerbeweglichkeit spezialisiert ist. Da beide MBE-Anlagen aus Gründen der gegenseitigen Kontamination nicht über einen UHV-Transfertunnel verbunden sind, war es erforderlich, die empfindliche Oberfläche der $\text{GaAs}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Strukturen beim ex-situ Transfer vor Oxidation zu schützen.

Ein häufig verwendetes Verfahren zur Passivierung von GaAs-Oberflächen ist das Aufbringen einer amorphen oder polykristallinen As-Abdeckschicht [Far95, Fan96]. Die einige hundert Nanometer dicke Abdeckschicht bietet Schutz vor Kontamination und chemischer Degradation.

Die fertig gewachsene $\text{GaAs}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Heterostruktur wurde in Wachstumsposition unter As-Fluss auf unter 430°C abgekühlt und anschließend aus dem As-Strahl geschwenkt. Während die Probe bei ausgeschalteter Substratheizung weiter abkühlte, wurde die Cracking-Zone der As-Quelle in Betrieb genommen. An der heißen Innenwand der Cracking-Zone wird das in Form von As_4 -Molekülen verdampfte Arsen in As_2 -Moleküle gespalten, die einen höheren Haftkoeffizienten besitzen. Bei einer Temperatur von etwa 35°C wurde die Probe zurück in Wachstumsposition gebracht und einem druckgemessenen As_2 -Materialfluss (BEP: engl. **B**eam **E**quivalent **P**ressure) von $5 \cdot 10^{-6}$ Torr ausgesetzt. Bereits nach 30 Sekunden war das RHEED-Beugungsbild von diffuser Streuung dominiert. Die $c(4 \times 4)$ -Rekonstruktion war verschwunden. Nach 2 Stunden wurde die Probe abermals aus dem As_2 -Molekularstrahl geschwenkt. Die glänzende Probenoberfläche wies auf eine homogene Beschichtung mit geringer Rauigkeit hin.

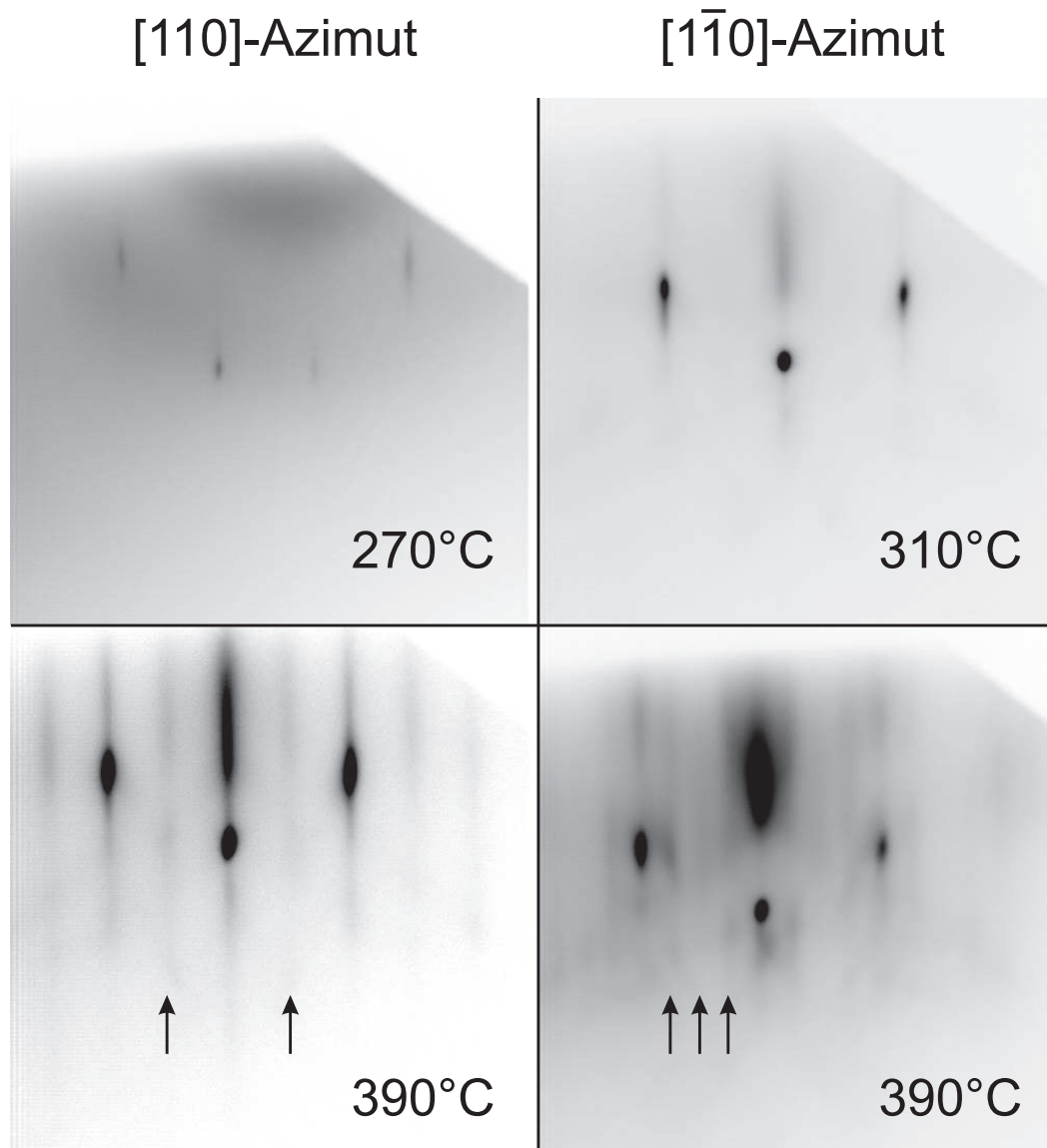


Abbildung 7.2. Entwicklung des RHEED-Beugungsbilds während der thermischen Desorption einer As-Abdeckschicht in der II-VI-Epitaxiekammer. Einfallswinkel des Elektronenstrahls und Proben temperatur sind jeweils angegeben. Die Pfeile markieren die Zwischenreflexe des $\times 2$ - bzw. $\times 4$ -rekonstruierten Beugungsbilds.

Qualität und Haltbarkeit der As-Abdeckschicht können erst bei ihrer Desorption nach dem Transfer in eine zweite Reaktorkammer beurteilt werden. Im Idealfall vergehen zwischen Aufbringen und Desorption der As-Schicht nur wenige Stunden. Oft kann jedoch aus technischen Gründen eine Lagerung der Proben über mehrere Wochen vor der Weiterverarbeitung nicht vermieden werden. Erfolgte die As-Desorption in einer GaAs-Reaktorkammer, konnte die Probe unter Rotation einem permanenten As-Fluss ausgesetzt werden, der einer As-Verarmung der Probenoberfläche entgegenwirkte. Die Proben temperatur wurde schrittweise erhöht und die Probe für einige Minuten auf

konstanter Temperatur belassen. Der Fortschritt der Desorption wurde mit RHEED kontrolliert. Das RHEED-Beugungsbild zeigte bis zu einer Proben temperatur von etwa 380°C einen starken diffusen Hintergrund. Ab $T_S = 400^\circ\text{C}$ waren zwei diffuse Laue-Kreise sichtbar, zwischen denen sich ab $T_S = 430^\circ\text{C}$ erste dreidimensionale Reflexe herausbildeten. Ab einer Temperatur von $450 - 480^\circ\text{C}$ waren die 3D-Reflexe deutlich ausgeprägt und der diffuse Hintergrund nahezu verschwunden. Erst ab einer Temperatur von $520 - 550^\circ\text{C}$ traten die Zwischenreflexe einer (2×4) -Rekonstruktion auf. Die Hauptreflexe erschienen leicht streifenförmig.

In der institutseigenen II-VI-Epitaxiekammer konnte aufgrund des fehlenden As-Angebots der oben dargestellte Temperaturbereich nicht voll ausgenutzt werden. Ein Überheizen der Probe hätte zu einer irreversiblen As-Verarmung der GaAs-Oberfläche geführt und die Probe für das $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Wachstum untauglich gemacht. Die Desorption der Arsenabdeckschicht erfolgte durch ein schrittweises Erhöhen der Substrattemperatur T_S von 250°C auf über 500°C bei gleichzeitiger Analyse des RHEED-Beugungsbilds. In vielen Fällen konnten während der As-Desorption ein deutlicher Spiegelreflex und streifenförmige Hauptreflexe, nicht aber Zwischenreflexe einer Oberflächenrekonstruktion beobachtet werden.

Erfolgte die As-Desorption nach mehrwöchiger Lagerung der Proben in einem evakuierten Behälter, wies das Beugungsbild einen sehr hohen Anteil an diffuser Streuintensität über den gesamten Temperaturbereich auf. Dies legte den Schluss nahe, dass die Schutzwirkung der As-Abdeckschicht nicht mehr gegeben und die darunter liegende Oberfläche bereits anoxidiert war. Zur Vorbereitung der Substratoberfläche für das Wachstum von $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ unterzog man diese Proben der oben beschriebenen H-Plasma-Behandlung unter Zn-Fluss. Beim Entfernen von Arsen und Oxid von deutlich gealterten Proben musste die Substrattemperatur während der H-Plasma-Behandlung auf über 450°C gesteigert werden.

In Abbildung 7.2 sind Stationen eines idealen Prozesses zur thermischen Desorption der As-Abdeckschicht von einer $\text{GaAs}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Heterostruktur zu sehen. Sie zeigt die Entwicklung des RHEED-Beugungsbilds mit zunehmender Proben temperatur und unter verschiedenen Einfallrichtungen des Elektronenstrahls. Während sich bei $T_S = 270^\circ\text{C}$ die ersten Beugungsreflexe von zwei diffusen Laue-Kreisen abheben, ist bei $T_S = 310^\circ\text{C}$ bereits der Großteil der Beugungsintensität im Spiegelreflex und den 3D-Reflexen konzentriert. Eine diffuse Streuung ist nicht mehr zu erkennen. Bei einer Temperatur von 390°C ist der Desorptionsprozess erfolgreich abgeschlossen. Die RHEED-Beugungsbilder in $[110]$ - und $[1\bar{1}0]$ -Richtung zeigen die typischen Zwischenreflexe der (2×4) -rekonstruierten GaAs-Oberfläche. Wie in Kapitel 2.3.2 erläutert, ist diese arsenreiche Oberfläche für das Wachstum von $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ am besten geeignet.

7.1.2 Anwachsprozess und in-situ Wachstumskontrolle

Wie bereits dargelegt, sind die strukturellen und elektronischen Eigenschaften an der $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}/\text{GaAs}$ -Heterogrenzfläche eng mit dem Anwachsverhalten verknüpft. Der Anwachsprozess wird durch den Zustand der GaAs-Oberfläche bestimmt. Im Folgenden wird der Wachstumsbeginn von $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ auf H-Plasma-behandelten GaAs(001)-Substraten und auf $\text{GaAs}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Heterostrukturen nach Desorption einer As-Abdeckschicht beschrieben und miteinander verglichen.

Im Vorfeld wurden die Effusionszellen auf die gewünschte Temperatur gebracht und die Teilchenflüsse anhand der Schwingquarz-Mikrowaage eingestellt. Für ein optimales Wachstum von ZnSe wurde ein Teilchenflussverhältnis von $J_{\text{Se}}/J_{\text{Zn}} \approx 2$ ermittelt [Rei96]. Wachstum unter Se-Überschuss kann allerdings zu einer Segregation von Mn führen, die den Einbau von Mn erschwert [Pre01]. Für das Wachstum von $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ wurde deshalb ein nahezu stöchiometrisches Teilchenflussverhältnis von $J_{\text{Se}}/J_{\text{Zn}} \approx 1,1 - 1,2$ eingestellt. Die mit der Schwingquarz-Mikrowaage gemessenen, dazugehörigen Aufdampfraten betrugen $R_{\text{Se}} \approx 0,8 \text{ Å/s}$ und $R_{\text{Zn}} \approx 0,4 \text{ Å/s}$.

Nach erfolgter Substratvorbehandlung ließ man die Proben unter Zn-Fluss auf eine Wachstumstemperatur von $T_S = 300^\circ\text{C}$ abkühlen. Das Wachstum wurde durch simultanes Öffnen der Mn- und Se-Quelle eingeleitet. Der Anwachsprozess ließ sich gut im RHEED-Beugungsbild verfolgen. Zusätzlich wurde die Intensität des {00}-Spiegelreflexes und des {004}-Transmissionsreflexes über einen Zeitraum von etwa drei Minuten aufgezeichnet.

Abbildung 7.3 zeigt den typischen Verlauf der normierten Intensitäten der beiden betrachteten Beugungsreflexe bei einem Anwachsprozess auf ein H-Plasma-vorbehandeltes GaAs(001)-Substrat. Zur besseren Übersicht sind die Kurven vertikal gegeneinander verschoben. Wie die anfängliche Abnahme der Intensität des Spiegelreflexes bei gleichzeitiger Zunahme der Intensität des Transmissionsreflexes zeigt, ist die erste Phase des Anwachsprozesses von Inselbildung und 3D-Wachstum geprägt. Das Inselwachstum wird durch die Bildung von Ga_2Se_3 auf der Substratoberfläche begünstigt. Nach dem Durchlaufen eines Minimums steigt die Intensität des Spiegelreflexes an, bis sie ein konstantes Niveau erreicht. Die Intensität des Transmissionsreflexes sinkt nach Erreichen eines Maximums und nimmt ebenfalls einen konstanten Wert an. Dies belegt, dass die dreidimensionalen Inseln nach kurzer Zeit zusammenwachsen und schließlich eine glatte Oberfläche bilden, auf der das weitere Wachstum in einem zweidimensionalen Modus mit gleich bleibender Stufendichte erfolgt. Erreichen die Intensitäten von Spiegel- und Transmissionsreflex ein konstantes Niveau, wird das Wachstum durch Schließen der Zn- und der Mn-Quelle unterbrochen. Zur Glättung der Oberfläche wird die Probe

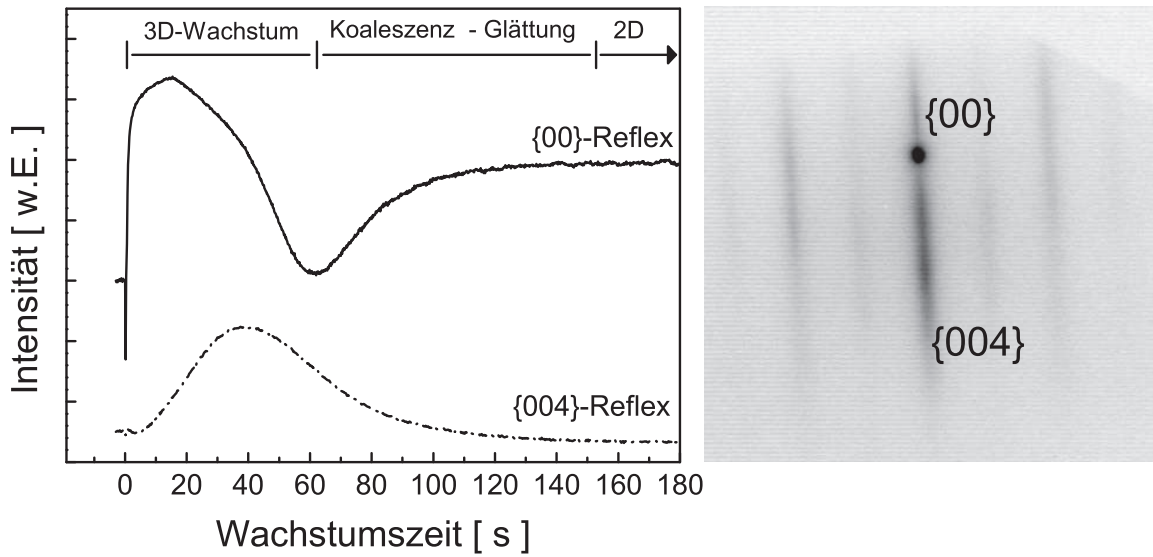


Abbildung 7.3. Links: Zeitlicher Verlauf der normierten Intensität von $\{00\}$ -Spiegelreflex und $\{004\}$ -Transmissionsreflex für den Anwachsprozess von $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ auf einem $\text{GaAs}(001)$ -Substrat nach H -Plasma-Desoxidation. Rechts: RHEED-Beugungsbild der (2×1) -rekonstruierten $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}(001)$ -Oberfläche unter $[110]$ -Azimut unmittelbar nach dem Anwachsprozess. Die streifenförmigen Reflexe und das Auftreten der Oberflächenrekonstruktion weisen auf eine glatte 2D-Oberfläche hin.

für mehrere Minuten einem Se-Fluss ausgesetzt. Die Intensität des Spiegelreflexes erfährt dabei einen Anstieg, der in einer Sättigung mündet. Das nebenstehende RHEED-Beugungsbild – aufgenommen unter $[110]$ -Azimut – zeigt die (2×1) -rekonstruierte Oberfläche der $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}(001)$ -Schicht unmittelbar nach dem Anwachsprozess. Die streifenförmigen Reflexe und das Auftreten der Oberflächenrekonstruktion sind als Beleg für eine glatte, Se-terminierte 2D-Oberfläche zu werten.

Verwendet man anstelle von kommerziellen GaAs -Wafers epitaktisch gewachsene $\text{GaAs}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Heterostrukturen als Substrat, erwartet man bessere Bedingungen für den Anwachsprozess von ZnSe und $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$. Fehlstellen, Rauigkeit und Verunreinigungen auf der Oberfläche der aus dem gezogenen Kristall geschnittenen und polierten GaAs -Substrate werden durch das MBE-Wachstum einer dicken Puffer-Schicht ausgeglichen. Die funktionelle Heterostruktur wird auf der glatten, defektarmen Oberfläche dieser GaAs -Puffer-Schicht aufgewachsen und verfügt daher über eine hohe strukturelle Güte der Oberfläche. Die Oberflächenpassivierung der GaAs -Epischichten erfolgt nicht durch eine definierte *epiready*-Oxidschicht, sondern durch eine As -Abdeckschicht.

Abbildung 7.4(a) stellt die RHEED-Intensitätsanalyse eines Anwachsprozesses von $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ auf einer $\text{GaAs}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Heterostruktur nach thermischer Desorption der As -Passivierung dar. Die zeitliche Entwicklung der Intensität von $\{00\}$ -Spiegel-

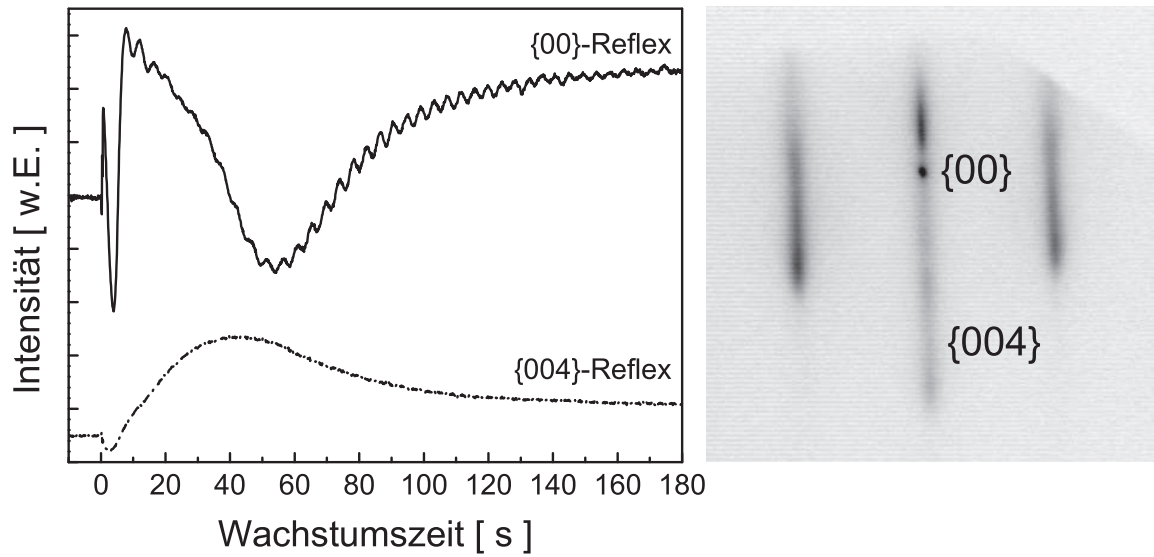


Abbildung 7.4. Links: Zeitlicher Verlauf der normierten Intensität von $\{00\}$ -Spiegelreflex und $\{004\}$ -Transmissionsreflex für den Anwachsprozess von $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ auf einer $\text{GaAs}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}(001)$ -Heterostruktur nach thermischer Desorption der As-Abdeckschicht. Rechts: RHEED-Beugungsbild einer $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}(001)$ -Oberfläche unter $[1\bar{1}0]$ -Azimut unmittelbar nach einem vergleichbaren Anwachsprozess. Die hohe Intensität der Transmissionsreflexe im zweidimensionalen Beugungsmuster deutet auf eine erhöhte Anzahl dreidimensionaler Inseln auf der Oberfläche hin.

und $\{004\}$ -Transmissionsreflex verläuft ähnlich der oben beschriebenen Messung für den Anwachsprozess auf desoxidierten $\text{GaAs}(001)$ -Substraten. Sie lässt auf einen dreidimensionalen Wachstumsstart mit nachfolgender Glättung der Oberfläche schließen. Zusätzlich kann man in der Intensität des Spiegelreflexes eine dem üblichen Verlauf überlagerte Oszillation erkennen, die auf einen zweidimensionalen Anwachsprozess hindeutet. Die Periode der beobachteten RHEED-Oszillationen stimmt mit der des späteren 2D-Wachstums überein. Schon in früheren Arbeiten wurde ein simultanes Auftreten von Frank-van der Merwe-Wachstum auf den breiten, atomar glatten Terrassen und Inselwachstum an den Stufenkanten einer desoxidierten GaAs -Epischicht beschrieben [Blü98]. In der Tat weist ein nach dem Anwachsprozess aufgenommenes RHEED-Beugungsbild, wie in Abbildung 7.4 zu sehen ist, eine erhöhte Intensität in den Transmissionsreflexen durch Elektronenbeugung an den mehrlagigen Inseln auf.

Das sofortige Einsetzen der RHEED-Oszillationen im Anwachsprozess auf einer epitaktisch gewachsenen $\text{GaAs}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Heterostruktur nach Entfernen der As-Abdeckschicht zeugt von einer im Vergleich zu einem kommerziellen GaAs -Substrat höheren Qualität der Oberfläche. Der hohe zweidimensionale Anteil des Wachstumsstarts lässt darauf schließen, dass die Epitaxie von $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ auf GaAs -Epischichten der auf kommerziellen GaAs -Substraten überlegen ist.

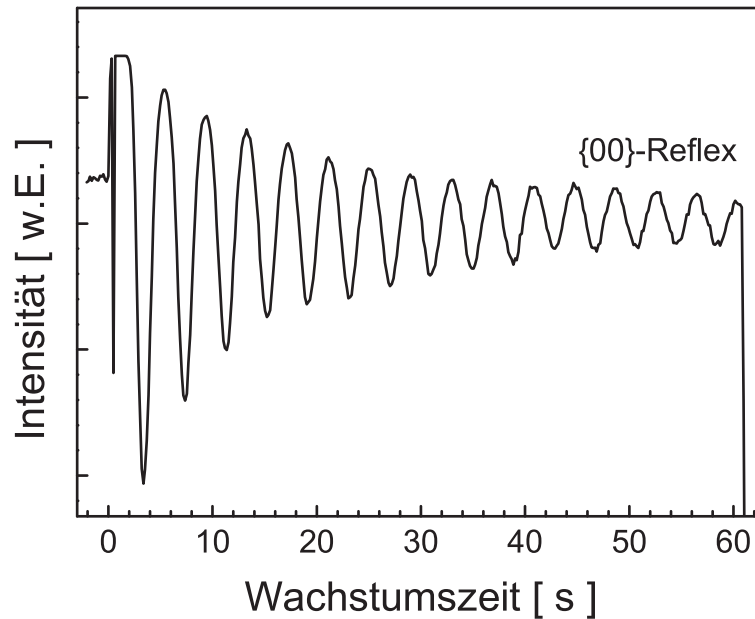


Abbildung 7.5. RHEED-Intensitätssoszillationen des {00}-Spiegelreflexes zur Bestimmung der Wachstumsrate. Das $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Wachstum erfolgte unmittelbar nach Glättung der Oberfläche unter Se-Fluss.

Neben der Kontrolle der Substratvorbereitung und der Analyse des Anwachsprozesses wurde das RHEED-System zur in-situ Wachstumskontrolle und zur strukturellen Charakterisierung der $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Schichten eingesetzt. Nach dem abgeschlossenen Anwachsprozess und der nachfolgenden Glättung der Oberfläche unter Se-Fluss wurde das Wachstum durch simultanes Öffnen der Zn- und Mn-Quelle fortgesetzt.

In mehreren Wachstumsschritten von je einer Minute Dauer wurde die Intensität des Spiegelreflexes aufgezeichnet. Für alle Proben waren in diesen Wachstumsphasen ausgeprägte RHEED-Oszillationen als Beleg für ein zweidimensionales Frank-van der Merwe-Wachstum beobachtbar. Aus der Echtzeitanalyse der {00}-Intensitätssoszillationen konnte die Wachstumsrate bestimmt werden. Je nach den eingestellten Quellen-Flüssen und dem angestrebten Mn-Anteil betrugen die gemessenen Wachstumsraten etwa 0,22 – 0,31 ML/s entsprechend 3,7 – 5,3 nm/min.

Abbildung 7.5 zeigt exemplarisch ausgeprägte RHEED-Intensitätssoszillationen bei der Fortsetzung des Wachstums auf einer bereits 130 nm dicken $\text{Zn}_{0,94}\text{Mn}_{0,06}\text{Se}$ -Schicht. Die Schichtoberfläche wurde zuvor in einer Wachstumspause von mehreren Minuten unter Se-Fluss geglättet. Aus der Auswertung der Oszillationsperiode ergibt sich eine Wachstumsrate von 4,3 nm/min. Beeinflusst von der Oberflächendiffusion beginnt an manchen Oberflächenorten bereits das Wachstum der zweiten Monolage, während an anderen Stellen die erste Monolage noch nicht komplett geschlossen ist. Der Amplitudenwert im Intensitätsmaximum sinkt daher von einer aufgewachsenen Lage zur

nächsten. Die Oszillationen der $\{00\}$ -Intensität erfahren somit eine Dämpfung und verschwinden schließlich ganz.

Wie in Kapitel 6.2 angesprochen wurde, können die aus den RHEED-Intensitätsoszillationen ermittelten Wachstumsraten zur Bestimmung der stöchiometrischen Zusammensetzung ternärer Halbleitermaterialien herangezogen werden. Für das MBE-Wachstum im System GaAs-AlAs wird diese Methode am Institut erfolgreich angewendet und liefert verlässliche Werte für den Aluminiumgehalt der im Rahmen dieser Arbeit hergestellten GaAs/ $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Heterostrukturen. Der Versuch einer Stöchiometriebestimmung der $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Proben lieferte jedoch nur unbefriedigende Ergebnisse: Die aus den Wachstumsraten von ZnSe und $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ bestimmten Werte für den Mn-Gehalt der Proben waren deutlich geringer als die für die gleiche Probe ermittelten Werte aus Röntgendiffraktometrie und Photolumineszenz (siehe Kapitel 7.2). Es wird vermutet, dass Mangan als Surfactant (engl.: surface active agent) wirkt, der die Einbaurrate der Zn-Atome beeinflusst und so die Wachstumsrate des binären ZnSe erhöht [Pre01]. Es ist möglich, dass die Anwesenheit von Mangan auf der ZnMnSe-Oberfläche die Beweglichkeit der Atome auf der Oberfläche erhöht und sich das System an der Grenze zum *Step-Flow*-Wachstum befindet. In diesem Modus findet das Wachstum nicht durch Nukleation und Koaleszenz von Inseln statt, sondern indem sich die Stufenkanten der oberen Atomlagen durch Anlagerung neuer Atome „fließend“ auf der Oberfläche fortbewegen und diese schließlich ganz bedecken. Im Idealfall bleibt dabei die Stufendichte auf der Oberfläche konstant und es können keine RHEED-Intensitätsoszillationen beobachtet werden. In dem Übergangsbereich vom Frank- von der Merwe- zum Step-Flow-Wachstum führt die Bestimmung der Wachstumsrate durch die Analyse der RHEED-Oszillationen zu ungenauen Ergebnissen. Auf eine in-situ Bestimmung der Zusammensetzung der $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Schichten mittels RHEED wurde deshalb im weiteren Verlauf dieser Arbeit verzichtet.

Für eine erste Einschätzung der strukturellen Qualität der Proben wurde die Form des $\{00\}$ -Spiegelreflexes betrachtet. Ist die $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Schicht vollständig elastisch verspannt oder nur zu einem geringen Grad relaxiert, bleibt der Spiegelreflex kreisförmig. Ist die Schichtrelaxation weiter fortgeschritten, ist dies mit einer deutlichen Verbreiterung des $\{00\}$ -Reflexes verbunden. Bei den im Rahmen dieser Arbeit hergestellten Proben wurde angestrebt, trotz Mn-Einbau eine zum Wirtskristall ZnSe annähernd vergleichbare Strukturgüte zu erreichen. Es wurden daher mehrere Proben mit einer Schichtdicke um 130 nm, die im Bereich der in Kapitel 2.1.3 genannten kritischen Schichtdicke von ZnSe liegt, präpariert. Wie man in Abbildung 7.6 erkennen kann, ist dies auch die obere Grenze für das Wachstum vollverspannter $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Schichten. Die Schichtdicke aller betrachteten Proben beträgt etwa 130 nm. Das Relaxationsver-

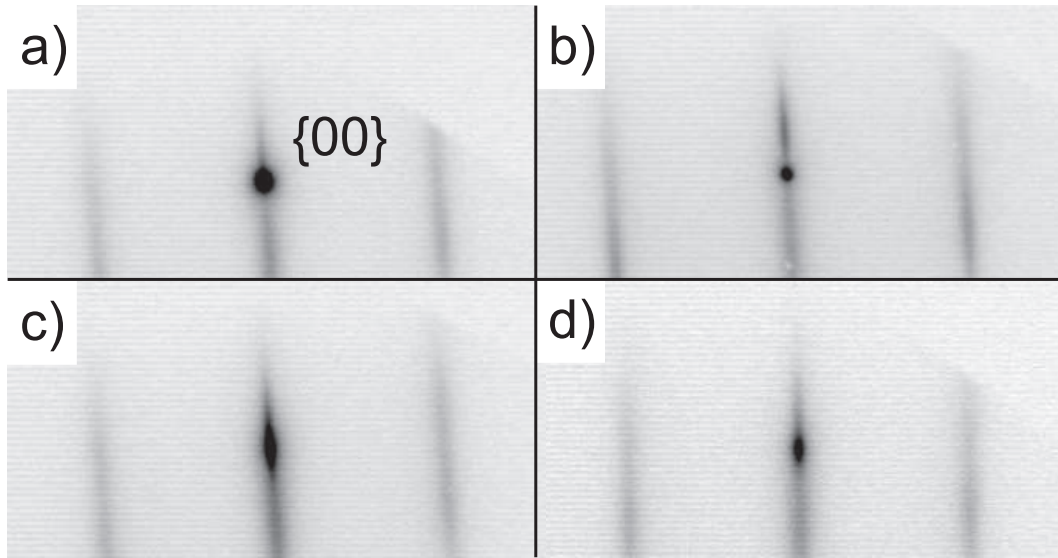


Abbildung 7.6. Vergleich der Form des $\{00\}$ -Spiegelreflexes im RHEED-Beugungsbild einer (a) ZnSe-Schicht, (b)-(c) $\text{Zn}_{0,94}\text{Mn}_{0,06}\text{Se}$ -Schicht, gewachsen auf einem GaAs(001)-Substrat nach H-Plasma-Desoxidation. In (c) traten Unregelmäßigkeiten während der H-Plasma-Vorbehandlung auf. (d) $\text{Zn}_{0,96}\text{Mn}_{0,04}\text{Se}$ -Schicht, gewachsen auf einer GaAs/ $\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ -Heterostruktur nach H-Plasma-unterstützter Desorption der As-Abdeckschicht. Die Schichtdicke aller Proben beträgt etwa 130 nm.

halten der Proben ist in diesem Bereich empfindlich von der Wahl des Substrats und der Substratvorbereitung abhängig. Abbildungen 7.6(a) und (b) zeigen den Spiegelreflex einer ZnSe- und einer $\text{Zn}_{0,94}\text{Mn}_{0,06}\text{Se}$ -Schicht nach einem optimalen Wachstum auf jeweils ein Stück desselben GaAs(001)-Wafers der Firma *Wafer Technology* nach H-Plasma-Desoxidation unter Zn-Fluss. In beiden Fällen deutet ein kreisförmiger Spiegelreflex auf eine noch nicht erfolgte Schichtrelaxation hin.

Die Herstellungsparameter der in Abbildung 7.6(c) aufgenommenen Probe sind mit denen der unter (b) dargestellten Probe nominell identisch. Unregelmäßigkeiten führten jedoch zu einer kurzzeitigen Unterbrechung des Zn-Flusses während der H-Plasma-Desoxidation. Die Verbreiterung des Spiegelreflexes ist deutlich sichtbar und ein Beleg für eine bereits fortgeschrittene Relaxation der Schicht. In Abbildung 7.6(d) wird exemplarisch eine $\text{Zn}_{0,96}\text{Mn}_{0,04}\text{Se}$ -Schicht betrachtet, die auf einer GaAs/ $\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ -Heterostruktur nach H-Plasma-unterstützter Desorption der As-Abdeckschicht gewachsen wurde. Der $\{00\}$ -Reflex ist sichtbar verbreitert. Bei allen auf epitaktisch hergestellten GaAs/ $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Heterostrukturen gewachsenen $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Schichten dieser Arbeit setzte die Schichtrelaxation relativ früh ein. Nur durch die Wahl kommerzieller *epiready*-GaAs(001)-Substrate konnte eine zu ZnSe vergleichbare kritische Schichtdicke erzielt werden.

Im Verlauf dieser Arbeit wurden ebenfalls $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Schichten mit Dicken bis 400 nm und wechselnder Dotierung zur Verwendung als Kontakt präpariert. RHEED-Untersuchungen an Proben mit Schichtdicken größer als 130 nm zeigten stets eine ausgeprägte Verbreiterung des Spiegelreflexes.

7.2 Ex-situ Charakterisierung von $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$

Nach einer ersten Charakterisierung innerhalb der MBE-Wachstumschamber wurden weitere Untersuchungen der strukturellen, magnetischen und elektrischen Eigenschaften der $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Schichten angestellt. Die Röntgendiffraktometrie diente zur qualitativen Beurteilung der strukturellen Güte sowie zur quantitativen Bestimmung des strukturellen Mn-Anteils x . In magnetfeldabhängigen Photolumineszenzmessungen konnten Aussagen über den effektiven g-Faktor g_{eff} und den paramagnetisch wirksamen effektiven Mn-Anteil x_{eff} getroffen werden. Durch Umrechnung des effektiven in den strukturellen Mn-Gehalt stand eine alternative Methode zur Bestimmung der Stöchiometrie zur Verfügung. Dotierte $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Schichten wurden nach einer Kontaktierung Magnetotransportmessungen bei tiefen Temperaturen unterzogen.

7.2.1 Röntgendiffraktometrie

In dem in Kapitel 6.3 beschriebenen Röntgendiffraktometrieaufbau wurden zur kristallographischen und stöchiometrischen Charakterisierung der Proben Rockingkurven der (004)-Reflexe von GaAs-Substrat und $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Schicht aufgenommen. Der (002)-Reflex wird nicht zur Röntgenanalyse herangezogen. Die an den beiden Untergittern der ZnSe-Zinkblendestruktur gebeugten Strahlen haben wegen der ähnlichen Atommassen und somit vergleichbaren atomaren Streufaktoren von Zn und Se einen relativen Phasenunterschied von $\pi/2$ und interferieren daher destruktiv. Aus den aufgenommenen Messkurven wurde mit einem Auswerte- und Simulationsprogramm die Halbwertsbreite der Reflexe von Substrat und aufgewachsener Schicht sowie der strukturelle Mn-Anteil x des $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ bestimmt.

In Abbildung 7.7 sind exemplarisch in logarithmischer Auftragung die $\omega/2\theta$ -Messung und die dazugehörige dynamische Simulation einer pseudomorphen, 140 nm dicken $\text{Zn}_{0,94}\text{Mn}_{0,06}\text{Se}$ -Probe im Vergleich zur entsprechenden Messkurve einer ZnSe-Schicht gleicher Dicke aufgetragen. Das schmale Maximum bei hohem Beugungswinkel stammt vom GaAs(001)-Substrat. Seine Halbwertsbreite beträgt bei allen Proben etwa $0,005^\circ$. Die kleinen Nebenmaxima stammen von Interferenzen gleicher Schichtdicke und erlauben eine Bestimmung der Schichtdicke der Proben mit einer Genauigkeit von weniger als 5 nm.

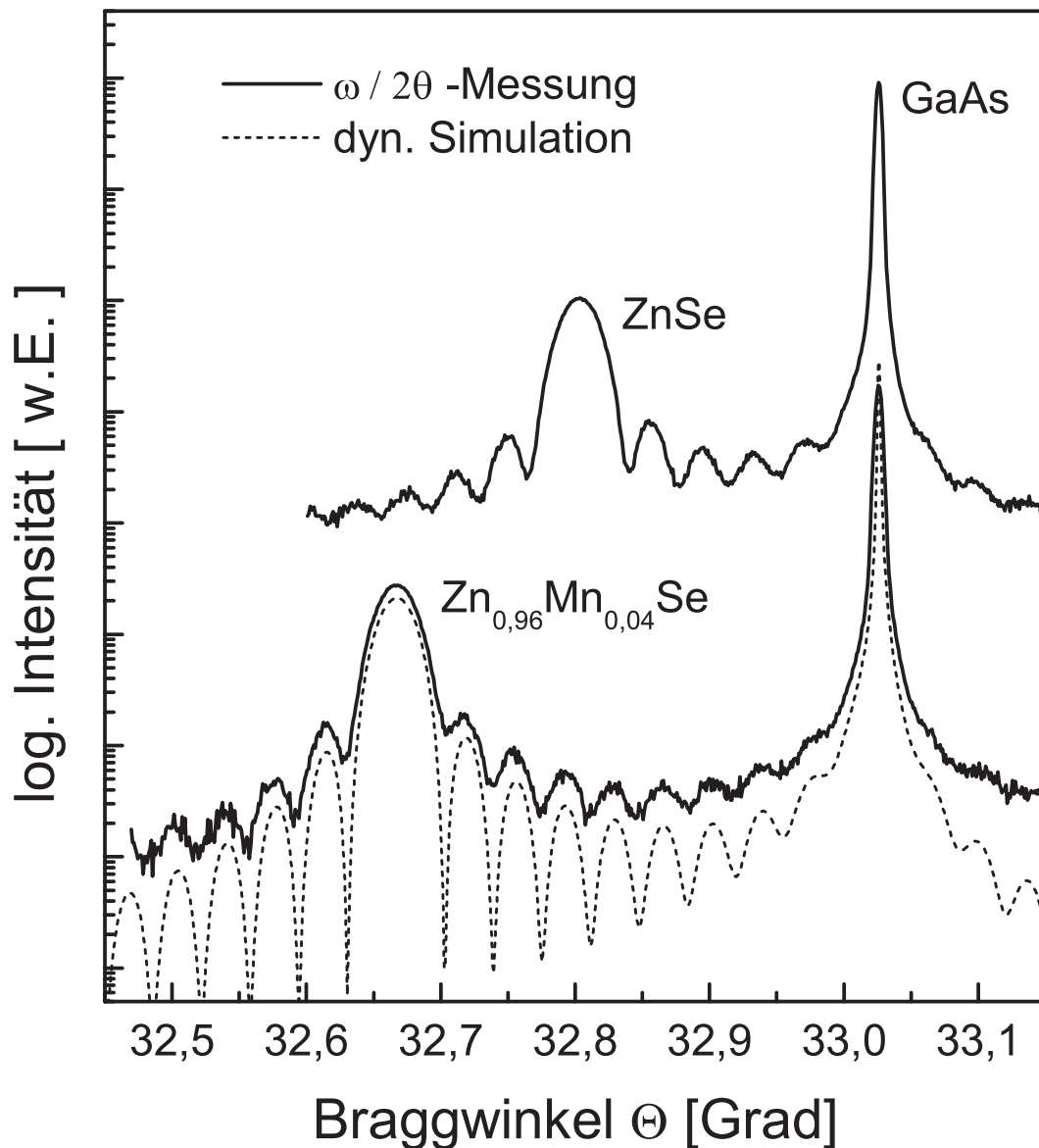


Abbildung 7.7. (004)-Rockingkurve und dynamische Simulation einer pseudomorphen, 140 nm dicken $\text{Zn}_{0,94}\text{Mn}_{0,06}\text{Se}/\text{GaAs}(001)$ -Schicht im Vergleich mit einer ebenso dicken $\text{ZnSe}/\text{GaAs}(001)$ -Schicht (vertikal nach oben versetzt).

Die Beugungsmaxima der aufgewachsenen II-VI-Halbleiterschicht sind deutlich breiter und haben eine kleinere Intensität. Durch den Einbau der Mn-Atome vergrößert sich die Gitterkonstante des $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ gegenüber der des ZnSe -Wirtskristalls. Als Konsequenz sind die Maxima der $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Schichten abhängig vom Mn-Gehalt x zu kleineren Braggwinkeln hin verschoben.

Auf $\text{GaAs}(001)$ -Substrate gewachsene $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Proben in einem Schichtdickenbereich zwischen 130 nm und 180 nm verfügen über eine Röntgenhalbwertsbreite (FWHM) des Schichtmaximums im Bereich von $0,03^\circ$ bis $0,045^\circ$. Starke Schwankungen der

FWHM-Werte findet man für 300 – 350 nm dicke Proben mit Halbwertsbreiten von $0,1 - 0,3^\circ$. Vereinzelt konnten aber auch in diesem Schichtdickenbereich Werte von $0,046^\circ$ erzielt werden. Die strukturelle Qualität der Proben unterscheidet sich im Bereich kleiner Schichtdicken nur wenig von vergleichbar dicken $\text{ZnSe}/\text{GaAs}(001)$ -Proben, deren Röntgenhalbwertsbreiten im betrachteten Schichtdickenbereich von 120 nm bis 300 nm zwischen $0,026^\circ$ und $0,035^\circ$ betragen. Die strukturelle Qualität dickerer $\text{ZnSe}/\text{GaAs}(001)$ -Proben kann als deutlich höher angesehen werden als die ihrer vergleichbar dicken Mn-haltigen Pendants.

Eine Einordnung der Probenqualität gelingt im direkten Vergleich zu Untersuchungen der kritischen Schichtdicke von ZnSe -Schichten auf (001)-orientiertem GaAs in einer vorangegangenen Arbeit [Kas97]. Man findet dort für vollverspanntes ZnSe mit Schichtdicken wenig unterhalb von 220 nm minimale Röntgenhalbwertsbreiten von 100 Bogensekunden, entsprechend $0,028^\circ$. Bei einsetzender Relaxation der Schichten steigt dieser Wert durch Versetzungen nahezu sprunghaft auf über 350 Bogensekunden ($\sim 0,1^\circ$) an. Die Ursache der Verbreiterung des Schichtreflexes liegt in der durch Defekte verursachten diffusen Streuung. Mit Überschreiten der kritischen Schichtdicke beginnen Anpassungsversetzungen zu nukleieren oder aus vorhandenen Teilversetzungen und Stapelfehlern zu entstehen. Sie begrenzen die laterale Kohärenz des Gitters und erzeugen unkorrelierte Kristallblöcke, die entlang der Gleitebenen gegeneinander verschoben sind. Die im System ZnSe/GaAs vorherrschenden 60° -Versetzungen bedingen einen senkrecht zur Grenzfläche orientierten Anteil des Burgers-Vektors, der zusätzlich eine Verkipfung der Kristallblöcke fördert. Resultat dieser Mosaizität ist eine verstärkte Variation der Netzebenenneigung und eine sich daraus ergebende Verbreiterung des dazugehörigen reziproken Gitterpunktes. Allerdings kann die Reflexbreite nur für genügend dicke Schichten (>500 nm) als Indikator für deren strukturelle Qualität herangezogen werden. Die Reflexe dünnerer Schichten werden durch die geringe Schichtdicke und das somit eingeschränkte Streuvolumen zusätzlich verbreitert.

Die mit wachsender Schichtdicke fortschreitende Gitterrelaxation soll in folgendem Beispiel verdeutlicht werden. Abbildung 7.8 zeigt einen Vergleich der (004)-Rockingkurven dreier Proben, die bei nominell gleichem Zn- und Mn-Fluss gewachsen wurden und über einen Mn-Gehalt von etwa $x = 4\%$ verfügen. Sie unterscheiden sich hingegen in Dicke und Dotierung. Schichtdicke und Röntgenhalbwertsbreite sind angegeben und durch Symbole den Graphen zugeordnet. Das Symbol \bigcirc bezeichnet die Messkurve einer vollverspannten, undotierten $\text{Zn}_{0,96}\text{Mn}_{0,04}\text{Se}$ -Schicht. Die ausgeprägten Schichtdickeninterferenzen zeugen von einer hohen strukturellen Güte und ergeben in der Auswertung eine Dicke von 130 nm. Die Symbole ∇ und \square markieren die Resultate zweier jeweils 350 nm dicken $\text{Zn}_{0,96}\text{Mn}_{0,04}\text{Se}$ -Schichten mit einer n-Dotierung um 10^{18} cm^{-3} . Die einsetzende

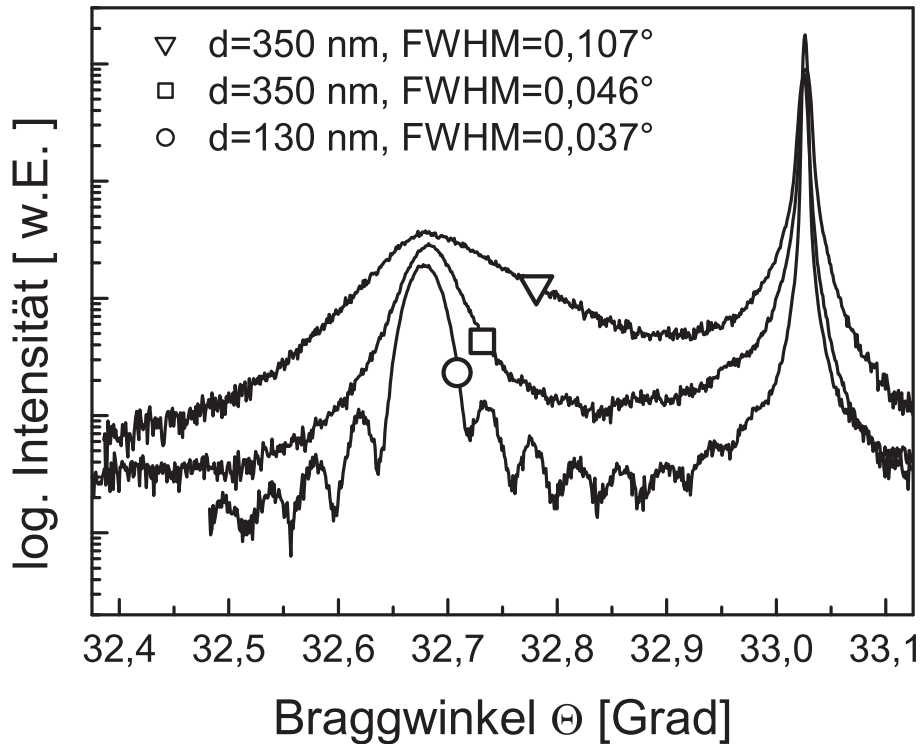


Abbildung 7.8. Direkter Vergleich der (004)-Rockingkurven dreier $\text{Zn}_{0,96}\text{Mn}_{0,04}\text{Se}/\text{GaAs}(001)$ -Schichten verschiedener Dicke und Dotierung hinsichtlich der jeweils angegebenen Röntgenhalbwertsbreite (FWHM) und der Position des Schichtmaximums. \circ : Pseudomorphe, undotierte Probe der Dicke 130 nm. \square : 350 nm dicke, teilrelaxierte Probe der Dotierung $n = 2,7 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$. ∇ : 350 nm dicke, teilrelaxierte Probe der Dotierung $n = 9,2 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$.

Gitterrelaxation verhindert hier bereits die Ausbildung von Schichtdickeninterferenzen. Die Röntgenhalbwertsbreite der mit \square gekennzeichneten Probe liegt sehr nahe an dem Wert der dünnen Probe (\circ). Dies zeugt von einer hohen kristallinen Qualität der Schicht, die sich in einer vergleichsweise geringen Anzahl von Versetzungen äußert. Die Schicht zerfällt in weniger Mosaikblöcke, die nur zu einem geringen Maße gegeneinander verkippt sind. Der Schichtreflex der mit ∇ markierten Probe ist deutlich verbreitert. Probe ∇ weist demnach eine stärkere Mosaizität auf, deren Ursache in einer höheren Versetzungsdichte im Anwuchsprozess liegen kann.

Es wurde vermutet, dass die starke Dotierung mit thermisch aufgespaltenen Organylan eine nachhaltige Beeinträchtigung der Kristallstruktur dicker $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Schichten bewirken könnte. Vergleiche mit Röntgenmessungen an undotierten Proben entsprechend hoher Schichtdicke zeigten jedoch keinen Unterschied in der Reflexbreite. Der Einfluss der Dotierung auf die Schichtrelaxation und die daraus folgende Verbreiterung des Röntgenreflexes kann somit vernachlässigt werden.

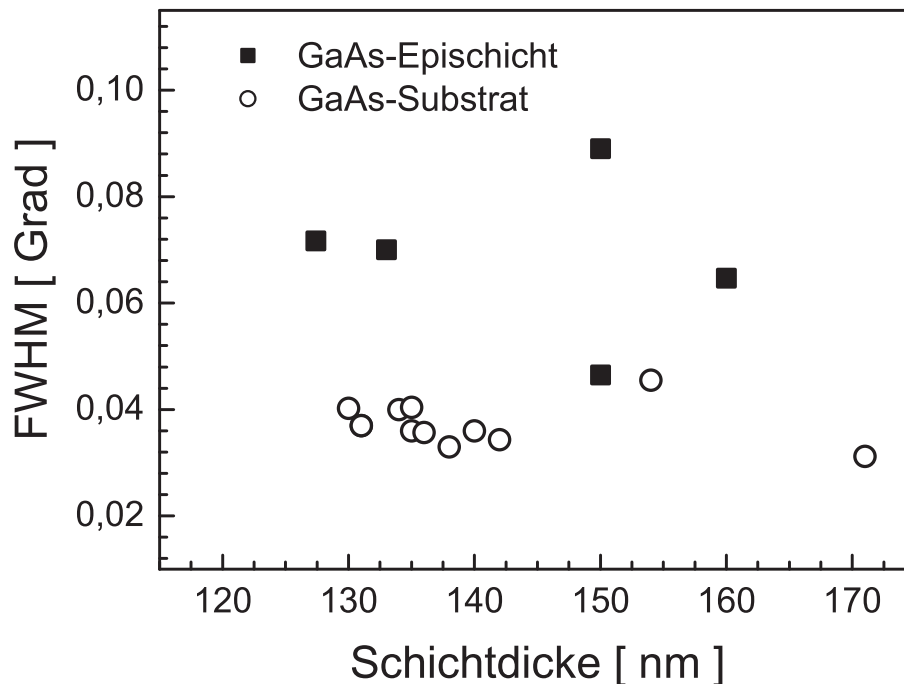


Abbildung 7.9. Auftragung der Röntgenhalbwertsbreite des (004)-Reflexes mehrerer $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Proben im Schichtdickenbereich von 120 nm bis 180 nm. Die Symbole ■ und ○ bezeichnen Werte von Proben, die auf epitaktisch gewachsene $\text{GaAs}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Heterostrukturen oder auf kommerzielle $\text{GaAs}(001)$ -Substrate abgeschieden wurden.

Es ist bemerkenswert, dass in Abbildung 7.8 die Position des Schichtmaximums mit wachsender Schichtdicke nahezu unverändert bleibt. Bei einem rein elastischen Abbau der Gitterverspannung würde man eine dem Relaxationsgrad entsprechende Verschiebung in Richtung des Substratmaximums erwarten. Bei den hier betrachteten Proben dominiert dagegen der oben beschriebene Prozess einer plastischen Relaxation. Die Deformation des Schichtgitters wird durch Versetzungsreaktionen abgebaut, die zu einer Mosaizität der aufgewachsenen $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Schicht mit einem charakteristischen Anstieg der Röntgenhalbwertsbreite führen. Die Verspannung wird mit zunehmender Schichtdicke nur langsam abgebaut. Von einer vollständig relaxierten ZnSe -Einheitszelle mit kubischer Symmetrie wird ab einer Dicke von 900 nm berichtet [Kas97].

Ein Vergleich des Wachstums von $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ auf kommerziellen $\text{GaAs}(001)$ -Substraten mit dem auf epitaktisch gewachsenen $\text{GaAs}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Heterostrukturen kommt zu dem in Abbildung 7.9 dargestellten Ergebnis. Für 130 – 180 nm dicke $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Schichten sind, abhängig vom verwendeten Substrattyp, die Halbwertsbreiten der (004)-Röntgenreflexe gegen die Schichtdicke aufgetragen. Nahezu alle auf epitaktischem $\text{GaAs}(001)$ präparierten Proben weisen eine stark erhöhte Halbwertsbreite auf. Demnach ist das Wachstum von $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ auf den verwendeten $\text{GaAs}(001)$ -

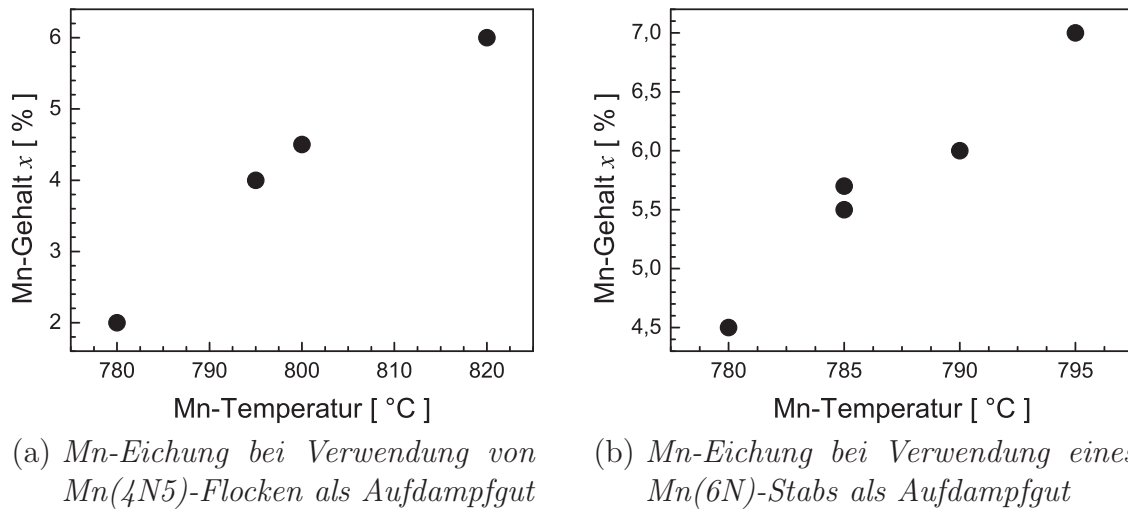


Abbildung 7.10. Mittels Röntgendiffraktometrie bestimmter Mn-Gehalt x von etwa 130 – 140 nm dicken $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Schichten in Abhängigkeit von der Temperatur der Mn-Effusionszelle. (a) Als Aufdampfmaterial dienten Mn-Flocken des Reinheitsgrads 4N5. (b) Als Aufdampfmaterial wurde Mangan (6N) in Stabform verwendet.

Epischichten entgegen der Erwartung, dass sich epitaktisch gewachsenen GaAs besser für die $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Epitaxie eignet als kommerziell erhältliche, polierte Waferstücke, von einer deutlich schlechteren Qualität gekennzeichnet. Die Proben enthalten eine hohe Dichte an Versetzungen, wodurch eine verfrühte Schichtrelaxation einsetzt und schon vergleichsweise dünne Schichten eine starke Störung der periodischen Kristallstruktur aufweisen. Diese Resultate lassen sich auch mit der in-situ Charakterisierung korrelieren. Wie die RHEED-Analyse der $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Oberfläche nach abgeschlossenem Schichtwachstum zeigt, ist der $\{00\}$ -Spiegelreflex bei allen betrachteten Proben stark verbreitert, was kennzeichnend für eine bereits einsetzende Schichtrelaxation ist.

Ein wesentlicher Aspekt der Auswertung der Röntgenmessungen war es, Informationen über den Mn-Gehalt der $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Proben zu erlangen. Eine in-situ Bestimmung des Mn-Flusses mittels Schwingquarz-Mikrowaage oder aus RHEED-Oszillationen war nicht möglich. Zur Kalibrierung des Mn-Gehalts x wurden mehrere $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Proben bei verschiedenen Temperaturen der Mn-Effusionszelle und nominell gleichem Zn- und Se-Fluss hergestellt und anschließend im Röntgendiffraktometer vermessen. Mit Hilfe des Simulationsprogramms konnte aus dem Abstand der Beugungswinkel von Schicht- und Substratmaximum nach Gleichung 2.1 der strukturelle Mn-Anteil berechnet werden.

Als Aufdampfsgut fanden in der frühen Phase dieser Arbeit Manganflocken des Reinheitsgrads 4N5 Verwendung. Diese metallischen Plättchen mit lateralen Abmessungen im Bereich von 3 – 7 mm und etwa 0,5 mm Dicke sind mit einer Schicht aus brau-

nem Manganoxid überzogen. Eine Mn-Eichung für dieses Quellenmaterial kommt zu dem in Abbildung 7.10(a) aufgetragenen Ergebnis. Allen vier etwa 130 – 140 nm dicken $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Proben war ein Zn-Fluss von 0,43 Å/s während des Wachstums gemeinsam. Die Abhängigkeit $x(T_{\text{Mn}})$ ist in dem gewählten Temperaturbereich der Effusionszelle näherungsweise linear. Ein höherer Mn-Gehalt wurde aus Gründen, die in Kapitel 4.2 dargelegt wurden, nicht angestrebt. Des Weiteren verschlechterten Temperaturen der Mn-Quelle über 810 °C spürbar die Vakuumverhältnisse in der Wachstumskammer.

Im weiteren Verlauf wurde das Quellenmaterial gegen reineres Mangan (6N) in Stabform ausgetauscht. Abbildung 7.10(b) zeigt die Abhängigkeit des Mn-Gehalts der mit dem neuen Material hergestellten Proben von der Temperatur der Effusionszelle. Auch hier zeigt $x(T_{\text{Mn}})$ einen linearen Verlauf, der eine Interpolation der Mn-Quellentemperatur für einen gewünschten Mn-Anteil einer Probe erlaubt. Es fällt auf, dass die mit dem massiven Mn-Stab als Aufdampfgut erreichten Mn-Flüsse bei gleicher Zellentemperatur annähernd das Zweifache der mit den losen Mn-Flocken möglichen Werte betragen. Nur ein kleiner Anteil dieses Anstiegs ist dem in der Eichung verwendeten, etwas geringeren Zn-Flusses von 0,39 Å/s geschuldet. Dies verdeutlichen die beiden für $T_{\text{Mn}} = 785\text{ °C}$ aufgetragenen Werte. Die Proben wurden mit einem leicht unterschiedlichen Zn-Fluss von 0,39 Å/s bzw. 0,41 Å/s gewachsen.

Der Wechsel des Aufdampfguts für die Mn-Quelle erlaubte zum einen die Verwendung eines Mn-Ausgangsmaterials mit einer um einen Faktor 50 geringeren Verunreinigungskonzentration. Zum anderen konnte die Mn-Quelle mit geringerer Heizleistung betrieben werden, was bessere Vakuumbedingungen während des Wachstums ermöglichte. Durch gezielte Wahl der Mn-Ofentemperatur und des Zn-Flusses war es möglich, den Mn-Anteil der $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Schichten auf weniger als 0,5 % genau einzustellen.

Eine Analyse der Röntgenmesskurven mit dem verwendeten Simulationsprogramm würde eine Bestimmung des Mn-Gehalts der Proben mit einer Genauigkeit von einem Promille erlauben. Aus der Unkenntnis der exakten kristallographischen Eigenschaften der aufgewachsenen Schichten erwachsen jedoch Ungenauigkeiten. So zeigen nicht alle im Verlauf dieser Arbeit entstandenen $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Proben den oben beschriebenen Relaxationsverlauf. Mitunter ist das Schichtmaximum der (004)-Rockingkurve bereits bei Schichtdicken um 300 nm und darüber gegenüber dünneren Schichten von nominell gleicher Zusammensetzung deutlich zu größeren Beugungswinkeln in Richtung Substratmaximum verschoben. Stöchiometrie und Relaxation der Proben stehen somit in einem konkurrierenden Verhältnis und erschweren die genaue Bestimmung des Mn-Anteils x . Eine genaue Klärung des Verspannungszustands gerade der zur Mn-Eichung herangezogenen Proben könnte aus reziproken Gitterkarten in der Röntgendiffraktometrie gewonnen werden. Ein hierfür erforderlicher Sekundärstrahlmonochromator war jedoch für das verwendete Gerät nicht mehr verfügbar.

7.2.2 Photolumineszenzmessungen

Magnetfeldabhängige Photolumineszenzmessungen bei tiefen Temperaturen bieten die Möglichkeit, den effektiven Mn-Gehalt x_{eff} der $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Schichten zu bestimmen. Durch Umrechnung des effektiven in einen strukturellen Mn-Anteil x können Vergleiche zu den Ergebnissen der Röntgenmessungen angestellt werden. Darüber hinaus erlaubt eine Bestimmung der magnetfeldabhängigen Leitungsbandaufspaltung Aussagen über den effektiven g-Faktor g_{eff} und die Spinpolarisation der Elektronen ρ_e der Proben zu treffen.

In dem in Kapitel 6.5 vorgestellten Photolumineszenzmessplatz wurden die Proben bei Temperaturen von 1,4 K und 4,2 K und Magnetfeldern im Bereich von 0 – 6 T gemessen. Die optische Anregung erfolgte mit Laserlicht der Leistung $P_L = 50 - 60 \text{ mW}$ bei einer Energie (Wellenlänge) von 3,72 eV (334 nm). Bei einer Eintrittsöffnung des Spektrometers zwischen 0,1 mm und 1 mm wurden die PL-Spektren der Proben mit einer Integrationszeit von 1 – 5 Sekunden aufgenommen. In Abbildung 7.11 ist die normierte Intensität gegen die Energie des bei $T = 1,4 \text{ K}$ gemessenen Lumineszenzlichts einer Probe für ausgewählte Magnetfelder aufgetragen. In jedem Spektrum sind zwei deutliche Maxima zu erkennen, die bei steigendem Magnetfeld zu kleineren Energien

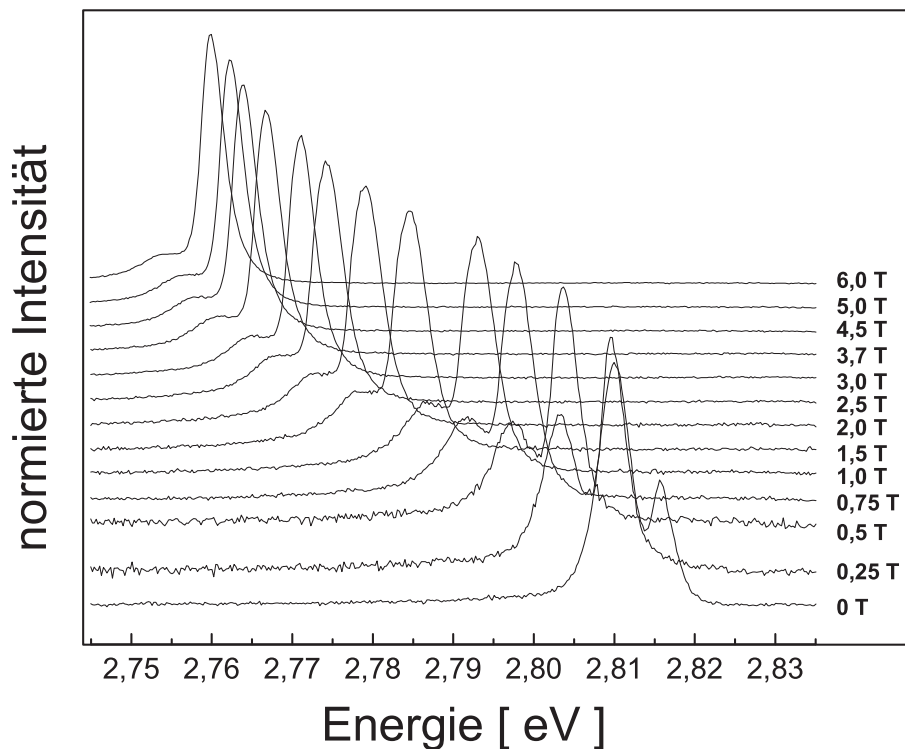
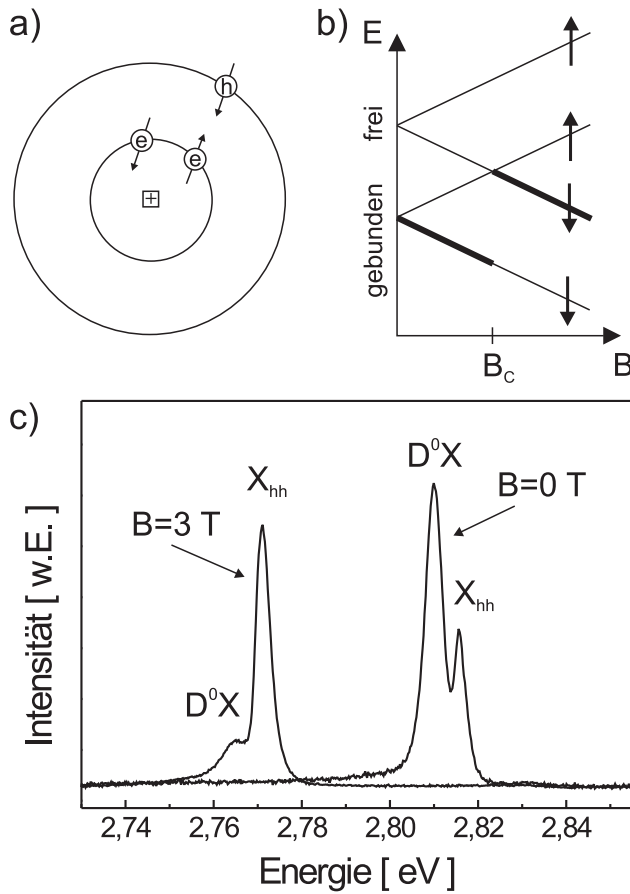


Abbildung 7.11. Normierte Photolumineszenzspektren einer $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Probe in Abhängigkeit eines äußeren Magnetfelds bei $T = 1,4 \text{ K}$.

**Abbildung 7.12.**

(a) Schematische Darstellung eines donatorgebundenen Exzitons nach [Hei86]. Das Spin-down-Loch ($m_j = -3/2$) rekombiniert mit dem Spin-down-Elektron ($m_s = -1/2$).

(b) Zeeman-Aufspaltung für das in (a) gezeigte gebundene Elektron und für ein ungebundenes Elektron. Oberhalb von B_C rekombiniert das Loch mit dem freien Spin-down-Elektron.

(c) Verlagerung der Intensität des Photolumineszenzsignals vom gebundenen D^0X - zum freien X_{hh} -Exziton im äußeren Magnetfeld bei $T = 1,4\text{ K}$.

hin verschoben sind. Das höherenergetische Maximum stammt von der Rekombination freier Exzitonen X_{hh} , während das niederenergetische Maximum von donatorgebundenen Exzitonen D^0X stammt [Hei86, Koe99]. Mit ansteigendem Magnetfeld sinkt die Rekombinationsrate des donatorgebundenen Exzitons zugunsten der des freien Exzitons. Als Konsequenz wird die Intensität des D^0X -Maximums unterdrückt, während das X_{hh} -Signal an Intensität zunimmt. Dies ist in Abbildung 7.12(c) anhand von zwei ausgewählten Spektren illustriert.

Die Unterdrückung der D^0X -Lumineszenz lässt sich nach [Hei86] erklären, indem man ein an einen neutralen Donator gebundenes Exziton gemäß der schematischen Darstellung 7.12(a) betrachtet. Zwei schwach gebundene Elektronen besetzen ein s -artiges Orbital um das positiv geladene Zentrum der Störstelle und schirmen es von dem Loch ab, das sich in einer äußeren Schale befindet. Ohne äußeres Magnetfeld orientieren sich die Spins der Elektronen antiparallel in einem Singletzustand. Bei anliegendem Magnetfeld erfahren die elektronischen Zustände eine Zeeman-Aufspaltung, dargestellt in Schema 7.12(b). Das Niveau des an der Rekombination beteiligten Spin-down-Elektrons wird jeweils durch eine dicke Linie hervorgehoben. Ab einem gewissen Magnetfeld B_C

kann ein Elektronenspin seine Energie verringern, indem er in ein weiter außen liegendes Orbital übergeht. Das Spin-up-Elektron geht für $B > B_C$ aus dem gebundenen Niveau in einen freien Zustand über und wechselt dabei die Orientierung des Spins. Im freien Zustand hat das Elektron einen größeren Überlapp mit dem Loch. Das Photolumineszenzspektrum wird vom energetisch höher liegenden Maximum dominiert. Der als frei bezeichnete Zustand kann auch ein schwach gebundener Zustand sein.

Aus den in Abbildung 7.11 gezeigten PL-Kurven kann man die Abhängigkeit der Energie des freien Exzitons vom äußeren Magnetfeld bestimmen, aus der sich direkt der magnetisch wirksame, effektive Mn-Gehalt x_{eff} der Proben ermitteln lässt. Die Substitution nach Gleichung 4.3 erlaubt es darüber hinaus, die strukturelle Mn-Konzentration x anzugeben. Bei einer optischen Anregung in Faraday-Geometrie wird die Photolumineszenzantwort der Probe vom σ_+ -Übergang von Elektronen aus Γ_6 -Leitungsbandzuständen mit Spinquantenzahl $m_s = -\frac{1}{2}$ in Γ_8 -Valenzbandzustände mit $m_j = -\frac{3}{2}$ dominiert. Für die gemessene Photonenenergie E_{Ph} findet man mit den Gleichungen 4.12 und 4.13 den Ausdruck

$$E_{Ph} = E_{Ph}^0 - \frac{1}{2} N_0(\alpha - \beta) x S_{eff}(x) \mathcal{B}_{\frac{5}{2}} \left(\frac{g_{Mn} \mu_B \frac{5}{2} B}{k_B (T + T_0(x))} \right). \quad (7.1)$$

Die im Nullfeld gemessene Übergangsenergie $E_{Ph}^0 = E_g - E_{ex}$ ist die Differenz aus der Energielücke E_g des $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ nach Graph 2.4 und der Exziton-Bindungsenergie E_{ex} , die für ZnSe zu $E_{ex} \approx 19 \text{ meV}$ abgeschätzt werden kann [Koe99]. Experimentell gefundene Werte der Parameter effektiver Spin $S_{eff}(x)$ und antiferromagnetische Temperatur $T_0(x)$ sind in Abbildung 7.13 abhängig vom Mn-Anteil x des $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ aufgetragen [Fie04]. Aus einer mathematischen Anpassung an die Daten erhält man den funktionalen Zusammenhang

$$S_{eff}(x) = -0,804 + \frac{0,364}{x + 0,1086}, \quad (7.2)$$

$$T_0(x) = 46,27 x - 284,28 x^2 + 707,23 x^3. \quad (7.3)$$

Mit den Gleichungen 7.1-7.3 lässt sich die Abhängigkeit der Energie des PL-Maximums des freien Exzitons vom Magnetfeld B simulieren und durch eine Anpassung an die Messdaten $E_{Ph}(B)$ die Mn-Konzentration x bestimmen.

Exemplarisch wird das Ergebnis der magnetfeldabhängigen Photolumineszenzmessung an einer $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Probe bei $T = 4,2 \text{ K}$ in Abbildung 7.14(a) gezeigt, in der die energetische Position des Intensitätsmaximums des freien X_{hh} -Exzitons gegen die dazugehörigen Werte des Magnetfelds aufgetragen ist. Die als durchgehende Kurve dargestellte Berechnung von $E_{Ph}(B)$ mit den angegebenen Parametern liefert einen strukturellen

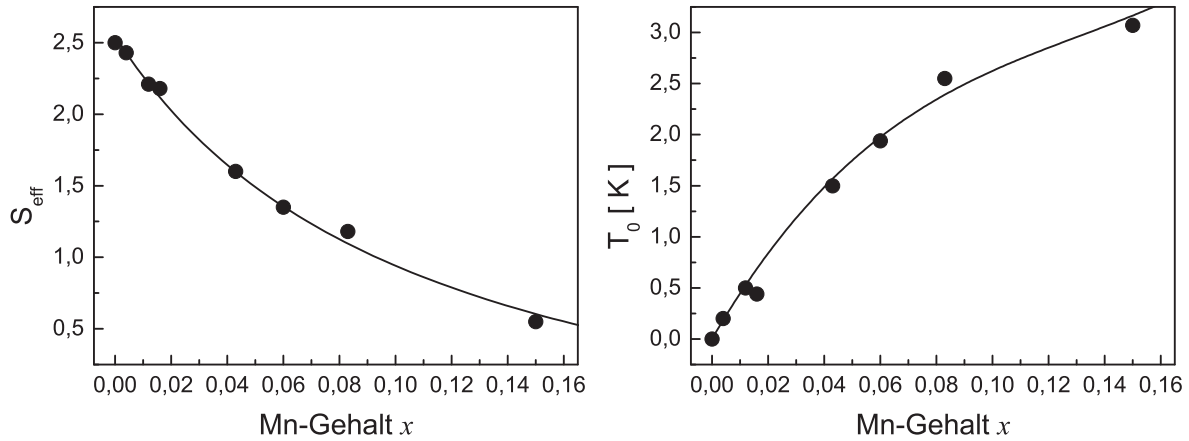


Abbildung 7.13. Abhängigkeit experimentell bestimmter Werte für den effektiven Spin S_{eff} und die antiferromagnetische Temperatur T_0 vom Mn-Gehalt x in $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Proben (nach [Fie04]).

Mn-Gehalt von $x = 0,058$. Die so gewonnenen Werte können mit denen aus XRD-Messungen verglichen werden. In Abbildung 7.14(b) sind die mittels PL gemessenen Mn-Gehalte von bereits in den Graphen 7.10(a) und 7.10(b) gezeigten Proben gegen die entsprechenden durch Röntgen gefundenen Daten aufgetragen. Für den durch das Symbol ■ gekennzeichneten strukturellen Mn-Anteil sind die Werte aus beiden Messverfahren annähernd gleich. Dies unterstreicht die Gültigkeit beider Verfahren zur Bestimmung des strukturellen Mn-Gehalts x von $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Schichten der Dicke bis 140 nm. Zusätzlich empfiehlt sich die Photolumineszenz gerade bei teilrelaxierten Schichten größerer Dicken, an denen die Röntgenanalyse an Genauigkeit verliert, als wertvolles Werkzeug. Somit lässt sich auch der Mn-Gehalt der dickeren $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Kontaktschichten, die bessere elektrische Eigenschaften zeigen und eine höhere Spinpolarisation des Elektronenstroms bewirken, messtechnisch erfassen.

Wie in Kapitel 4.2 dargelegt, treten bei steigendem Mn-Gehalt vermehrt antiferromagnetische Cluster von Mn^{++} -Ionen auf, deren Konsequenz eine Reduktion des magnetischen Gesamtmoments der Proben ist. Diese kann einerseits durch den effektiven Spin $S_{\text{eff}}(x)$, andererseits durch eine effektive Mn-Konzentration x_{eff} ausgedrückt werden, die für die paramagnetischen Eigenschaften des $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ maßgeblich ist. Sie hängt über die Gleichungen 4.3 und 7.2 mit dem strukturellen Mn-Gehalt zusammen. In Abbildung 7.14(b) sind die Datenpunkte für x_{eff} durch das Symbol ○ markiert. Der steigende Einfluss der Clusterbildung ist durch den nur geringen Anstieg von x_{eff} bei zunehmender Mn-Konzentration x deutlich erkennbar.

Damit die $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Schichten die ihnen zugedachte Rolle als spininjizierende Kontakte erfüllen können, müssen sie Ladungsträger mit hoher Spinpolarisation zur Ver-

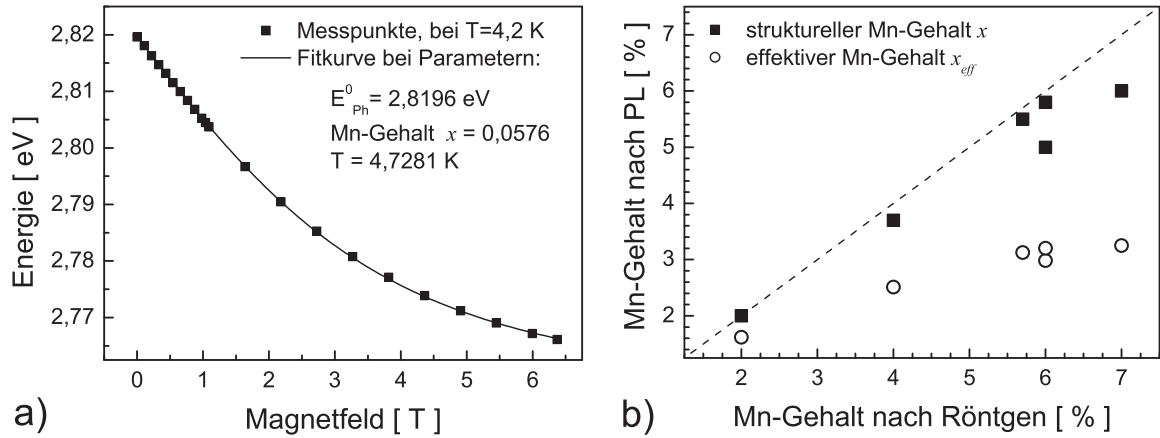


Abbildung 7.14. (a) Messung und Berechnung der PL-Energie des freien Exzitons in Abhängigkeit vom Magnetfeld für eine $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Probe zur Bestimmung des Mn-Gehalts x . (b) Aus Röntgen- und Photolumineszenzmessungen bestimmter struktureller Mn-Gehalt x ausgewählter Proben im Vergleich. Die diagonale Linie entspricht $y = x$. Zusätzlich ist der effektive Mn-Gehalt x_{eff} angegeben.

fügung stellen. In verdünnten magnetischen Halbleitern erwächst die Spinpolarisation ρ_e der Elektronen aus der Zeeman-Aufspaltung des Leitungsbands ΔE_C , die über den effektiven g-Faktor g_{eff} vom Magnetfeld abhängt. Aus der in magnetfeldabhängigen Photolumineszenzmessungen bestimmten Energie $E_{\text{Ph}}(B)$ des freien X_{hh} -Exzitons sind diese Kenngrößen durch einfache Rechnung bestimmbar.

Aus den Gleichungen 4.15 und 7.1 findet man mit $\frac{\beta}{\alpha} = -\frac{1,31}{0,26}$ aus Abschnitt 4.3 für die Leitungsbandaufspaltung ΔE_C

$$\Delta E_C = \frac{2(E_{\text{Ph}}^0 - E_{\text{Ph}})}{1 - \frac{\beta}{\alpha}}. \quad (7.4)$$

Abbildung 7.15(a) zeigt die bei $T = 4,2 \text{ K}$ gemessene Abhängigkeit der Zeeman-Aufspaltung des Leitungsbands vom Magnetfeld für zwei $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Proben. Der durch Photolumineszenz ermittelte Mn-Gehalt beträgt $x = 6,2\%$ bei Probe A und $x = 2,2\%$ bei Probe B. Die theoretischen Kurvenverläufe nach Gleichung 4.15 sind jeweils den Messdaten überlagert und können die experimentell gefundenen Werte gut reproduzieren. Eine geringe Diskrepanz von $0,4 \text{ K}$ besteht zwischen dem gemessenen und dem für die Berechnung verwendeten Temperaturwert. Da sich die Proben während des Experiments in einem Bad aus flüssigem Helium bei Atmosphärendruck befanden, kann von einer dem Messwert entsprechenden Proben temperatur ausgegangen werden. Die Abweichung lässt sich statt dessen durch die Magnetfeldabhängigkeit von E_{Ph}^0 erklären, die hauptsächlich aus dem magnetfeldabhängigen Beitrag der Exziton-Bindungsenergie E_{ex} erwächst, in den Berechnungen 7.1 und 7.4 jedoch keine Beachtung findet.

Bei hohen Magnetfeldern strebt die Zeeman-Aufspaltung des Leitungsbands einen Sättigungswert E_{Sat} an, der mit steigendem Mangananteil zunimmt. Mit Gleichung 4.15 findet man

$$E_{\text{Sat}}(x) = N_0 \alpha x S_{\text{eff}}(x) . \quad (7.5)$$

Dieser Sättigungswert ist in Abbildung 7.15(a) für die jeweilige Probe angegeben. Er wird bei den im Experiment erzielbaren Magnetfeldern und Temperaturen jedoch nicht erreicht. In hier nicht gezeigten Messungen bei $T = 1,4 \text{ K}$ zeigte die Leitungsbandaufspaltung zwar einen schnelleren Anstieg mit B als bei höheren Temperaturen, konnte aber den dem Mangangehalt entsprechenden Sättigungswert nicht erreichen.

Aus der Kenntnis von ΔE_C lässt sich mit Gleichung 4.9 unter Vernachlässigung von $g^* \approx 2$ der effektive g-Faktor nach

$$g_{\text{eff}} = g^* + \frac{\Delta E_C}{\mu_B B} = \frac{2(E_{\text{Ph}}^0 - E_{\text{Ph}})}{(1 - \frac{\beta}{\alpha})\mu_B B} \quad (7.6)$$

ermitteln. Der schnelle Anstieg von ΔE_C schon bei kleinem Magnetfeld und die Sättigung zu hohen Magnetfeldern hin lassen erkennen, dass g_{eff} besonders bei kleinen Magnetfeldern und niedrigen Temperaturen sehr hohe Werte annimmt. Für Probe A mit den charakteristischen Mangangehalten $x = 6,2 \%$ und $x_{\text{eff}} = 3,3 \%$ beträgt der bei $T = 4,2 \text{ K}$ und $B \approx 150 \text{ mT}$ gemessene Maximalwert des effektiven g-Faktors $g_{\text{eff}} = 90$. Auch bei Probe B ($x = 2,2 \%$ und $x_{\text{eff}} = 1,6 \%$) liegt der maximale effektive g-Faktor mit $g_{\text{eff}} = 59$ noch um ein Vielfaches höher als g^* . Größere Werte für g_{eff} sind leicht bei tieferen Temperaturen zu erzielen. So konnte für eine $\text{Zn}_{0,95}\text{Mn}_{0,05}\text{Se}$ -Schicht bei $T = 1,4 \text{ K}$ ein Maximalwert von $g_{\text{eff}} = 140$ bestimmt werden.

Die Effektivität eines Spinausrichters zeigt sich in seiner Fähigkeit, Elektronen von nur einer definierten Spinsorte zur Verfügung zu stellen. Entscheidend ist dabei der schon in Abschnitt 4.5 besprochene Grad der Spinpolarisation der Elektronen ρ_e . Durch den hohen effektiven g-Faktor von $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ kommt es zu einem schnellen Anwachsen der Zeeman-Aufspaltung des Leitungsbands $\Delta E_C(B)$, aus dem man mit Hilfe von Gleichung 4.20 den Spinpolarisationsgrad ρ_e bestimmen kann. In Abbildung 7.15(b) ist der durch Photolumineszenzmessungen bei $T = 4,2 \text{ K}$ ermittelte Wert von ρ_e für Probe A und eine weitere Schicht mit geringerer Mangankonzentration x aufgetragen. Für Probe B standen nur Messwerte bei Magnetfeldern über 1 Tesla zur Verfügung, so dass sich die Entwicklung von $\rho_e(B)$ nicht veranschaulichen lässt. Wie man deutlich sieht, erreicht die Spinpolarisation des Leitungsbands von $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ schon bei niedrigem Mangangehalt von $x = 4,1 \%$ und kleinen Magnetfeldern von wenigen hundert Millitesla Werte von $\rho_e > 99,9 \%$.

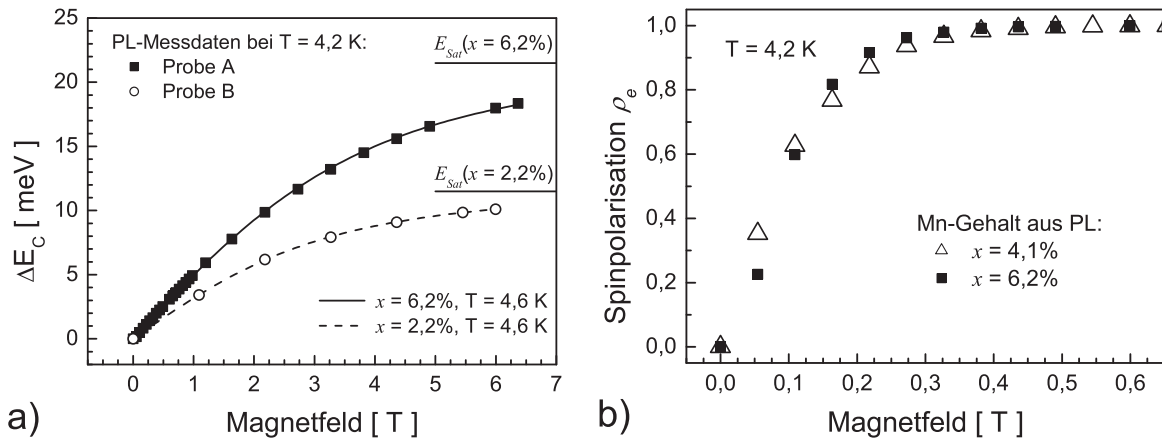


Abbildung 7.15. (a) Aus PL-Messung der Energie des freien Exzitons ermittelte Zeeman-Aufspaltung des Leitungsbands ΔE_C zweier $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Proben mit unterschiedlichem Mn-Gehalt x sowie dazugehörige theoretische Kurvenverläufe. (b) Aus der Leitungsbandaufspaltung bestimmte Spinpolarisation bei $T = 4,2 \text{ K}$ bei jeweils angegebener Mn-Konzentration.

Im Vergleich dazu haben ferromagnetische Metalle wie Eisen, Nickel oder Cobalt lediglich eine Spinpolarisation an der Fermikante von jeweils etwa 40 %, gemessen durch Andreev-Reflektion an supraleitenden Niob-Kontakten bei $T = 1,6 \text{ K}$ [Sou98]. In vergleichbaren Experimenten findet man für die Heusler-Legierung NiMnSb (Nickelmanganantimonid) Spinpolarisationen bei E_F von 58 % und 80 % für das manganhaltige Perovskit $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{MnO}_3$. Auch die in dem Halbmetall CrO_2 auf diese Weise gemessene Spinpolarisation von 90 % bleibt hinter dem in der vorliegenden Arbeit gefundenen Wert für $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ zurück. Eine effiziente Injektion spinpolarisierter Ladungsträger aus magnetischen Kontakten in nichtmagnetische Halbleiter setzt allerdings eine Spinpolarisation von nahezu 100 % im Kontakt voraus [Sch00]. Ein Vorteil ferromagnetischer Materialien bleibt freilich, dass sie auch im remanenten Zustand und meist auch bei Raumtemperatur spinpolarisierte Elektronen zur Verfügung stellen können.

7.3 Elektrische Charakterisierung der Spinausrichter-Schichten

Im Gegensatz zu ferromagnetischen Metallen lassen sich die elektrischen Eigenschaften der DMS-Materialien durch Dotieren gezielt maßschneidern. In manganhaltigen II-VI-Halbleitern ist es darüber hinaus von großem Vorteil, die elektrischen unabhängig von den magnetischen Eigenschaften optimieren zu können. Während III-V-DMS eine starke intrinsische Löcherleitung aufweisen, ermöglichen Donatoren in II-VI-DMS

rein elektronische Bauelemente. Man profitiert somit von der um ein Vielfaches höheren Lebensdauer des Elektronenspins gegenüber dem Spin der Löcher.

7.3.1 Dotierung von $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ mit n-Butylchlorid

Die im Rahmen dieser Arbeit vorgestellten II-Mn-VI-Kontaktschichten weisen eine n-Dotierung durch die monovalenten Halogene Chlor oder Iod auf. Am physikalischen Institut der Universität Würzburg hergestellte $\text{Zn}(\text{BeMn})\text{Se}$ -Proben werden mit Iod-Atomen dotiert, die durch Verdampfen von Zinkiodid (ZnI_2) aus einer Effusionszelle freigesetzt werden. Die Regelung der Dotierkonzentration erfolgt über die Zellentemperatur. Im institutseigenen II-VI-MBE-System dient Chlor als Donator der hier gewachsenen n- $\text{Zn}(\text{Mn})\text{Se}$ -Schichten. Wie in Abschnitt 6.1.3 beschrieben, wird gasförmiges n-Butylchlorid ($\text{n-C}_4\text{H}_9\text{Cl}$) mit einem durch den Hinterdruckregler reduzierten Druck von 2 – 3 mbar bereitgestellt und durch ein Nadelventil in eine Pyrolysezelle geleitet. An deren etwa 330 °C heißen Innenwand erfolgt eine Aufspaltung des Chlorkohlenwasserstoffs in kürzere Moleküle, die im weiteren Verlauf auf die Probe treffen. Im Massenspektrum des Restgases treten während des Dotierprozesses zusätzlich die Partialdrücke der Massen m_{41} und m_{56} auf, die von den Spaltprodukten des n-Butylchlorids stammen. Die Ladungsträgerdichte der Proben korreliert empfindlich mit dem Partialdruck p_{m41} und lässt sich über den Gasfluss durch das Nadelventil sehr genau einstellen. Auf der Grundlage dieser Abhängigkeit ist es möglich, eine Kalibrierung des Dotierprozesses vorzunehmen. Zu diesem Zweck sind mehrere $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}:\text{Cl}$ -Schichten bei unterschiedlichen Werten von p_{m41} hergestellt worden. Als Ergebnis sind die in Hallmessungen bei $T = 4,2\text{ K}$ bestimmte Ladungsträgerdichte n und der Partialdruck p_{m41} in Abbildung 7.16 doppeltlogarithmisch gegeneinander aufgetragen. Ein einfaches Potenzgesetz liefert den funktionalen Zusammenhang

$$n = 6,2 \cdot 10^{22} p_{m41}^{0,52} \cdot \text{cm}^{-3} \quad \text{mit } [p_{m41}] = \text{torr.} \quad (7.7)$$

In den hier vorgestellten $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Proben erzielt man mit dem oben beschriebenen Verfahren problemlos Elektronendichten zwischen $2 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ und $4,5 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$. Da der Partialdruck der Masse 41 über den erzielbaren Dotierbereich um mehr als drei Größenordnungen variiert, lässt sich die Dotierung der Proben sehr genau einstellen. Der Hintergrunddruck in der Wachstumskammer beträgt einem niedrigen und einem hohen Dotierfluss entsprechend etwa $5 \cdot 10^{-8} \text{ mbar}$ und $3 \cdot 10^{-6} \text{ mbar}$. Die Herstellung besonders hochdotierter Proben findet deshalb in einem Modus ähnlich der **C**hemical-**B**eam **E**pitaxy (CBE) statt. Obwohl in Röntgenmessungen kein nachteiliger Einfluss der Dotierung auf die strukturelle Qualität der Schicht feststellbar war, blieben hohe

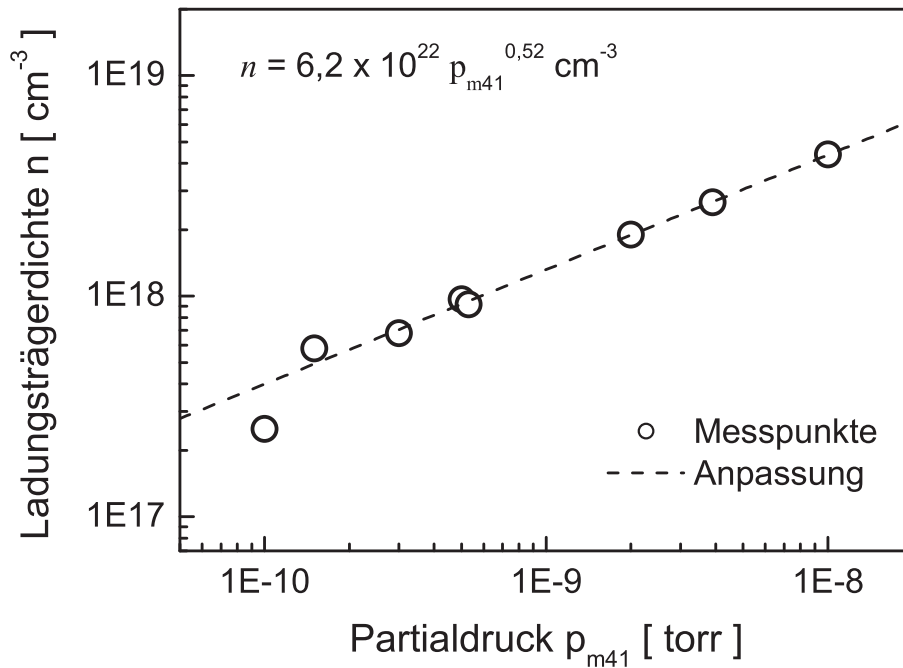


Abbildung 7.16. Bei $T = 4,2 \text{ K}$ gemessene Ladungsträgerdichte n von $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Proben aufgetragen gegen den Partialdruck p_{m41} während des Wachstums. Die Symbole \bigcirc bezeichnen die Datenpunkte. Aus der Anpassung folgt das ebenfalls angegebene Potenzgesetz, dargestellt durch eine Linie.

Dotierkonzentrationen nur dem oberen Randbereich der Kontaktschichten vorbehalten. Eine kontrollierte Dotierung von $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ wird erst seit wenigen Jahren auf Basis des Feststoffs ZnCl_2 praktiziert [Aba95]. Im Rahmen dieser Arbeit kann so erstmals von einer erfolgreichen Kontrolle der Ladungsträgerdichte von chlordotiertem $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ unter Verwendung gasförmigen n-Butylchlorids berichtet werden.

7.3.2 Kontaktierung von n- $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$

Als eine große Herausforderung erwies sich im Rahmen dieser Arbeit die reproduzierbare Kontaktierung der DMS-Proben. Der Einbau der zu testenden Strukturen in eine elektronische Messanordnung erfordert einen Übergang von Halbleitermaterial zu Metall. Wie bei den meisten Halbleitern, kommt es auch an der Grenzfläche von $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ zu einem Metall aufgrund der in beiden Materialien stark unterschiedlichen Elektronendichten und Fermienergien zu einer Verbiegung der elektronischen Bänder. Durch Ladungsverschiebung im Zuge der Angleichung beider Fermi-niveaus wird eine an Ladungsträgern verarmte Zone gebildet, die sich fast vollständig in das Material mit der deutlich geringeren Elektronendichte, also den Halbleiter, erstreckt. Die Bandverbiegung bildet eine Potentialbarriere mit meist gleichrichtendem Charak-

ter, die nach dem *Schottky*-Modell beschrieben wird. Die Breite der Schottky-Barriere ist unter anderem auch von der Dotierung des Halbleiters abhängig und kann durch hohe Elektronenkonzentrationen stark verringert werden [Sze85]. Der Ladungstransport durch die Grenzfläche zu einem hochdotierten Halbleiter wird anstatt von thermischer Emission vom Tunnelstrom durch die Barriere getragen.

Zieht man zur Steigerung der Empfindlichkeit der elektrischen Probencharakterisierung die Lock-In-Technik heran, ist eine lineare Strom-Spannungs-Kennlinie des Bauteils und somit ein ohmsches Verhalten der Kontakte unerlässlich. Für Letzteres ist eine geringe Höhe und Breite der Barriere und ein dadurch dominanter Anteil an Tunnelstrom nötig [Wei06]. Alle getesteten, n-dotierten Kontaktschichten wurden deshalb mit einer hochdotierten Abdeckschicht ($n \approx 3 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$) einer Dicke von 30 – 50 nm versehen. Eine Kontaktierung von Proben ohne Randdotierung blieb erfolglos. Im Rahmen des Schottky-Modells ist die Höhe der Barriere durch die Differenz der Austrittsarbeit des Metalls und der Elektronenaffinität des Halbleiters ($\chi_{\text{ZnSe}} = 3,51 \text{ eV}$, [Vos89]) gegeben. Nach den Erfahrungen zur Herstellung ohmscher Kontakte zu n-ZnSe bietet die Wahl von Indium als Kontaktmetall für n-dotiertes $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ einige Vorteile:

- Eine vergleichsweise geringe Austrittsarbeit ($\Phi_{\text{In}} = 4,12 \text{ eV}$, [Ada94]) führt zu einer kleinen Potentialbarriere.
- Indium wirkt im Wirtsmaterial ZnSe als flacher Donator.
- Eine hohe Diffusion von Indium in ZnSe erhöht die Ladungsträgerkonzentration an der Oberfläche, verringert die Breite der Verarmungszone und erleichtert so das Durchtunneln der Barriere [Wan92].
- Die Diffusion von In in ZnSe wird durch Tempern begünstigt. Die dabei ausreichenden Temperaturen von 200 – 300 °C übersteigen nicht die Wachstumstemperatur der Halbleiterschichten.

Die Höhe der Schottky-Barriere wird nicht allein durch das Verhältnis von Austrittsarbeit zu Elektronenaffinität bestimmt. Ist die Halbleiteroberfläche durch Ätzprozesse oder eine ex-situ Oxiddesorption gestört, dominiert der Einfluss von Oberflächenzuständen [Blo96]. Darüber hinaus können die Haftung des Metalls auf der Halbleiteroberfläche und chemische Reaktionen an der Grenzfläche die Eigenschaften des Kontakts erheblich beeinflussen [Par99]. Die schwache Benetzung der $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Oberfläche durch Indium ist hier von Nachteil.

Aufgelötete In-Kontakte

Zu einer schnellen Charakterisierung der am Institut gewachsenen $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se:Cl}$ -Schichten wurde, wie in Abschnitt 6.4 erklärt, die van der Pauw-Methode herangezogen. Nach Entfernen des Oberflächenoxids durch Ätzen der Proben in verdünnter Salzsäure wurden Kanten und Ecken der rechtwinkligen Probenstücke mit einer Wolframkarbidnadel eingeritzt. Auf diese Defekte wurden mit einer auf etwa 300°C geheizten Lötspitze kleine Indiumtropfen aufgebracht. Funktionierende Kontakte ließen sich erst durch Legieren unter Formiergasatmosphäre in einem speziellen Ofen herstellen. Folgende Aufstellung liefert eine Prozessübersicht:

- 1 Minute Ätzen in $\text{HCl} : \text{H}_2\text{O}$ (Reinstwasser: $18,2\text{ M}\Omega$).
- 1 Minute Spülen in Reinstwasser.
- Aufbringen der $\text{In}(6\text{N})$ -Kontakte mit dem LötKolben.
- Einlegieren unter Formiergas ($95\% \text{ N}_2$, $5\% \text{ H}_2$, 700 mbar):

Legiertemperatur: $250 - 300^\circ\text{C}$

Legierzeit: 10-15 Minuten

Aufheizzeit: 3 Minuten

Diese Methode lieferte eine hohe Ausbeute ohmscher Kontakte und erlaubte in den meisten Fällen eine schnelle Bestimmung der Ladungsträgerdichte der Proben, ohne auf lithographische Techniken zurückgreifen zu müssen. Sie ist allerdings nicht dazu geeignet, um In-Kontakte auf die mit $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Spinausrichtern versehenen $\text{GaAs}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Heterostrukturen aufzubringen. Durch die mechanische Beanspruchung der Halbleiterstrukturen mit der Lötspitze kann ein direktes Ankontaktieren des 2DEG nicht ausgeschlossen werden.

Kontaktherstellung in der In-Aufdampfanlage

Um eine mechanische Beanspruchung der Proben zu vermeiden und definierte Kontaktgeometrien zu realisieren, wird das Kontaktmetall Indium in Vakuumanlagen verdampft und auf die Probenoberfläche abgeschieden. Die lehrstuhleigene Aufdampfapparatur besteht aus einem kleinen, mit einer Glasglocke abgedeckten Metalltopf, der sich mit einem Turbomolekularpumpensystem in kurzer Zeit bis zu einem Restgasdruck von $1 \cdot 10^{-6}\text{ mbar}$ evakuieren lässt. Das Aufdampfgut wird aus heizbaren Schiffchen evaporiert, die Probenmontage erfolgt in geringem Abstand (4 cm) darüber mit der

Oberfläche nach unten. Ein schwenkbares Shutterblech schirmt die Probe bei Bedarf von der Wolke verdampfter Teilchen ab. Die Definition der Kontaktgeometrie erfolgt durch Schattenmasken aus Aluminium- oder Tantalblech. Die damit erreichbaren lateralen Strukturgrößen bewegen sich im Millimeterbereich oder darüber. Der Strom durch das Schiffchen wird erhöht, bis sich ein Niederschlag an der Glaskuppel zeigt. Der Beschichtungsvorgang beginnt mit Öffnen des Shutters und wird je nach erforderlicher Schichtdicke nach wenigen Minuten beendet. Die deutliche Trübung der Glaskuppel bis hin zu ihrer vollständigen Intransparenz dient als Indikator für ein erfolgreiches Aufdampfresultat.

Die Proben wiesen an den Aussparungen der Schattenmaske deutlich sichtbare Indiumfelder auf. Diese Methode der Kontaktherstellung lieferte ein heterogenes Ergebnis. Obwohl auf einigen $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Schichten ausreichend viele Kontakte ohmsches Verhalten zeigten, ließ sich dieses Resultat für nominell gleichartige Proben nicht bestätigen. Tempern der Schichten konnte die Qualität der Kontakte nicht verbessern. Im Gegenteil, Kontakte, die ungetempert noch ohmsches Verhalten zeigten, wiesen nach der thermischen Behandlung eine deutlich nichtlineare Strom-Spannungs-Kennlinie auf. Eine mögliche Ursache dieses Verhaltens liegt in der kurzen Distanz zwischen der heißen Quelle und der Probe. Die Halbleiterschicht wird dadurch während der Beschichtung hinreichend erwärmt, um die Diffusion von Indium zu initiieren. Weiteres Tempern kann hingegen eine Überkompensation der Randschicht des $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ bewirken und den Kontakt dadurch verschlechtern [Wan92].

Kontaktherstellung unter Reinraumbedingungen

Im weiteren Verlauf zeigte sich, dass eine nötige Reduktion der lateralen Abmessungen der Teststrukturen die Möglichkeiten der angewendeten Schattenmaskentechnik übersteigen würde. Es wurden neue Strukturierungsverfahren auf Basis der optischen Lithographie entwickelt, die auf dem Gebrauch von Photolack basieren. Diese Polymerschichten sind der hohen thermischen Belastung während der Beschichtung kaum gewachsen. Darüber hinaus fand die gesamte lithographische Prozessierung unter Reinraumbedingungen statt. Es bot sich daher an, die reinrauminterne, kommerzielle Aufdampfanlage vom Typ *Leybold UNIVEX* zur Probenmetallisierung zu verwenden. In dieser Apparatur können Proben bei einem Restgasdruck von $1 \cdot 10^{-6}$ mbar mit bis zu drei verschiedenen Materialien aus zwei widerstandsbeheizten Schiffchen und einem Elektronenstrahlverdampfer beschichtet werden. Eine kalibrierte Schwingquarz-Mikrowaage dient zur Bestimmung der Aufdampftrate. Durch den hohen Abstand zwischen Quellen und Probenhalterung von etwa 50 cm erfährt die Photolackbeschichtung zur Definition der Kontaktfelder auf den Proben keine schadhafte, thermische Belastung.

Zur Kontaktierung wurden die $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Schichten einem mehrstufigen Reinigungsprozess in Aceton und Propanol unterzogen und anschließend mit einem Schleuderverfahren eine etwa einen Mikrometer dicke Schicht aus Photolack aufgebracht. Die belackte Probe wurde durch eine Negativmaske, bestehend aus einer Glasplatte mit einer vorstrukturierten Chrombeschichtung, mit ultraviolettem Licht bestrahlt. Verschiedene im Reinraum bereits vorhandene Masken boten eine gewisse Auswahl an Größe und Anordnung der Kontaktfelder. In einem Entwicklerbad ließen sich die belichteten Segmente der Lackschicht entfernen. Nachdem die freigelegten Bereiche der $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Oberfläche in einem Ätzschritt in verdünnter Salzsäure (siehe oben) von Oxid befreit wurden, erfolgte der Einbau in die Aufdampfanlage. Die Proben wurden nacheinander mit 100 nm Indium und 30 nm Gold beschichtet. Den Abschluss bildete das Ablösen (engl.: lift-off) der metallisierten Lackbeschichtung in Aceton. Die zurückbleibenden In/Au-Felder konnten nun als Kontakt dienen. Für das Einlegieren der Metallisierung stellten sich in einem Testverfahren eine Legiertemperatur von 250 °C sowie eine Aufheiz- und Legierzeit von je 7 Minuten als optimal heraus. Ein Großteil der so behandelten Kontaktfelder zeigte in einer Messung des Zweipunktwidestands bei Heliumtemperatur ohmsches Verhalten.

In-situ Metallisierung

Im Verlauf dieser Arbeit bestand die Gelegenheit, den MBE-Cluster des physikalischen Instituts der Universität Würzburg zur Herstellung ioddotierter $\text{Zn}_{1-x-y}\text{Be}_y\text{Mn}_x\text{Se}$ -Schichten mit wechselndem Beryllium- und Mangangehalt zu nutzen. Zur besseren Kontaktierung wurden sämtliche Spinaligner- und nichtmagnetische Vergleichsstrukturen mit einer hochdotierten ZnSe-Abdeckung ($n = 1,5 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$) von 25 nm Dicke überwachsen. Durch einen UHV-Tunnel erfolgte der Transfer der Proben in eine spezielle Metallisierungskammer. Mit einem Elektronenstrahlverdampfer wurde die ZnSe-Oberfläche mit einer Schichtfolge von 10 nm Aluminium, 10 nm Titan und 30 nm Gold versehen. Die einzelnen Kontaktfelder ließen sich durch optische Lithographie und nass-chemisches Ätzen definieren. Dabei wurde die Goldschicht durch eine Ätzlösung aus einer Mischung von Kaliumhexacyanoferrat-III : Natriumsulfat : Thioharnstoff (jeweils 10 % Lösung) im Verhältnis 1 : 1 : 1 entfernt. Titan und Aluminium ließen sich problemlos mit 0,25 % Flußsäure ätzen. Dieses Verfahren zur Probenkontaktierung erwies sich als überaus zuverlässig und resultierte in ohmschem Verhalten aller Kontakte. Um die elektrische Charakterisierung der n- $\text{Zn}_{1-x-y}\text{Be}_y\text{Mn}_x\text{Se}$ -Proben nicht zu verfälschen, musste die zwischen den Kontakten liegende n⁺-ZnSe-Schicht in einem weiteren Ätzschritt entfernt werden.

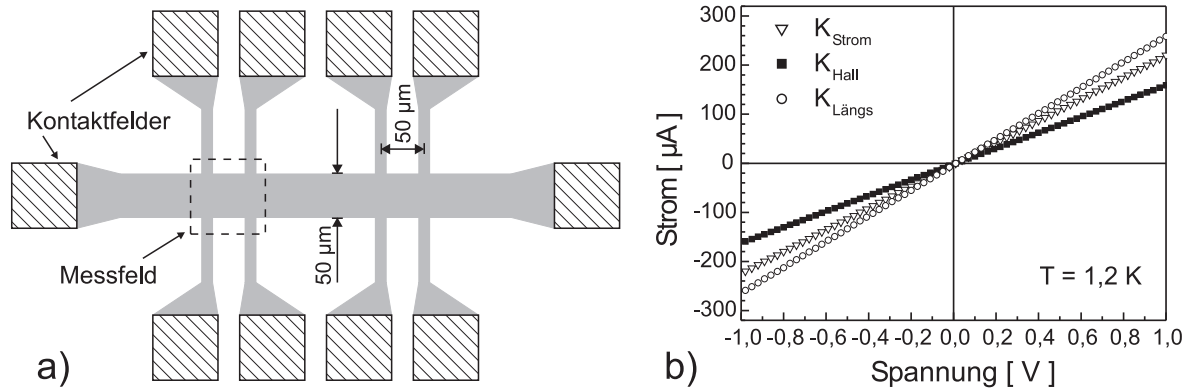


Abbildung 7.17. (a) Typische Hallbar-Geometrie für Transportmessungen an $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Schichten. Ein Strompfad durchläuft zwei Messfelder mit je vier Spannungsabgriffen zur Messung von Hall- und Längsspannung. Die Breite des Strompfads beträgt ebenso wie der Abstand zweier Potentialsonden eines Messfelds $50\text{ }\mu\text{m}$. (b) In 2-Punkt-Messung bei $T = 1,2\text{ K}$ ermittelte Strom-Spannungs-Kennlinien zur Kontrolle des ohmschen Verhaltens lithographisch definierter Al/Ti/Au-Kontakte auf einer in Hallbar-Geometrie prozessierten $n\text{-Zn}_{0,91}\text{Be}_{0,05}\text{Mn}_{0,04}\text{Se}$ -Schicht von 250 nm Dicke. Die gezeigten Kennlinien wurden an den Kontaktpaaren zur Einspeisung des Stroms, K_{Strom} , sowie zum Abgriff der Hall- und der Längsspannung, K_{Hall} und $K_{\text{Längs}}$, gemessen.

Der Einsatz der optischen Lithographie beinhaltet einen deutlichen Mehraufwand und gleichzeitig einen Verlust an Flexibilität gegenüber einer Kontaktierung mittels Schattenmaskentechnik oder gar LötKolben. Von Vorteil ist hingegen die Möglichkeit, die Halbleiterschichten einer weiteren lithographischen Prozessierung zu unterziehen und dabei Strukturgrößen im Mikrometerbereich zu realisieren. Eine definierte Kontaktgeometrie für elektrische Transportexperimente bietet beispielsweise eine Hallbar-Struktur, wie sie in Abbildung 7.17(a) skizziert ist. Ein Strompfad der Breite $50\text{ }\mu\text{m}$ kreuzt zwei Messfelder mit je vier Spannungsabgriffen. In jedem Messfeld dienen zwei aufeinander folgende Potentialsonden im Abstand von ebenfalls $50\text{ }\mu\text{m}$ zur Messung der Längsspannung. An exakt gegenüberliegenden Potentialsonden wird die Hallspannung abgegriffen. Die Kontaktfelder der Proben bestanden, wie bereits angesprochen, wahlweise aus einer aufgedampften In/Au- oder Al/Ti/Au-Metallisierung. Die II-VI-Halbleiterschicht wurde entweder mit dem Plasmaätzverfahren RIE (engl.: **R**eactive **I**on **E**tching) oder nasschemisch durch 37 % Chrom-Schwefelsäure geätzt. Diese Mischung von $\text{K}_2\text{Cr}_2\text{O}_7$: H_2SO_4 : H_2O im Mengenverhältnis $1\text{ g} : 10\text{ ml} : 20\text{ ml}$ zeichnet sich bei einer Ätzgeschwindigkeit von 200 nm/min für $\text{Zn}(\text{BeMn})\text{Se}$ -Verbindungen durch eine hohe Selektivität von $20 : 1$ gegenüber $(\text{GaAl})\text{As}$ aus. Sie eignet sich daher besonders für die Strukturierung von II-VI-Kontakten auf empfindlichen III-V-Heterostrukturen.

Graph 7.17(b) zeigt exemplarisch Strom-Spannungs-Kennlinien einer in Hallbar-Geometrie prozessierten $n\text{-Zn}_{0,91}\text{Be}_{0,05}\text{Mn}_{0,04}\text{Se}$ -Schicht von 250 nm Dicke. Zur Über-

prüfung des ohmschen Verhaltens der Al/Ti/Au-Kontakte erfolgten die Messungen in 2-Punkt-Geometrie an den relevanten Kontaktpaaren K_{Strom} zur Einspeisung des Stroms sowie an K_{Hall} und $K_{\text{Längs}}$ zum Abgriff der Hall- und der Längsspannung. Bei einer Probentemperatur von $T = 1,2 \text{ K}$ wiesen alle I-V-Kennlinien einen linearen Verlauf mit 2-Punkt-Widerständen um $5 \text{ k}\Omega$ auf.

Vergleicht man die verschiedenen Kontaktierungsmethoden, so lieferte die in-situ Metallisierung mit Al/Ti/Au die besten Resultate mit durchwegs reproduzierbaren, ohmschen Kontakten und einem spezifischen Kontaktwiderstand von $7 \cdot 10^{-4} \Omega \text{cm}^2$ [Leh05]. Dieser Wert ist nahe dem minimalen bisher erreichten Kontaktwiderstand von $1,1 \cdot 10^{-4} \Omega \text{cm}^2$ einer getemperten Ti/Pt/Au-Metallisierung auf $\text{n}^+\text{-ZnSe}$ [Miy92]. Dem gegenüber waren nur in seltenen Fällen alle hergestellten In/Au-Kontakte einer Probe funktionsfähig. Diese hohe Unzuverlässigkeit war gepaart mit einem hohen, für diese Materialkombination üblichen spezifischen Kontaktwiderstand im Bereich von $10^{-2} - 1 \Omega \text{cm}^2$ [Par99].

7.3.3 Magnetotransportmessungen

Im Vorfeld der Spininjektionsversuche an Systemen aus $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Kontaktschichten auf GaAs/ $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Heterostrukturen bestand die Notwendigkeit, die Ladungsträgerdichte und den spezifischen Widerstand der DMS-Schichten zu bestimmen. Aufgrund ihrer schnellen Handhabung fiel die Wahl, wie auch bei nichtmagnetischen Halbleiterschichten, auf eine Kontaktierung in van der Pauw-Geometrie (vgl. Abschnitt 6.4) mit aufgelöteten und einlegierten In-Kontakten. Bei Temperaturen von $1,2 - 4,2 \text{ K}$ und einem Magnetfeld von $0 - 6 \text{ T}$ wurden der Hallwiderstand R_{Hall} und unter zyklischer Permutation der Kontakte zwei Längswiderstandswerte R_1 und R_2 gemessen. Gemäß der van der Pauw-Methode berechnet man aus dem Quotienten $Q = R_1/R_2$ den spezifischen Widerstand ρ des Materials der Schichtdicke d nach

$$\rho = \frac{\pi}{\ln 2} f(Q) d \left(\frac{R_1 + R_2}{2} \right). \quad (7.8)$$

Die Probengeometrie wird dabei durch den van der Pauw-Korrekturfaktor $f(Q)$ berücksichtigt, der durch die Gleichung

$$\frac{Q - 1}{Q + 1} = \frac{f}{\ln 2} \arccos \left[\frac{1}{2} \exp \left(\frac{\ln 2}{f} \right) \right] \quad (7.9)$$

definiert und numerisch bestimmt wird. Abbildung 7.18(a) zeigt die bei $T = 1,2 \text{ K}$ gemessene Magnetfeldabhängigkeit des spezifischen Widerstands ρ einer $\text{Zn}_{0,93}\text{Mn}_{0,07}\text{Se}$ -

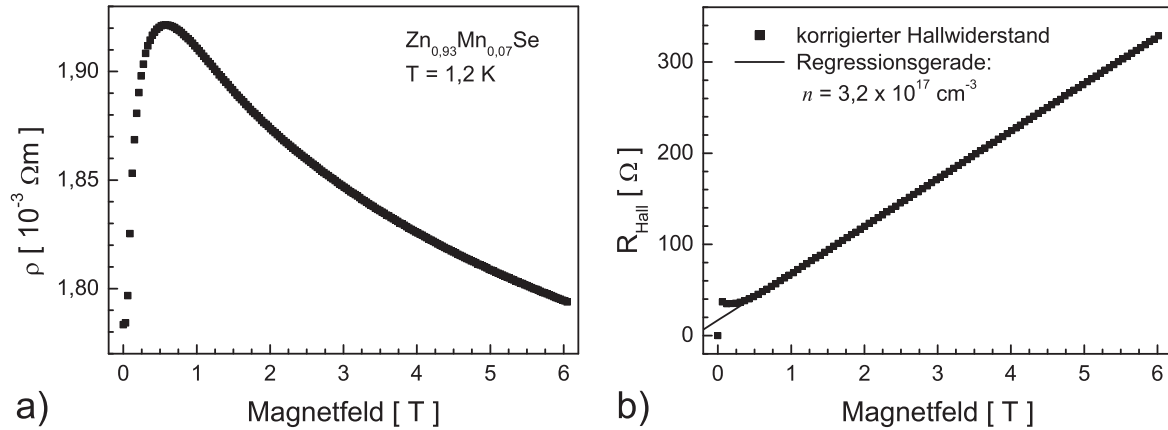


Abbildung 7.18. Magnetotransportmessungen in van der Pauw-Geometrie an einer 400 nm dicken $\text{Zn}_{0,93}\text{Mn}_{0,07}\text{Se}$ -Schicht bei $T = 1,2 \text{ K}$: (a) Verlauf des nach der van der Pauw-Methode bestimmten spezifischen Widerstands im schichtsenkrechten Magnetfeld. (b) Um den Längswiderstand korrigierter Hallwiderstand. Die Regressionsgerade wurde bei hohen Magnetfeldern berechnet. Aus ihrer Steigung errechnet sich die Ladungsträgerdichte zu $n = 3,2 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$.

Schicht von 400 nm Dicke. $\rho(B)$ erfährt ausgehend von $\rho_0 = 1,78 \cdot 10^{-3} \Omega\text{m}$ im Nullfeld einen Anstieg um 8% bei einem Magnetfeld von 0,6 T. Auf das Maximum folgt ein Bereich negativen Magnetowiderstands, der sich mit zunehmendem Magnetfeld abschwächt. Der Hallwiderstand wird von dieser starken Änderung in $\rho(B)$ beeinflusst und zeigt einen nichtlinearen Verlauf bei kleinen Magnetfeldern. Die in Graph 7.18(b) aufgetragenen Werte wurden aus einer Korrektur von $R_{\text{Hall}}(B)$ um den Beitrag des Längswiderstands gewonnen und zeigen für $B > 1 \text{ T}$ einen linearen Anstieg. Die Auswertung der Steigung der Regressionsgerade bei hohem Magnetfeld ergibt mit

$$n = \frac{1}{e} \left(\frac{dR_{\text{Hall}}}{dB} \right)^{-1} \frac{1}{d} \quad (7.10)$$

eine Volumenladungsträgerdichte von $n = 3,2 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$. Bei kleinen Magnetfeldern ist für R_{Hall} eine deutliche Abweichung von der Geraden erkennbar. Die Unstetigkeit bei $B = 0$ beruht auf einem Messartefakt. Obwohl das verwendete Verfahren eine Bestimmung der elektrischen Probenparameter ρ_0 , $\rho(B)$ und n erlaubt, kann somit der Einfluss des Längswiderstands auf den Hallwiderstand nicht restlos eliminiert werden.

Um gerade dies zu erreichen, wurde die Kontaktgeometrie exakt definiert. Unter Einsatz der optischen Lithographie erfolgte die Prozessierung einer 365 nm dicken $\text{Zn}_{0,95}\text{Mn}_{0,05}\text{Se}:\text{Cl}$ -Schicht zu einer Hallbar-Struktur, wie sie in Abbildung 7.17(a) skizziert ist. Aufgedampfte In/Au-Felder lieferten ohmsche Kontakte zum DMS. Der für die elektrische Charakterisierung dieser Probe verwendete Messaufbau erlaubte ein Um-

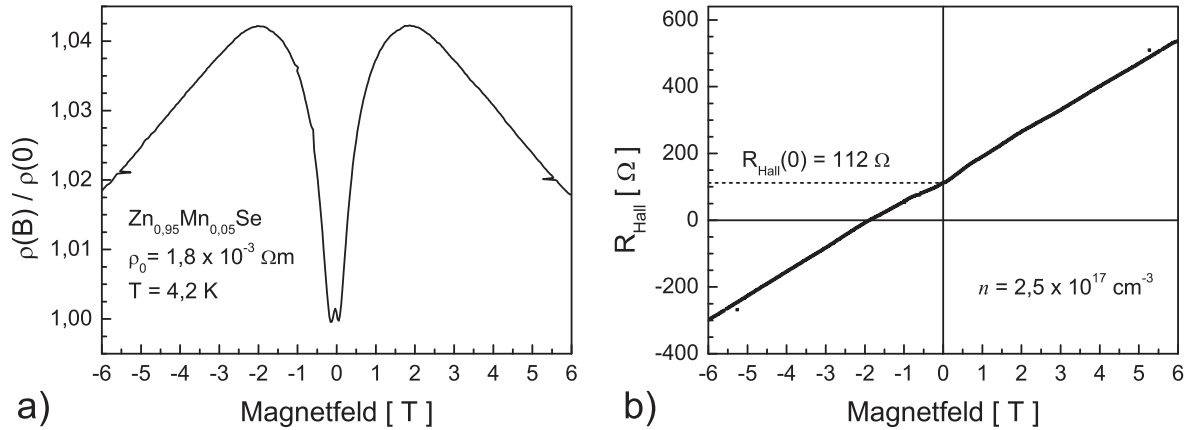


Abbildung 7.19. Magnetotransportmessungen in Hallbar-Geometrie an einer 365 nm dicken $\text{Zn}_{0,95}\text{Mn}_{0,05}\text{Se}$ -Schicht bei $T = 4,2 \text{ K}$: (a) Verlauf des spezifischen Widerstands im schichtsenkrechten Magnetfeld. (b) Messung des Hallwiderstands über den gesamten zugänglichen Magnetfeldbereich. Aus der mittleren Steigung der Regressionsgeraden bei hohem positivem und negativem Magnetfeld errechnet sich die Ladungsträgerdichte zu $n = 2,5 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$. Im Nullfeld liefert ein leichter Versatz der Potentialabgriffe einen Beitrag des Längswiderstands.

polen des Magnetfelds während der Messung und vermied so das Artefakt am Start der Magnetfeldrampe im Nullfeld. Bei einer Probentemperatur von $T = 4,2 \text{ K}$ wurde das angelegte Magnetfeld kontinuierlich über den Bereich von $-6 \text{ T} \leq B \leq +6 \text{ T}$ durchgestimmt und bei einem Strom von $I = 100 \text{ nA}$ die Hallspannung V_H und die Längsspannung V_L aufgenommen. Wie Graph 7.19(b) zeigt, beschreibt der gemessene, unkorrigierte Hallwiderstand nahezu über den gesamten Feldbereich eine Gerade. Aus dem Mittelwert der Steigung dR/dB im hohen positiven und negativen Magnetfeld ergibt sich die Ladungsträgerdichte der Probe zu $n = 2,5 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$. Um den Feldnullpunkt ist allerdings auch hier ein magnetfeldabhängiger Beitrag des Längswiderstands zu erkennen, der zudem eine Verschiebung des Ursprungs der Hallgerade um 112Ω bewirkt.

Den spezifische Widerstand ρ der Probe errechnet man in der verwendeten Messgeometrie mit einem Kontaktabstand L und einer Breite des Strompfads W von jeweils $50 \mu\text{m}$ aus

$$\rho = \frac{V_L}{I} \frac{W}{L} d = R_L d. \quad (7.11)$$

Der bei $T = 4,2 \text{ K}$ im Nullfeld ermittelte spezifische Widerstand $\rho_0 = 1,76 \cdot 10^{-3} \Omega\text{m}$ entspricht weitgehend dem oben in van der Pauw-Messung ermittelten Wert der vergleichbar dotierten Probe mit leicht höherem Mangangehalt. Die Verschiebung von $R_{Hall}(0)$ kann unter Berücksichtigung von ρ_0 durch einen lateralen Versatz der Potenti-

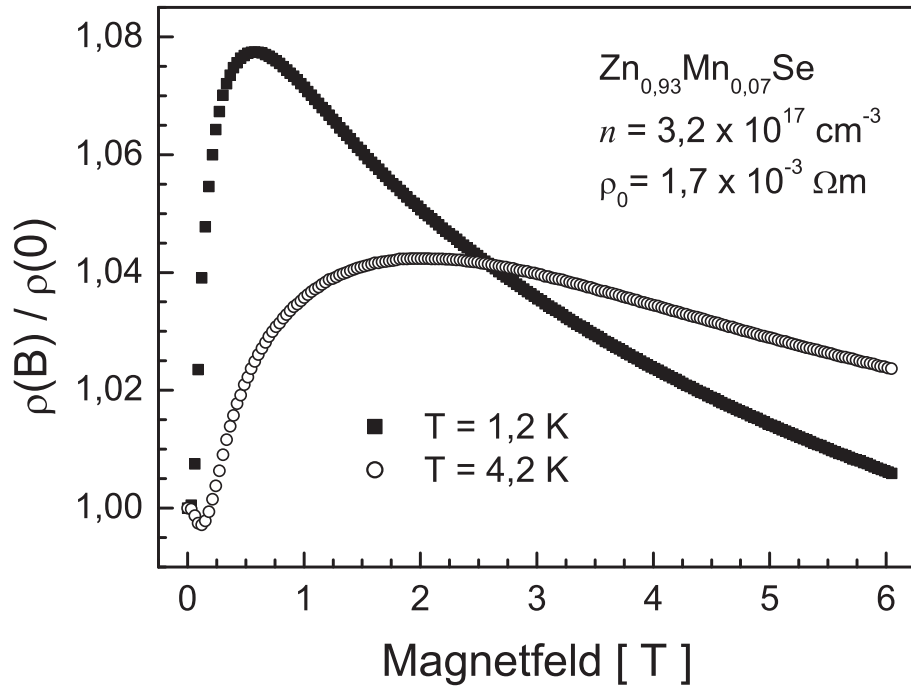


Abbildung 7.20. Magnetowiderstand einer 400 nm dicken $\text{Zn}_{0,93}\text{Mn}_{0,07}\text{Se:Cl}$ -Schicht bei Temperaturen von $T = 1,2\text{ K}$ (■) und $T = 4,2\text{ K}$ (○). Die Messpunkte wurden in van der Pauw-Geometrie ermittelt und für die Auftragung normiert. Die Volumenladungsträgerdichte der Probe beträgt $n = 3,2 \cdot 10^{17}\text{ cm}^{-3}$, der spezifische Widerstand ist $\rho_0 = 1,7 \cdot 10^{-3}\text{ }\Omega\text{m}$.

alsonden von $1,2\text{ }\mu\text{m}$ erklärt werden. Dies entspricht in etwa der erreichten Genauigkeit der optischen Lithographie.

Die Abhängigkeit des Längswiderstands vom Magnetfeld wird in Abbildung 7.19(a) veranschaulicht. Um die prozentuale Änderung des Magnetowiderstands hervorzuheben, ist als Ordinate der gegen den spezifischen Nullfeldwiderstand ρ_0 normierte Verlauf von $\rho(B)$ aufgetragen. Ein ausgeprägter, positiver Magnetowiderstand erhöht den Ausgangswert bei $B = 0\text{ T}$ bis zu einem Maximum bei $B = \pm 1,8\text{ T}$ um 4 %. Bei höheren Magnetfeldbeträgen dominiert auch hier ein negativer Magnetowiderstand. In den Ergebnissen der beiden hier betrachteten $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se:Cl}$ -Schichten fällt auf, dass der prozentuale Anstieg des Magnetowiderstands bei einem Mn-Gehalt von $x = 0,05$ und einer Probentemperatur von $T = 4,2\text{ K}$ mit 4 % nur halb so groß ist wie der Vergleichswert von 8 % bei einem Mn-Gehalt von $x = 0,07$ und einer Probentemperatur von $T = 1,2\text{ K}$. Beide Proben unterscheiden sich dabei kaum in ihrem spezifischen Widerstand ρ_0 .

Im Folgenden soll das Verhalten des Magnetowiderstands anhand von zwei ausgewählten DMS-Schichten abhängig von den Probeneigenschaften Mangankonzentration x , Ladungsträgerdichte n , spezifischer Widerstand ρ_0 und der Temperatur T näher

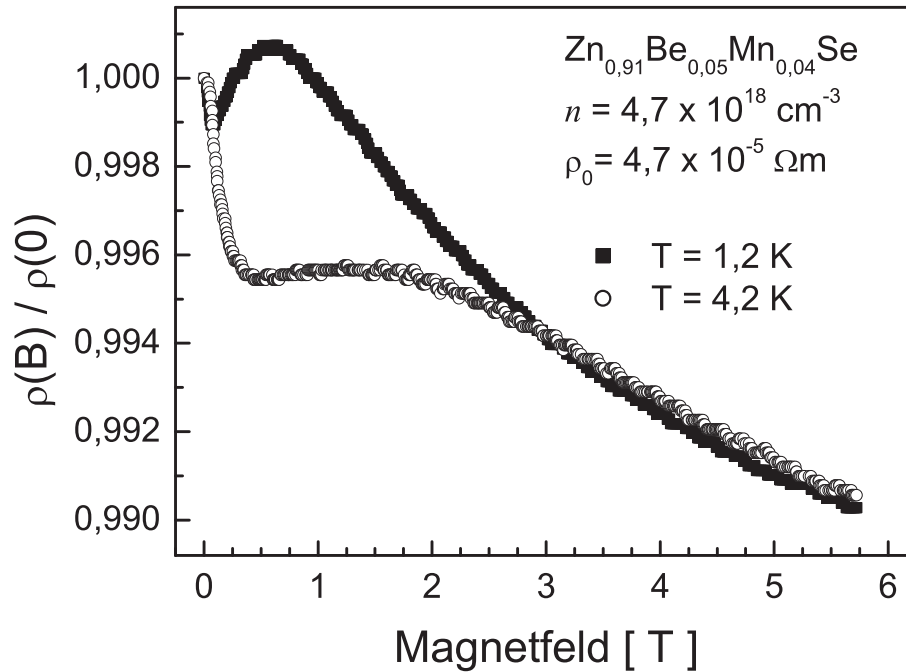


Abbildung 7.21. Magnetowiderstand einer 250 nm dicken $\text{Zn}_{0,91}\text{Be}_{0,05}\text{Mn}_{0,04}\text{Se:I}$ -Schicht mit einer Volumenladungsträgerdichte $n = 4,7 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ und einem spezifischen Widerstand $\rho_0 = 4,7 \cdot 10^{-5} \Omega\text{m}$. Die Messpunkte wurden an einer Hallbar-Struktur bei Temperaturen von $T = 1,2 \text{ K}$ (■) und $T = 4,2 \text{ K}$ (○) ermittelt und für die Auftragung normiert.

betrachtet werden. Abbildung 7.20 stellt den Verlauf des normierten Magnetowiderstands $\rho(B)/\rho_0$ der bereits oben angesprochenen $\text{Zn}_{0,93}\text{Mn}_{0,07}\text{Se:Cl}$ -Schicht mit einer Volumenladungsträgerdichte $n = 3,2 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ und einem spezifischen Widerstand $\rho_0 = 1,7 \cdot 10^{-3} \Omega\text{m}$ bei Temperaturen von $T = 1,2 \text{ K}$ und $T = 4,2 \text{ K}$ vor. Der Magnetowiderstand steigt zunächst an und durchläuft ein Maximum, um sich anschließend wieder zu verringern. Die Steilheit und die Amplitude des Anstiegs sowie der Magnetfeldwert B_{max} , an dem $\rho(B)$ maximal wird, hängen von der Proben temperatur ab. Findet die Messung bei $T = 1,2 \text{ K}$ statt, sind sowohl Anstieg als auch Abnahme von $\rho(B)$ steiler, die Amplitude ist mit 8 % annähernd doppelt so groß wie bei $T = 4,2 \text{ K}$. Die Position des Maximums B_{max} wandert bei ansteigender Temperatur von $B = 0,6 \text{ T}$ bei $1,2 \text{ K}$ zu einem höheren Magnetfeldwert von $B = 2 \text{ T}$ bei $4,2 \text{ K}$, wobei es sich sichtbar verbreitert. Bei $T = 4,2 \text{ K}$ ist im sehr kleinen Magnetfeld zusätzlich ein negativer Magnetowiderstand zu erkennen, der bei ansteigendem Magnetfeld gegen den positiven Magnetowiderstand in den Hintergrund tritt.

Dem gegenüber zeigen Proben mit höherer Ladungsträgerdichte und geringerem spezifischen Widerstand nur eine geringe Magnetfeldabhängigkeit der elektrischen Leitung. Zum Vergleich ist in Graph 7.21 der bei verschiedenen Temperaturen ermit-

telte normierte Magnetowiderstand einer 250 nm dicken $\text{Zn}_{0,91}\text{Be}_{0,05}\text{Mn}_{0,04}\text{Se}$ -Schicht mit einer Ladungsträgerdichte $n = 4,7 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ und einem spezifischen Widerstand $\rho_0 = 4,7 \cdot 10^{-5} \Omega\text{m}$ aufgetragen. Man beachte dabei die Skalierung der Ordinate. Obwohl der Magnetowiderstand ein qualitativ ähnliches Verhalten zeigt, ist die Amplitude mit einem maximalen Anstieg von nur 0,2 % bei $T = 1,2 \text{ K}$ sehr gering. Die gesamte Änderung in $\rho(B)/\rho_0$ beträgt über den betrachteten Magnetfeldbereich 1 % und resultiert hauptsächlich aus dem negativen Magnetowiderstand, der bei beiden Temperaturen stärker gegenüber dem positiven Magnetowiderstand ausgeprägt ist. Bei $T = 4,2 \text{ K}$ ist der positive Beitrag zu $\rho(B)$ nur als schwache Schulter erkennbar.

Bei allen untersuchten Proben lässt sich das Verhalten des Magnetowiderstands bei tiefen Temperaturen folgendermaßen charakterisieren:

- Im niedrigen Magnetfeld enthält der Magnetowiderstand einen deutlich sichtbaren positiven Anteil, der den um $B = 0$ auftretenden, negativen Anteil überlagert. Dieses Verhalten ist bei geringerer Temperatur stärker ausgeprägt.
- $\rho(B)/\rho_0$ durchläuft ein Maximum und nimmt im weiter ansteigenden Magnetfeld ab.
- Der Wert des Magnetfelds B_{max} verringert sich mit abnehmender Temperatur.
- Eine Reduktion der Proben temperatur führt zu einem steileren Anstieg in $\rho(B)/\rho_0$ im niedrigen Magnetfeld und zu einer höheren Amplitude des Magnetowiderstands.
- Proben mit höherer Mangankonzentration x zeigen einen etwas stärker ausgeprägten Einfluss des Magnetfelds auf den spezifischen Widerstand.
- Mit anwachsender Ladungsträgerdichte n und spezifischer Leitfähigkeit $1/\rho_0$ der Proben wird die Amplitude in $\rho(B)/\rho_0$ stark unterdrückt.

Der Verlauf des Magnetowiderstands der untersuchten $\text{Zn}_{1-y-x}\text{Be}_y\text{Mn}_x\text{Se}$ -Schichten in Abhängigkeit von den jeweiligen Probenparametern und der Temperatur entspricht weitgehend dem in der Literatur beschriebenen Ergebnissen für n-leitendes $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$, $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ und $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{O}$ ([Saw86], [Sha86], [Sha90], [And05]). Zum gegenwärtigen Zeitpunkt können die experimentellen Daten noch nicht vollständig durch ein quantitatives Modell beschrieben werden. Eine qualitative Erklärung des Verlaufs von $\rho(B)$ lässt sich jedoch anhand der in Kapitel 4.6 vorgestellten Zusammenhänge geben.

Die Abhängigkeit des Magnetowiderstands von Temperatur und Mangankonzentration korreliert stark mit dem Verhalten der Magnetisierung und folglich der Zeeman-Aufspaltung des Leitungsbands ΔE_C der DMS-Proben. Auch hier kann bei tieferen Temperaturen und höherem Mangangehalt ein größerer Effekt beobachtet werden. Bei der Erklärung des Magnetowiderstands kommt deshalb der energetischen Verschiebung der Spinsubbänder eine besondere Bedeutung zu. Im Nullfeld und bei kleinem Magnetfeld findet der Transport aufgrund der hohen Unordnung im Probenmaterial im Regime der schwachen Lokalisierung statt. Durch konstruktive Quanteninterferenz von gegen Zeitumkehr invarianten Elektronentrajektorien ist der Widerstand im Nullfeld erhöht. Die gleichzeitig herrschende Elektron-Elektron-Wechselwirkung führt zu einer Phasenverschiebung in der Wellenfunktion der Elektronen, zerstört auf diese Weise die konstruktive Interferenz und wirkt der schwachen Lokalisierung entgegen [Fab07]. Die symmetrie- und phasenbrechende Eigenschaft kleinster äußerer Magnetfelder reduziert ebenfalls die Quanteninterferenz und bricht die schwache Lokalisierung der Elektronen auf. Die bei $T = 4,2$ K gemessenen Kurven der Graphen 7.20 und 7.21 zeigen um $B = 0$ einen negativen Magnetowiderstand.

Dem gegenüber reduziert die Spinaufspaltung des Leitungsbands und die damit verbundene Umverteilung der Elektronen vom Minoritätsspinsubband in das Majoritätsspinsubband den Einfluss der Elektron-Elektron-Wechselwirkung. Sie tritt damit in Konkurrenz zur Aufhebung der schwachen Lokalisierung. Im niedrigen Magnetfeld, in dem die Änderung in ΔE_C am stärksten ist, dominiert dieser Effekt den negativen Magnetowiderstand und es resultiert für $B < B_{max}$ ein ausgeprägter positiver Magnetowiderstand. Eine Verringerung der Temperatur führt zu einem noch schnelleren Anstieg der Leitungsbandaufspaltung im Magnetfeld. Wie in den bei $T = 1,2$ K gemessenen Kurven der Graphen 7.20 und 7.21 zu sehen ist, dominiert der positive Magnetowiderstand bereits bei kleineren Magnetfeldern und kann den negativen Magnetowiderstand um $B = 0$ unterdrücken. Darüber hinaus führt die Umverteilung der Elektronen zwischen den Spinsubbändern zu einem Anstieg der Thomas-Fermi-Abschirmlänge. Dies hat eine geringere Abschirmung geladener Störstellen zur Folge und liefert durch den Anstieg der Coulomb-Streuung einen weiteren, wenn auch kleineren Beitrag zum positiven Magnetowiderstand [Sha86].

Bei höheren Magnetfeldern ($B > B_{max}$) steigt ΔE_C nur noch leicht an. Der Einfluss der Spinaufspaltung auf die durch die Elektron-Elektron-Wechselwirkung modifizierten Quantenkorrekturen zur Leitfähigkeit verliert an Dominanz. Erreicht die Höhe der Zeeman-Aufspaltung des Leitungsbands schließlich einen beträchtlichen Anteil der Fermienergie E_F , hat bereits eine substantielle Umverteilung von Elektronen aus dem Minoritätsspinsubband in das Majoritätsspinsubband stattgefunden. Wie bereits in Abbil-

dung 4.4 dargelegt, bedeutet dies eine Abnahme der Fermienergie E_F^- der Minoritätsspinelektronen und einen Anstieg der Fermienergie E_F^+ der Majoritätsspinelektronen. Der Rückgang in E_F^- vermindert die Elektronenbeweglichkeit im Minoritätsspinsubband. Ein weiterer Anstieg des Magnetfelds führt darüber hinaus zu einer ausschließlichen Besetzung stärker lokalisierter Zustände im Verunreinigungsband. Dem gegenüber bewirkt der Anstieg von E_F^+ eine gesteigerte Mobilität der Majoritätsspinelektronen. Aus der Gesamtbetrachtung der Änderungen in E_F^\pm erschließt sich ein negativer Magnetowiderstand ([Sha90], [Fuk79]).

Eine Beeinflussung der Lokalisierung der Leitungselektronen kann besonders in Proben mit Ladungsträgerdichten in der Nähe der kritischen Dichte des Mott-Übergangs die Leitfähigkeit stark modifizieren. In diesem Regime entspricht der Sättigungswert für ΔE_C in etwa der Höhe von E_F . So lässt sich sowohl der steile Anstieg und die hohe Amplitude des positiven Magnetowiderstands als auch der starke negative Magnetowiderstand der in Graph 7.20 gezeigten Probe mit $n = 3,2 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ erklären. In hochdotierten Proben erreicht die Spinaufspaltung nur einen kleinen Teil der Fermienergie. Die Änderung des spezifischen Widerstands ist daher im äußeren Magnetfeld wesentlich geringer, was die in Abbildung 7.21 gezeigten Messungen an einer Probe der Ladungsträgerdichte $n = 4,7 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ bestätigen.

Kapitel 8

$\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Kontakte auf 2DEG-Heterostrukturen

Im vorangegangenen Kapitel wurde über die Herstellung und die Prozessierung von $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Schichten sowie von ihrer strukturellen, magnetooptischen und elektrischen Charakterisierung berichtet. Dieser Abschnitt stellt Experimente vor, in denen sie in ihrer Eigenschaft als Spinausrichter als Kontaktmaterial für zweidimensionale Elektronengase in $\text{GaAs}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Heterostrukturen wirken. Ziel dieser Experimente ist der rein elektrische Nachweis der Injektion der spinpolarisierten Elektronen in das 2DEG.

8.1 DMS-Kontakte auf oberflächennahen invertierten 2DEG

Vorbereitende Untersuchungen konzentrierten sich weniger auf die lithographische Prozessierung der Proben als auf die Herstellung der Heterostrukturen aus $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Spinausrichter und GaAs -basiertem 2DEG. Zur Definition der DMS-Kontakte in van der Pauw-Geometrie erfolgte daher das MBE-Wachstum des $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ auf den 2DEG-Substraten durch eine Schattenmaske. In ersten Versuchen fanden MDSI-Strukturen mit einem oberflächennahen leitenden Kanal als Substrat Verwendung. Die an den so angefertigten Proben gemessenen Strom-Spannungs-Kennlinien zeigten allerdings in keinem Fall ohmsches Verhalten. Die Diodenkennlinie hat ihre Ursache in der zu überwindenden AlGaAs -Barriere zwischen DMS-Kontakt und zweidimensionalem Kanal.

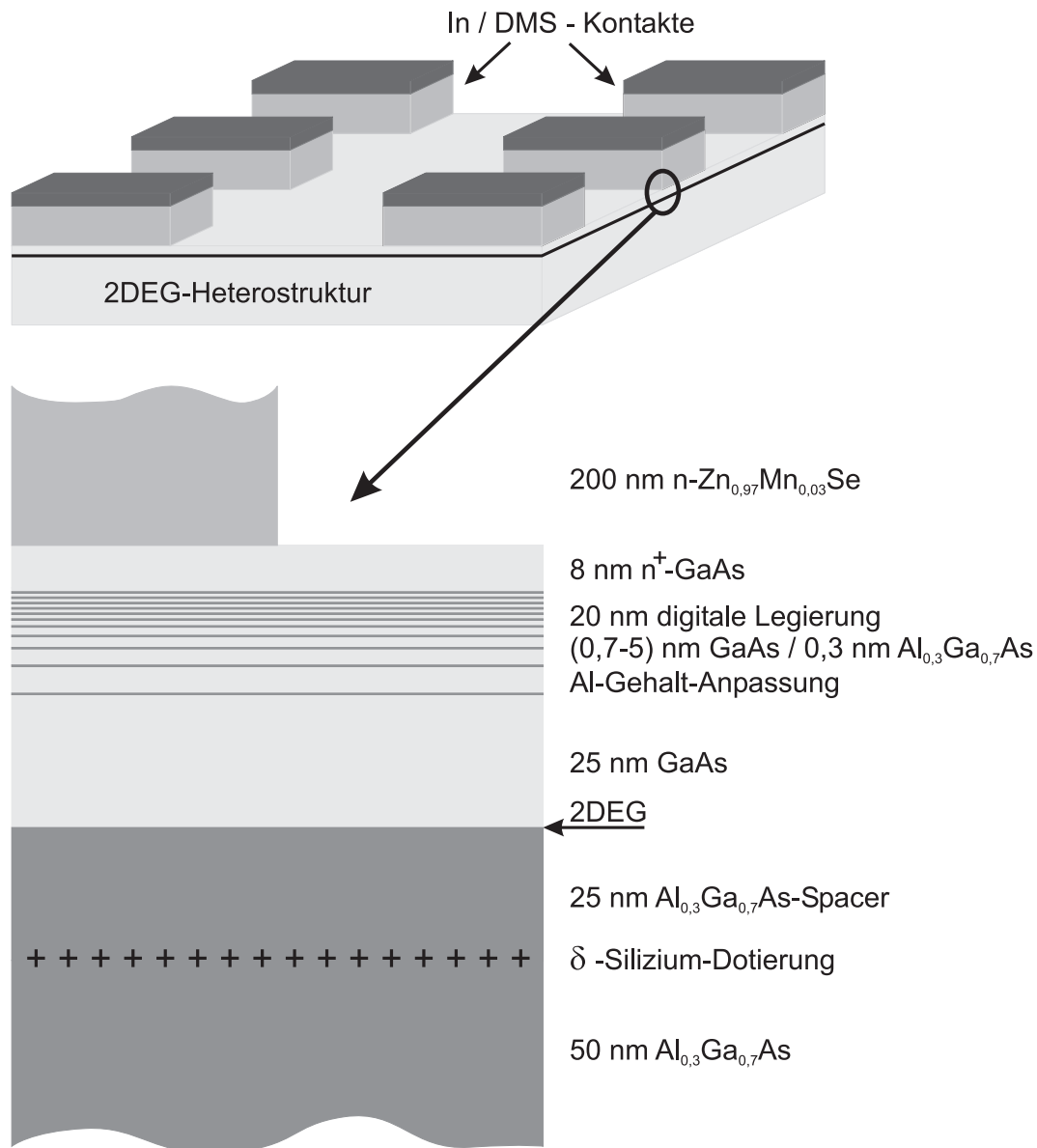


Abbildung 8.1. Schematische Darstellung einer Probe zum Nachweis der Spininjektion. Eine 2DEG-Heterostruktur auf GaAs-Basis wird mittels Schattenmaskentechnik mit DMS-Kontaktsäulen in van der Pauw-Geometrie versehen. Die Vergrößerung zeigt die Schichtstruktur in der relevanten Probenregion.

Dieser Einschränkung des Ladungstransports wurde durch die Entwicklung des invertierten 2DEG, wie es in Abschnitt 5.4 beschrieben ist, begegnet. Unter Beibehaltung des Prinzips eines oberflächennahen zweidimensionalen Leitungskanals erfolgte am Walter-Schottky-Institut der Technischen Universität München die Herstellung der $\text{GaAs}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Heterostrukturen. Ein semiisolierender $\text{GaAs}(001)$ -Wafer wurde auf eine Temperatur von 620°C gebracht und in Rotation versetzt. Auf einen epitaktisch gewachsenen $\text{GaAs}(001)$ -Untergrund, bestehend aus einer $1\text{ }\mu\text{m}$ dicken GaAs-

Pufferschicht und einem ebenso dicken GaAs/Al_{0,3}Ga_{0,7}As-Übergitter, wurden 50 nm Al_{0,3}Ga_{0,7}As-Barrierenmaterial aufgewachsen. Nach einer Wachstumsunterbrechung, in der die Oberfläche einem Siliziumfluss zur δ -Dotierung ausgesetzt wurde, erfolgte das Wachstum einer 25 nm dicken Spacer-Schicht mit gleichem Aluminiumgehalt. An der Grenzfläche zur darauf folgenden, 25 nm dicken GaAs-Schicht bildet sich der dreieckige Quantentrog aus. Innerhalb der nächsten 20 nm wurde die Al-Konzentration nach dem Prinzip der digitalen Legierung von Null auf 10 % erhöht. Abwechselnd wurden dazu mehrere GaAs-Schichten, deren Dicke sich von 5 nm auf 0,7 nm reduzierte, und eine Atomlage Al_{0,3}Ga_{0,7}As aufgebracht. Den Abschluss bildeten 8 nm hochdotiertes GaAs, das bei einer geringeren Substrattemperatur von 490 °C abgeschieden wurde. Um die Obergrenze für die Volumendotierung von GaAs bei etwa $n = 8 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ zu übertreffen, unterbrach man das Wachstum der n⁺-GaAs-Schicht im Abstand von 1 nm und setzte die Probe einem maximalen Siliziumfluss aus. Zum Schutz vor einer Oxidation der Oberfläche brachte man anschließend eine Arsenabdeckschicht auf. Bei einer Substrattemperatur von 32 °C wurde die fertige Heterostruktur für 45 Minuten einem Fluss von As₄-Molekülen ausgesetzt. Bis Prozessende kühlte die Probe auf 19 °C ab.

Die Weiterverarbeitung des Wafer mit der III-V-Heterostruktur in der II-VI-Epitaxiekammer kann konstruktionsbedingt nicht als Ganzes erfolgen. Zur Herstellung der Spininjektionsstrukturen wurden etwa 4 × 4 mm große Stücke abgespalten und unter einer Schattenmaske aus Tantalblech auf dem Probenhalter befestigt. Die Maske wies rechteckige Löcher von 1,5 mm Länge und 0,7 mm Breite auf. Der Abstand betrug in Längsrichtung 1,2 mm und senkrecht dazu 0,7 mm. Die RHEED-Kontrolle des Wachstums fand an einem nebenan montierten, nicht verdecktem Probenstück statt. In der Prozesskammer wurde die As-Abdeckschicht bei einer Temperatur von 380 °C desorbiert. Das RHEED-Beugungsbild zeigte die für eine arsenreiche GaAs-Oberfläche charakteristische (2 × 4)-Rekonstruktion. Das Abkühlen der Probe auf Wachstumstemperatur erfolgte unter Zn-Fluss. Der anschließende Anwachsprozess des n-leitenden ZnMnSe fand bei abgesenkter Temperatur der Se-Zelle und somit bei einem zinkreichen Teilchenflussverhältnis statt. Die restliche DMS-Schicht wurde bei einem stöchiometrischem Verhältnis der Zn- und Se-Flüsse gewachsen. Der Spinaligner-Kontakt bestand insgesamt aus 200 nm Zn_{0,97}Mn_{0,03}Se der Dotierung $n = 6 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ und einer hochdotierten Abdeckschicht ($n = 4 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$) von 55 nm Dicke und gleichem Mn-Anteil. Die Kontaktierung der Probe erfolgte in der In-Aufdampfanlage gemäß Abschnitt 7.3.2 durch dieselbe Schattenmaske, die auch während der ZnMnSe-Epitaxie Verwendung fand. Abbildung 8.1 zeigt einen maßstabsgetreuen Ausschnitt der eben beschriebenen Schichtfolge und eine schematische Darstellung der fertigen Probe zur Veranschaulichung der Kontaktgeometrie.

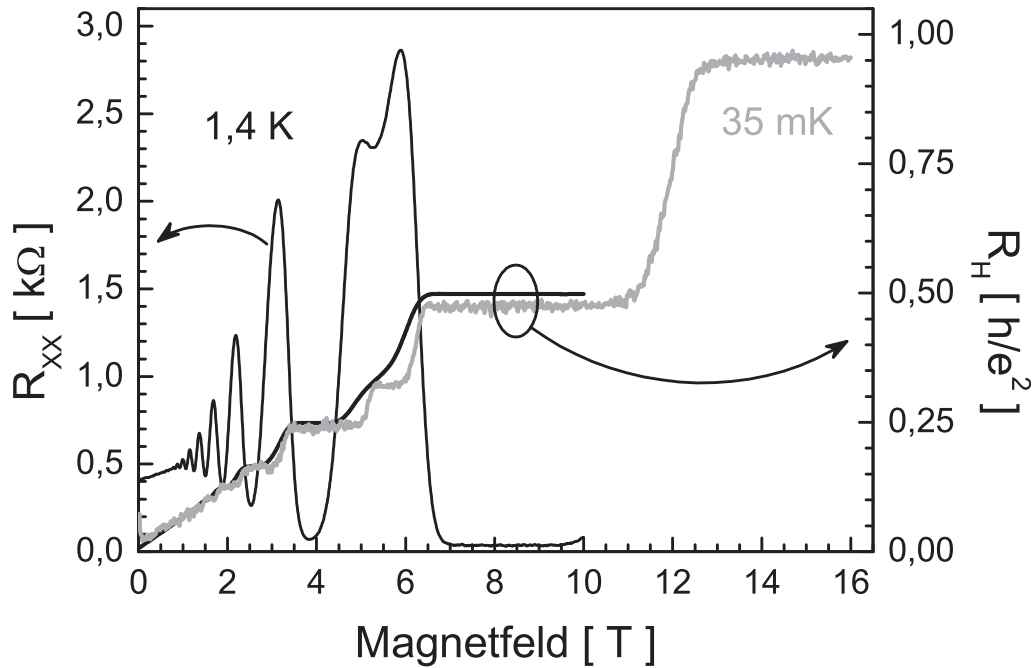


Abbildung 8.2. Magnetfeldabhängige Transportmessungen an einem oberflächennahen invertierten 2DEG mit $\text{In}/\text{Zn}_{0,97}\text{Mn}_{0,03}\text{Se}$ -Kontaktsäulen zum Nachweis der Spininjektion. Die schwarzen Kurven zeigen Längs- und Hallwiderstand bei $T = 1,4\text{ K}$, gemessen mit $I = 100\text{ nA}$. Zum Vergleich ist die Messung des Hallwiderstands bei $T = 35\text{ mK}$ und $I = 5\text{ nA}$ aufgetragen (grau).

Fünf der sechs Kontakte zeigten auch bei tiefen Temperaturen ohmsches Verhalten. Der Zweipunktwiderstand entlang einer Messstrecke DMS-2DEG-DMS betrug $58\text{ k}\Omega$ bei $T = 4,2\text{ K}$. Graph 8.2 zeigt die Ergebnisse von magnetfeldabhängigen Transportmessungen an der Spininjektionsstruktur bei verschiedenen Temperaturen und Messströmen. Die linke Ordinate skaliert den Längswiderstand in $\text{k}\Omega$, die rechte den Hallwiderstand in Einheiten von h/e^2 . Schwarze Kurven stellen die bei $T = 1,4\text{ K}$ und $I = 100\text{ nA}$ ermittelten Messwerte dar. Aus den deutlich sichtbaren SdH-Oszillationen errechnet sich eine Ladungsträgerdichte von $n_s = 3,7 \cdot 10^{11}\text{ cm}^{-2}$. Einen vergleichbaren Wert von $n_s = 4,1 \cdot 10^{11}\text{ cm}^{-2}$ findet man bei der Auswertung der Steigung des Hallwiderstands im Nulldurchgang des Magnetfelds. Die beiden SdH-Maxima im Magnetfeld oberhalb von 4 T sind der Spinaufspaltung des zweiten Landauniveaus zuzuordnen. Die Minima im Längswiderstand korrelieren mit den konstanten Bereichen in der Hallkurve. Die Plateaus bei den Füllfaktoren $\nu = 2, 4, 6$ und 8 treten markant hervor und haben exakt den Wert $\frac{h}{\nu e^2}$. Bei $B = 5,3\text{ T}$ kann eine weitere Stufe für Füllfaktor $\nu = 3$ vermutet werden. Dies deutet darauf hin, dass in der vorliegenden Messung der in Kapitel 5.3 beschriebene Nachweis der Spininjektion nicht erbracht werden konnte. Eine mögliche Ursache liegt in der bei einer Temperatur im einstelligen Kelvinbereich zu geringen Equilibrierlänge l_{eq} der Elektronen. Der Wert dieses Parameters ist bei

Temperaturen unterhalb von 100 mK deutlich größer. Die graue Kurve in Graph 8.2 zeigt eine bei $T = 35$ mK und mit einem Strom von 5 nA aufgenommene Messung des Hallwiderstands. Die Quanten-Hall-Plateaus sind klar ausgeprägt, insbesondere ist die dem Füllfaktor $\nu = 3$ zugehörige Stufe unverkennbar. Zusätzlich kann durch das hohe verfügbare Magnetfeld der Zustand $\nu = 1$ in der Probe erreicht werden.

Die Ergebnisse dieses Experiments bezeugen erstmals den erfolgreichen Gebrauch von $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Spinausrichtern als Kontakt zu einem zweidimensionalen Elektronengas. Somit ist auch bei einem Stromfluss über eine intakte Halbleitergrenzfläche, die nicht infolge eines Legierprozesses gestört ist, quantisierter Transport im 2DEG messbar. Neben den Shubnikov-de Haas-Oszillationen zur Bestimmung der Kenngrößen der zweidimensionalen Ladungsträgerschicht lassen sich insbesondere die Plateaus des Quanten-Hall-Effekts zum Nachweis der Injektion spinpolarisierter Elektronen aus den Spinausrichtern heranziehen. Allerdings konnte dieser Erfolg mit weiteren, nominell identisch angefertigten Strukturen nicht reproduziert werden. Nur in einem Fall gelang es, während der Desorption der As-Abdeckschicht die (2×4) -Rekonstruktion im RHEED-Beugungsbild als Kennzeichen der As-reichen GaAs-Oberfläche zu beobachten. Nur in diesem einen Fall zeigten die Strom-Spannungs-Kennlinien auch bei tiefen Temperaturen ohmsches Verhalten.

Die präsentierten Daten der magnetfeldabhängigen Transportmessungen weisen keine Anzeichen eines spinpolarisierten Transports auf. Die Übereinstimmung der unabhängig voneinander aus Längs- und Hallwiderstand ermittelten Ladungsträgerdichten lässt zusammen mit Gleichung 3.28 eine eindeutige Indizierung der Hallplateaus durch die Füllfaktoren zu. So ist die Stufe bei $B = 4$ T mit dem Wert $0,25 R_K$ dem Füllfaktor $\nu = 4$ zuzuordnen. Gerade dies wird für den unpolarisierten Ladungstransport erwartet. Eine Zuweisung des Füllfaktors $\nu = 8$ an gleicher Stelle, die einer vollständigen Spininjektion entsprechen würde, gelingt nicht. Das Elektronengas müsste in diesem Fall über die doppelte Ladungsträgerdichte verfügen.

Darüber hinaus weisen in der bei $T = 35$ mK gemessenen Kurve des quantisierten Hallwiderstands die deutlich ausgeprägten Plateaus bei $1/3 R_K$ und R_K , entsprechend den Füllfaktoren $\nu = 3$ und $\nu = 1$, auf eine Beteiligung der Randkanäle beider Spinsorten am Ladungstransport hin. Man muss somit davon ausgehen, dass entweder keine Spininjektion oder aber eine vollständige Equilibrierung der unterschiedlichen Spinströme stattgefunden hat. Im gegenteiligen Fall dürften gemäß Kapitel 5.3 keine Plateaus mit ungeraden Füllfaktoren auftreten. Ein Widerstandswert von $1/3 R_K$ entspräche einem Füllfaktor von $\nu = 6$. Der Widerstand müsste dann über einen größeren Magnetfeldbereich konstant bleiben als bei dem Plateau mit dem nächst geringeren Wert von $1/4 R_K$. Dies trifft allerdings nicht zu. Vielmehr kann die zu geringe Breite des Plateaus dar-

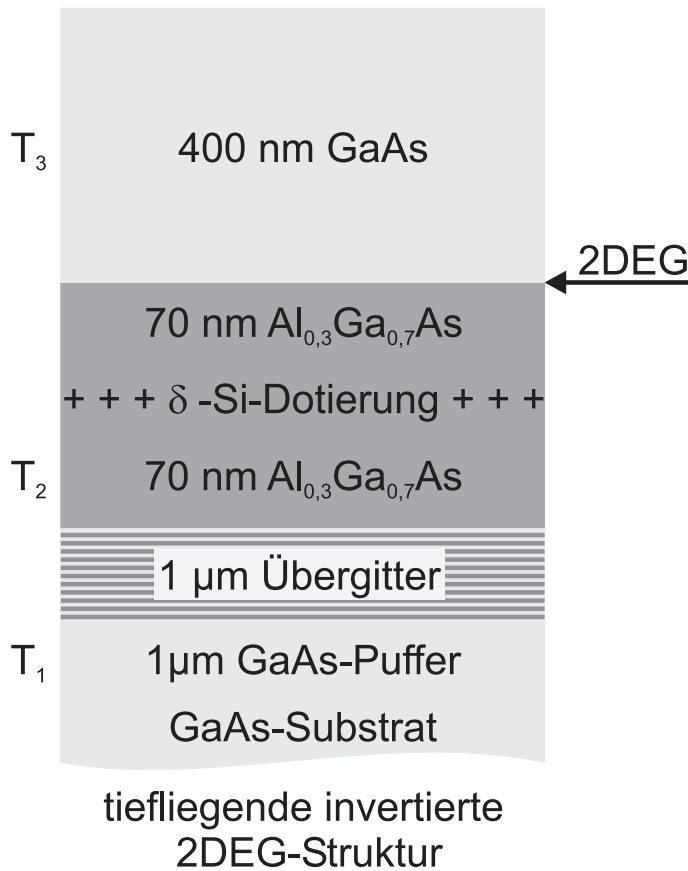
auf zurückgeführt werden, dass sich das System an der Grenze der Auflösbarkeit der Zeeman-Aufspaltung der Landauniveaus befindet. Erneut liefert die Messung hier den Beweis der Beteiligung beider Spinsorten am Ladungstransport.

Der Nachweis einer erfolgreichen Spininjektion scheiterte in diesem Experiment vor allem aus folgenden Gründen: Zum einen führte die gewählte Probenprozessierung mittels Schattenmaske zu Kontaktabständen im Millimeterbereich. Bei der Spin-Flip-Streuung zwischen Randkanälen eines Zeeman-aufgespaltenen Landauniveaus erreicht die charakteristische Equilibrierungslänge l_{eq} Werte zwischen $100\ \mu\text{m}$ und $1\ \text{mm}$ [Mül92]. Die Entfernung zwischen den $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Spinausrichtern liegt somit an der oberen Grenze von l_{eq} . Zum anderen war die Elektronenbeweglichkeit der verwendeten $\text{GaAs}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Heterostruktur mit $\mu = 3,5 \cdot 10^4\ \text{cm}^2/\text{Vs}$ um mehr als eine Größenordnung geringer als bei den untersuchten Proben der oben genannten Veröffentlichung. Betrachtet man die Spin-Bahn-Wechselwirkung als vorherrschenden Mechanismus der Spinequilibrierung im Quanten-Hall-System [Kha92], ist die Wahrscheinlichkeit eines Spin-Flip im niederbeweglichen Elektronensystem erhöht. Eine weitere Quelle effizienter Spinstreuung stellt die sehr hohe Dotierung der GaAs -Abdeckschicht dar [Kik99]. Letztendlich können auch spindephasierende Streuprozesse an strukturellen Defekten der $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}/\text{GaAs}$ -Grenzfläche nicht ausgeschlossen werden [Str02].

Um diesen Herausforderungen zu begegnen und den Weg zu einem funktionierenden Spininjektionsexperiment weiter zu ebnen, wurden mehrere Ansätze parallel verfolgt. Die Probenprozessierung erfuhr eine Abkehr von der Schattenmaskentechnik. Stattdessen wurden mehrere Hallbar-Geometrien mit 6 DMS-Kontakten im gleichen Abstand von jeweils $30, 50, 100, 150, 200$ und $300\ \mu\text{m}$ für die optischen Lithographie entworfen. Bei einer erfolgreichen Spininjektion liefert der Vergleich der Ergebnisse für unterschiedliche Kontaktabstände eine Abschätzung der Spinequilibrierungslänge. Die bereits vorhandenen nasschemischen Prozesstechniken wurden durch selektive Ätzverfahren für $\text{Zn}(\text{BeMn})\text{Se}/\text{Ga}(\text{Al})\text{As}$ auf Basis von Chrom-Schwefelsäure ergänzt (vgl. Abschnitt 7.3.2).

8.2 Optimierung der $\text{GaAs}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Heterostruktur

Die Verbesserung der $\text{GaAs}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Heterostruktur hinsichtlich ihrer charakteristischen Transportparameter und der Verlässlichkeit in der Herstellung genoss höchste Priorität. Es stellte sich bald heraus, dass mit dem Konzept des oberflächennahen invertierten 2DEG Elektronenbeweglichkeiten im Bereich von $\mu \approx 1 \cdot 10^6\ \text{cm}^2/\text{Vs}$ nicht

**Abbildung 8.3.**

Schematische Darstellung der Schichtfolge einer Heterostruktur mit tiefliegender invertierter 2DEG. Neben der Dicke der einzelnen Schichten ist auch die Substrattemperatur T_i ($T_1, T_3 = 640^\circ\text{C}$, $T_2 = 544^\circ\text{C}$) angegeben, die während des Wachstums der nebenstehenden Schicht pyrometrisch gemessen wurde.

realisierbar waren. Darüber hinaus führten nur leichte Abweichungen in den Wachstumbedingungen der invertierten Grenzfläche und der abschließenden, hochdotierten GaAs-Schicht zu starken Schwankungen in Ladungsträgerdichte und -beweglichkeit im zweidimensionalen Leitungs kanal. In der weiteren Entwicklung wurde die oberflächen-nahe Struktur verworfen und alle Anstrengungen auf das tiefliegende invertierte 2DEG konzentriert. Ohne die hochdotierte GaAs-Abdeckschicht und die digital legierte Übergangszone zur Anpassung des Aluminiumgehalts bot die in Abbildung 8.3 skizzierte Struktur die Gelegenheit, das MBE-Wachstum im Bereich der invertierten Grenzfläche und der Silizium- δ -Dotierung zu optimieren.

Der 400 nm große Abstand des GaAs/Al_xGa_{1-x}As-Übergangs von der Oberfläche erlaubt die Entstehung einer zweidimensionalen Ladungsträgerschicht bei kleineren elektrischen Feldstärken. Die Dicke der Spacer-Schicht wurde deshalb auf nominell 70 nm angehoben und die Höhe der δ -Dotierung verringert. Wie die Standardcharakterisierung mehrerer Proben bei $T = 1,2\text{ K}$ unter Ausnutzung der persistenten Photoleitfähigkeit zeigte, gelang auf diese Weise die reproduzierbare Präparation zweidimensionaler Elektronengase mit hoher Beweglichkeit von $\mu > 2 \cdot 10^6\text{ cm}^2/\text{Vs}$ bei einer Ladungsträgerdichte von $n_s \approx 2 \cdot 10^{11}\text{ cm}^{-2}$. Die Mobilität wird vor allem durch die Streuung der Leitungselektronen an geladenen Störstellen limitiert.

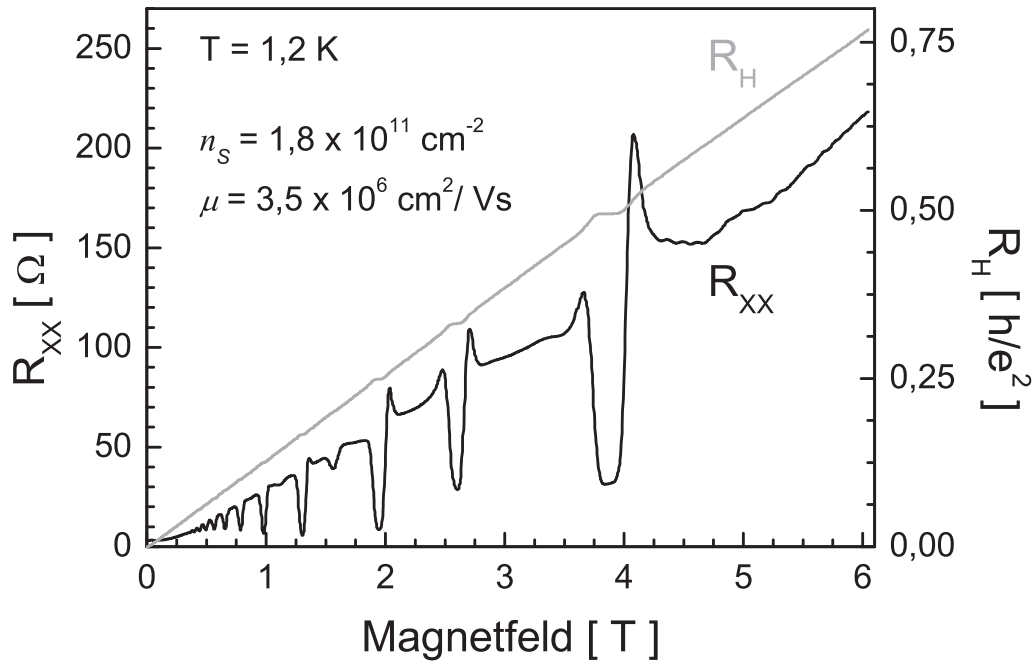


Abbildung 8.4. Magnetfeldabhängige Transportmessungen an einem tiefliegenden invertierten 2DEG mit In-Kontakten in van der Pauw-Geometrie. Aus den farblich gekennzeichneten Kurven für Längs- und Hallwiderstand (grau) lassen sich Ladungsträgerdichte und Beweglichkeit bestimmen. Die Probentemperatur betrug $T = 1,2 \text{ K}$, der Messstrom $I = 1 \mu\text{A}$.

In invertierten Strukturen diffundieren die Siliziumatome der δ -Dotierung in Wachstumsrichtung in die Spacer-Schicht zur Quantenregion hin und erhöhen so die Anzahl der Streuzentren. Zur weiteren Steigerung von μ wurde darum eine Einschränkung der Volumendiffusion der Siliziumatome in der $\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ -Schicht angestrebt. Dies gelang durch eine Reduktion der Substrattemperatur während der betreffenden Wachstumschritte. Abbildung 8.3 ordnet einzelnen Schichten der Heterostruktur verschiedene pyrometrisch gemessene Temperaturen T_i zu. Die GaAs-Pufferschicht und ein Großteil des angrenzenden Übergitters wurden bei einer Temperatur $T_1 = 640^\circ\text{C}$ aufgebracht. Noch während des Wachstums des Übergitters wurde die Heizleistung am Manipulator reduziert, so dass die Substrattemperatur kurz vor Beginn der δ -Dotierung den Wert $T_2 = 544^\circ\text{C}$ annahm. Nach dem Schließen des Shutters der Si-Quelle erfolgte das anfängliche Wachstum der Spacer-Schicht bei abgesenkter Temperatur. Das restliche $\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ -Material wurde bei gesteigerter Leistung der Probenheizung aufgebracht. Das Wachstum der oberen GaAs-Schicht fand schließlich bei einer Temperatur von abermals $T_3 = 640^\circ\text{C}$ statt.

Die Variation der Substrattemperatur während des MBE-Prozesses führte zu einer weiteren Verbesserung der relevanten Eigenschaften der 2DEG-Strukturen. Die Auswer-

tung magnetfeldabhängiger Transportmessungen bei $T = 1,2\text{ K}$ (vgl. Abbildung 8.4) lieferte im Regime der persistenten Photoleitfähigkeit eine Ladungsträgerdichte von $n_s = 1,8 \cdot 10^{11}\text{ cm}^{-2}$. Diese geringfügige Reduktion von n_s war durch die eingeschränkte Si-Diffusion zu erwarten. Die Elektronenbeweglichkeit konnte auf $\mu = 3,5 \cdot 10^6\text{ cm}^2/\text{Vs}$ gesteigert werden. Am Ende der Optimierung der GaAs/ $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Heterostrukturen standen somit hochwertige und reproduzierbar herstellbare zweidimensionale Elektronensysteme für den spinpolarisierten Ladungstransport zur Verfügung. Positiv ist auch die verringerte Ladungsträgerdichte zu werten. Die Quanten-Hall-Plateaus der kleinen Füllfaktoren $\nu \leq 2$ sind so schon im relativ kleinen Magnetfeld von $B < 10\text{ T}$ beobachtbar.

8.3 Implementierung der Injektorschicht

In der Vorbereitung auf das spätere Überwachsen mit dem ZnSe-basierten Spinausrichter wurden die hochbeweglichen, invertierten 2DEG mit einer Injektor-Schichtstruktur kombiniert, deren Konzeption bereits in Abschnitt 5.4.3 beschrieben ist. Auf die δ -dotierte und mit einer Modulation der Substrattemperatur gewachsene $\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ -Barriere wurden anstatt 400 nm nur mehr 80–110 nm GaAs aufgebracht. Daran schloss sich eine 220–260 nm dicke $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Übergangsschicht an, deren Wachstum mit einer kontinuierlich ansteigenden Evaporationsrate der Aluminiumquelle erfolgte. Der Endwert des Aluminiumgehalts x betrug bei drei aufeinander folgend gewachsenen Heterostrukturen 11 %, 12 % und 14 % und deckte einen gewissen Bereich der Leitungsbandanpassung von $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ zu ZnSe, $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ und $\text{Zn}_{1-x-y}\text{Be}_y\text{Mn}_x\text{Se}$ ab. Mit dem jeweils gleichen Aluminiumgehalt wurde anschließend eine 18 nm dicke, n-leitende $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Schicht der Dotierung $n = 6 \cdot 10^{16}\text{ cm}^{-3}$ abgeschieden. Zwei der Heterostrukturen wurden zum Schutz vor Oxidation mit einer 2 nm dünnen n-GaAs-Schicht mit einer Ladungsträgerdichte von $n = 3 \cdot 10^{18}\text{ cm}^{-3}$ abgedeckt. Bei einer Probe verzichtete man bewusst auf diese Abdeckschicht, um die Möglichkeit eines Quantentopfes am Übergang zum später aufgetragenen II-VI-Halbleiter auszuschließen. Abschließend versah man die Oberflächen aller drei Heterostrukturen mit einer Arsenabdeckung nach der unter Abschnitt 7.1.1 beschriebenen Methode. Jeweils ein Viertel eines Wafers wurde in diesem Zustand der Standardcharakterisierung zugeführt. Das Transportverhalten aller Proben glich dem der tiefliegenden invertierten Strukturen ohne Injektorschichten.

Das Überwachsen der restlichen neun Probenstücke mit dem DMS-Kontaktmaterial und den nichtmagnetischen Referenzschichten auf ZnSe-Basis fand in einem gekoppelten MBE-System für III-V- und II-VI-Halbleiter an der Universität Würzburg statt. In der III-V-Prozesskammer wurden die Teilstücke nacheinander einem Arsen-

Tiefliegende invertierte 2DEG-Proben mit Injektor-Struktur, DMS- und nichtmagnetischen Referenzkontakten: Schichtaufbau									
semiisolierendes GaAs-Substrat mit vorbereitenden Schichten									
140 nm $\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ mit Si- δ -Dotierung									
110 nm GaAs									
80 nm GaAs									
260 nm $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Übergangsschicht $x=0,2\%-14\%$									
18 nm $\text{Al}_{0,11}\text{Ga}_{0,89}\text{As}$ $n=6\cdot 10^{16}\text{ cm}^{-3}$									
18 nm $\text{Al}_{0,12}\text{Ga}_{0,88}\text{As}$ $n=6\cdot 10^{16}\text{ cm}^{-3}$									
2 nm GaAs-Abdeckschicht $n=3\cdot 10^{18}\text{ cm}^{-3}$									
ohne Abdeckschicht									
25 nm ZnSe $n=1,5\cdot 10^{19}\text{ cm}^{-3}$									
Metallisierung: 30 nm Au / 10 nm Ti / 10 nm Al									

MBE Würzburg									
$\text{Al}_{0,12}\text{Ga}_{0,88}\text{As}$ 20 nm undotiert	$\text{Al}_{0,12}\text{Ga}_{0,88}\text{As}$ 20 nm $n=2\cdot 10^{17}\text{ cm}^{-3}$	$\text{Al}_{0,14}\text{Ga}_{0,86}\text{As}$ 20 nm $n=2\cdot 10^{17}\text{ cm}^{-3}$	$\text{Al}_{0,13}\text{Ga}_{0,87}\text{As}$ 40 nm $n=2\cdot 10^{17}\text{ cm}^{-3}$	$\text{Al}_{0,13}\text{Ga}_{0,87}\text{As}$ 20 nm $n=2\cdot 10^{17}\text{ cm}^{-3}$	$\text{Al}_{0,14}\text{Ga}_{0,86}\text{As}$ 20 nm $n=2\cdot 10^{17}\text{ cm}^{-3}$	$\text{Al}_{0,13}\text{Ga}_{0,87}\text{As}$ 20 nm $n=2\cdot 10^{17}\text{ cm}^{-3}$	$\text{Al}_{0,13}\text{Ga}_{0,87}\text{As}$ 20 nm $n=2\cdot 10^{17}\text{ cm}^{-3}$	$\text{Al}_{0,13}\text{Ga}_{0,87}\text{As}$ 20 nm $n=2\cdot 10^{17}\text{ cm}^{-3}$	$\text{Al}_{0,13}\text{Ga}_{0,87}\text{As}$ 20 nm $n=2\cdot 10^{17}\text{ cm}^{-3}$
ZnSe 200 nm $n=8\cdot 10^{18}\text{ cm}^{-3}$	ZnSe 200 nm $n=8\cdot 10^{18}\text{ cm}^{-3}$	$\text{Zn}_{0,95}\text{Mn}_{0,05}\text{Se}$ 115 nm $n=6\cdot 10^{18}\text{ cm}^{-3}$	$\text{Zn}_{0,95}\text{Mn}_{0,05}\text{Se}$ 115 nm $n=6\cdot 10^{18}\text{ cm}^{-3}$	$\text{Zn}_{0,95}\text{Mn}_{0,05}\text{Se}$ 115 nm $n=6\cdot 10^{18}\text{ cm}^{-3}$	$\text{Zn}_{0,89}\text{Be}_{0,06}\text{Mn}_{0,05}\text{Se}$ 200 nm $n=8\cdot 10^{18}\text{ cm}^{-3}$	$\text{Zn}_{0,94}\text{Be}_{0,06}\text{Se}$ 200 nm $n=8\cdot 10^{18}\text{ cm}^{-3}$	$\text{Zn}_{0,89}\text{Be}_{0,06}\text{Mn}_{0,05}\text{Se}$ 200 nm $n=8\cdot 10^{18}\text{ cm}^{-3}$	$\text{Zn}_{0,95}\text{Mn}_{0,05}\text{Se}$ 115 nm $n=6\cdot 10^{18}\text{ cm}^{-3}$	$\text{Zn}_{0,95}\text{Mn}_{0,05}\text{Se}$ 115 nm $n=6\cdot 10^{18}\text{ cm}^{-3}$

Tabelle 8.1. Schichtaufbau der Spininjektionsproben.

fluss ausgesetzt und auf eine Temperatur von 620 °C erhitzt, um eine Desorption der As-Abdeckschicht zu gewährleisten. Im RHEED-Beugungsbild ließen sich dabei ab $T = 350\text{ °C}$ erste Reflexe wahrnehmen, die im weiteren Verlauf ein dreidimensionales Beugungsbild ausbildeten. Die Beobachtung von streifenförmigen Reflexen einer glatten 2D-Oberfläche und von Zwischenreflexen einer rekonstruierten Oberfläche blieb auf nur wenige Proben beschränkt.

Auf sieben der freigelegten, einkristallinen Halbleiteroberflächen erfolgte bei $T = 600\text{ °C}$ das MBE-Wachstum von jeweils 20 nm n-leitendem $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ mit einer Elektronendichte von $n = 2 \cdot 10^{17}\text{ cm}^{-3}$. Eine der Schichten blieb undotiert, bei einer weiteren Probe wurde zur Glättung der Oberfläche eine Schichtdicke von 40 nm gewählt. Der Aluminiumgehalt x betrug abhängig von der Zusammensetzung der darunter liegenden graduellen Anpassungsschicht bei je drei Proben 12 %, 13 % und 14 %. Das RHEED-Beugungsbild setzte sich bei allen Proben aus 3D-Reflexen und den Zwischenreflexen einer (2×4) -Rekonstruktion zusammen. Während des Abkühlens auf $T = 450\text{ °C}$ ging diese in eine $c(4 \times 4)$ -Rekonstruktion über, die auch nach dem UHV-Transfer der Proben in die II-VI-Wachstumschamber zu beobachten war. Bei einer Substrattemperatur von $T = 300\text{ °C}$ wurde dort auf die $\text{GaAs}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Heterostrukturen je eine epitaktische Schicht aus n-leitendem ZnSe , $\text{Zn}_{0,94}\text{Be}_{0,06}\text{Se}$, $\text{Zn}_{0,89}\text{Be}_{0,06}\text{Mn}_{0,05}\text{Se}$ oder $\text{Zn}_{0,95}\text{Mn}_{0,05}\text{Se}$ gewachsen. Schichtdicke und Ladungsträgerdichte der ersten drei Materialien betrugen $d = 200\text{ nm}$ und $n = 8 \cdot 10^{18}\text{ cm}^{-3}$. Aufgrund seiner geringeren kritischen Schichtdicke wurde die Dicke der n- $\text{Zn}_{0,95}\text{Mn}_{0,05}\text{Se}$ -Schichten auf $d = 115\text{ nm}$ mit einer Elektronendichte von $n = 6 \cdot 10^{18}\text{ cm}^{-3}$ begrenzt. Die hohe Dotierung der II-VI-Halbleiter sollte die Breite einer eventuell auftretenden Barriere an der Grenzfläche zu $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ auf geringem Niveau halten. Streifenförmige Reflexe im RHEED-Beugungsbild ließen auf eine glatte, zweidimensionale II-VI-Halbleiteroberfläche schließen. Es konnten sowohl die Zwischenreflexe der (2×1) - als auch die der $c(2 \times 2)$ -Rekonstruktion beobachtet werden. Den Abschluss des II-VI-Wachstums bildete eine 25 nm dicke n- ZnSe -Schicht der Dotierung $n = 1,5 \cdot 10^{19}\text{ cm}^{-3}$. Nach einem weiteren Transfer unter UHV-Bedingungen wurden alle Proben in einer separaten Metallisierungschamber mit 10 nm Aluminium, 10 nm Titan und 30 nm Gold beschichtet. Eine detaillierte Aufstellung der Schichtfolge jeder Probe findet sich in Tabelle 8.1.

Die Prozessierung der Proben erfolgte unter Reinraumbedingungen mittels optischer Lithographie. Die bereits in Abschnitt 7.3.2 beschriebenen, selektiven nasschemischen Ätzverfahren dienten zur Bearbeitung der Metallisierungsschicht und zum lokalen Entfernen der II-VI-Halbleiterschicht. An verschiedenen Stufen der Prozessierung wurde ein Probenstück einer jeden Heterostruktur auf seine elektrischen Eigenschaften hin untersucht. Die zu diesem Zweck in Zweipunkt-Geometrie aufgenommenen Strom-

Spannungs-Kennlinien sind zusammen mit der jeweils skizzierten Probenstruktur und Beschaltung in Abbildung 8.5 aufgetragen.

Stufe A: In vorher lithographisch definierte Rechtecke der Größe $400\text{ }\mu\text{m} \times 200\text{ }\mu\text{m}$ wurden weitere 200 nm Gold aufgedampft. Die so verdickten Bereiche dienten nach dem nasschemischen Entfernen der dazwischen liegenden Al/Ti/Au-Metallisierung als Kontaktfelder für die n-ZnSe/ $\text{Zn}_{1-x-y}\text{Be}_y\text{Mn}_x\text{Se}$ -Schichten. Wie Graph 8.5(a) exemplarisch zeigt, konnte in Strom-Spannungs-Kennlinien an allen Strukturen sowohl bei Raumtemperatur als auch bei $T = 4,2\text{ K}$ ein ohmsches Verhalten der Kontakte nachgewiesen werden. Bei einem Kontaktabstand von $400\text{ }\mu\text{m}$ nahm der Widerstand Werte von $200\text{ }\Omega - 1,2\text{ k}\Omega$ an. Magnetfeldabhängige Transportmessungen brachten zu Abschnitt 7.3.3 vergleichbare Ergebnisse.

Stufe B: In einem selektiven Ätzschritt in Chrom-Schwefelsäure wurde das II-VI-Halbleitermaterial bis auf frei stehende Mesas von der GaAs/ $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Heterostruktur entfernt. Die Kontaktfelder dienten dabei als Maske. Graph 8.5(b) stellt stellvertretend für alle Proben eine bei Raumtemperatur an zwei benachbarten Mesa-Kontakten gemessene Kennlinie dar. Der aus dem II-VI-Material in das 2DEG und weiter in den zweiten II-VI-Kontakt fließende Strom ist trotz der hohen angelegten Spannung verschwindend gering. Die Messkurve ist stark nichtlinear. Die angefertigten Proben erwiesen sich deshalb als unbrauchbar für das geplante Spininjektionsexperiment.

Das unerwartete Sättigungsverhalten der strukturierten Proben bei kleinsten Strömen warf zusätzliche Fragen über Lage und Art von Potentialbarrieren in der Heterostruktur auf.

Stufe C: In-Kontakte, die auf einige Proben der Prozessstufe B mit einem LötKolben aufgebracht wurden, erlaubten zum einen den Nachweis der Funktion des zweidimensionalen Elektronengases, zum anderen die separate elektrische Charakterisierung eines einzelnen Mesa-Kontakts. In eigens angestellten Testreihen wurde ein Legierverfahren mit möglichst geringer thermischer Belastung der Proben ermittelt, um einerseits ein ohmsches Verhalten der In-Kontakte sicherzustellen und andererseits eine Schädigung der metallisierten II-VI-Mesa zu vermeiden. Die Eckdaten lauten:

- Aufheizzeit: 2,5 Minuten
- Legiertemperatur: $360\text{ }^\circ\text{C}$
- Legierzeit: 30 – 40 Minuten

Während die an zwei In-Kontakten aufgenommenen Strom-Spannungs-Kennlinien durchwegs ohmsches Verhalten aufwiesen, lieferten vergleichbare Messungen an gemischten Kontaktpaaren bei allen Temperaturen Diodenkennlinien. Graph 8.5(c) zeigt

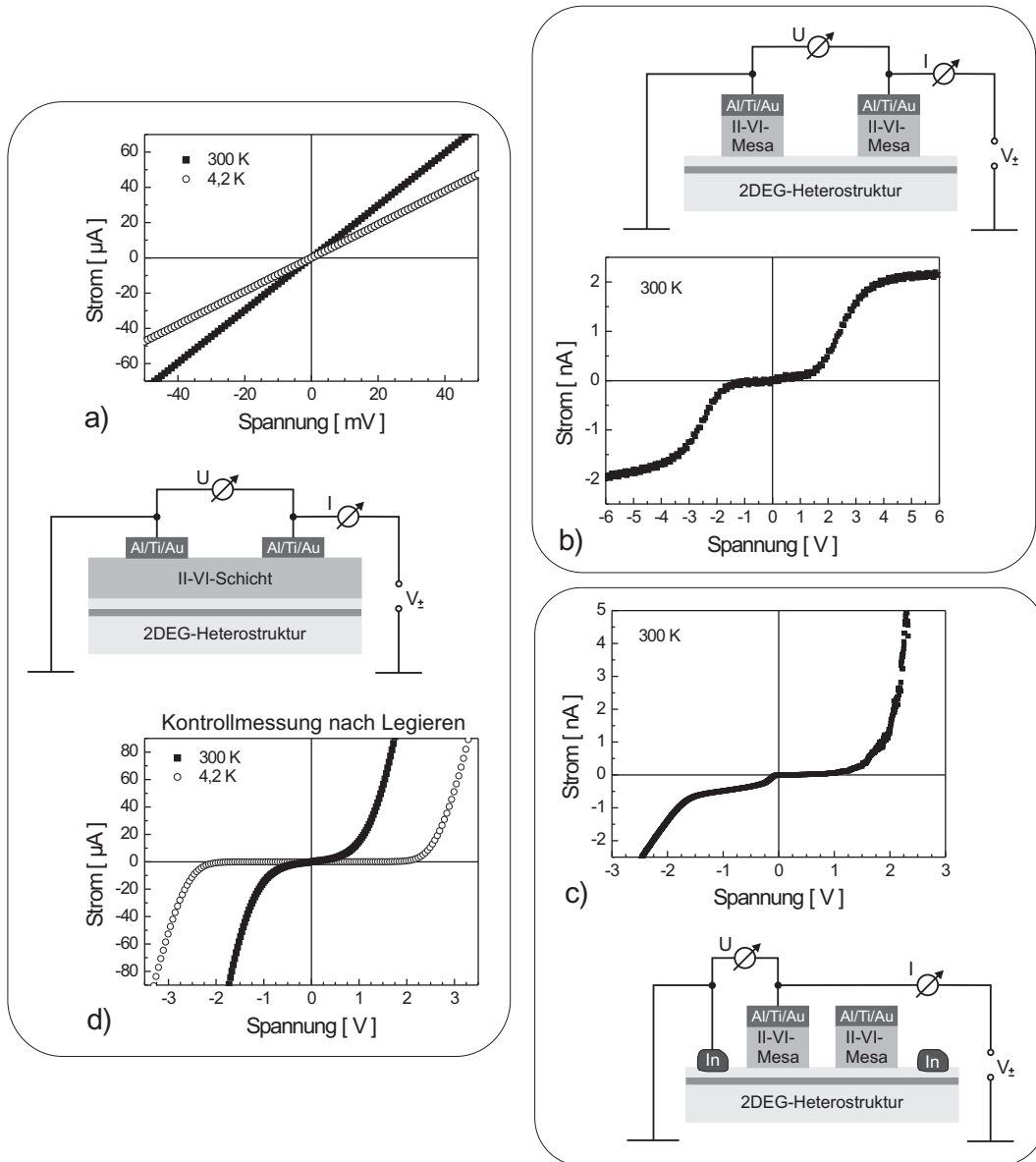


Abbildung 8.5. Elektrische Charakterisierung der II-VI/III-V-Heterostrukturen zu verschiedenen Stufen der lithographischen Prozessierung. Den in Zweipunkt-Anordnung gemessenen Strom-Spannung-Kennlinien ist jeweils eine Strukturskizze mit Schalt-schema zur Seite gestellt. (a) Al/Ti/Au-Kontaktfelder auf der noch zusammenhängenden II-VI-Halbleiterschicht: Die linearen Kennlinien bei Raumtemperatur und bei $T = 4,2\text{ K}$ bezeugen ohmsches Verhalten. (b) Strukturierte II-VI/Al/Ti/Au-Mesas auf der $\text{GaAs}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Heterostruktur: Die Kennlinie ist schon bei Raumtemperatur stark nichtlinear. (c) Mesa-Struktur mit zusätzlich aufgebracht und einlegierten In-Kontakten: Die Kennlinie bei $T = 300\text{ K}$ zeigt das Verhalten einer Diode. Für $U > 0$ fließen die Elektronen vom In-Kontakt durch das 2DEG in die II-VI-Mesa. (d) Zusammenhängende II-VI-Schicht mit Al/Ti/Au-Kontakten nach dem Legierprozess aus (c): Bei Raumtemperatur und bei $T = 4,2\text{ K}$ liegen symmetrische Diodenkennlinien vor.

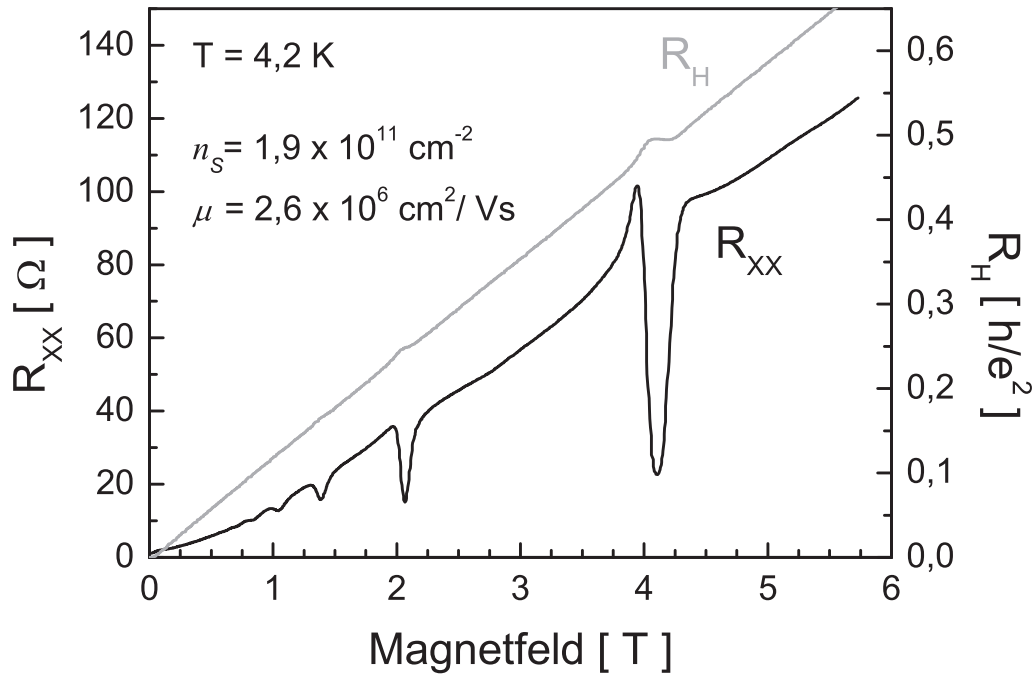


Abbildung 8.6. Längs- und Hallwiderstand (grau) einer mit II-VI-Mesa- und einlegierten In-Kontakten versehenen Spininjektionsprobe im äußeren Magnetfeld bei $T = 4,2 \text{ K}$. An vier In-Kontakten in van der Pauw-Geometrie ließ sich der einwandfreie Zustand des zweidimensionalen Leitungschanals verifizieren.

die bei $T = 300 \text{ K}$ in nebenstehender Schaltung ermittelte Messkurve. Für $U > 0$ fließen die Elektronen vom In-Kontakt durch das 2DEG in die II-VI-Mesa. Der Strom nimmt ab $U \approx 2 \text{ V}$ exponentiell zu. Bei negativen Spannungen ist der Anstieg des Stroms deutlich schwächer.

Stufe D: Zusammen mit den mit Indium kontaktierten Mesa-Strukturen der Stufe C wurden auch Proben der Prozessstufe A dem oben genannten Legierverfahren unterzogen, um den Einfluss der thermischen Belastung auf die Al/Ti/Au-Metallisierung der II-VI-Schichten zu kontrollieren. Wie die Strom-Spannungs-Kennlinien in Graph 8.5(d) belegen, wurden die ehemals ohmschen Kontakte an der Grenzfläche von $\text{n}^+\text{-ZnSe}$ zu Aluminium zerstört. Die Messkurve zeigt ein um den Ursprung symmetrisches Diodenverhalten. Folglich können aus Graph 8.5(c) keine Aussagen über die Höhe der Barriere und ihre genaue Lage in der Heterostruktur getroffen werden.

Die unbefriedigenden elektrischen Eigenschaften der in Stufe B verarbeiteten Proben liegen nicht in einer Schädigung des zweidimensionalen Leitungschanals begründet. An Proben der Prozessierungsstufe C konnte mit vier einlegierten In-Kontakten in van der Pauw-Geometrie Quantentransport bei tiefen Temperaturen gemessen werden. Die in Abbildung 8.6 aufgetragenen Ergebnisse verifizieren die einwandfreie Funktion des 2DEG.

Neben dem Übergang von der Al/Ti/Au-Metallisierung zur hochdotierten ZnSe-Abdeckschicht kommt vor allem die Grenzfläche zwischen der jeweiligen $n\text{-Zn}_{1-x-y}\text{Be}_y\text{Mn}_x\text{Se}$ -Schicht und der das III-V-Wachstum beschließenden $n\text{-Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Schicht als Ort einer Potentialbarriere in Betracht. In den noch unlegierten Proben der Prozessstufe B kann erstere Möglichkeit ausgeschlossen werden. Der bei diesen Strukturen aus dem II-VI-Material in das 2DEG und weiter in den zweiten II-VI-Kontakt fließende Strom ist trotz der hohen angelegten Spannung verschwindend gering und geht symmetrisch um den Ursprung sowohl bei positiver als auch bei negativer Spannung in Sättigung über. Einige Proben zeigten zusätzlich einen sperrenden Bereich um den Ursprung der Kennlinie, der sich bis zu $|U| \leq 2\text{ V}$ erstreckte. Dieses Verhalten ist charakteristisch für Doppel-Diodenstrukturen. Tatsächlich liefert eine Anpassung der Messkurven mit einem Modell für die Stromdichte in einem System aus zwei entgegengesetzt gepolten $n^+\text{-n}$ -Heteroübergängen Barrierenhöhen von jeweils $\Phi \approx 0,7\text{ eV}$ [Cai98]. Dieser Wert ist allerdings lediglich als grobe Abschätzung zu verstehen. Das Modell betrachtet Barrieren, die nur durch wenige Mikrometer dicke Schichten innerhalb einer Heterostruktur voneinander getrennt sind. Dem gegenüber ist der Abstand der einzelnen Mesa-Kontakte der hier vermessenen Proben mit $400\text{ }\mu\text{m}$ deutlich größer. Dessen ungeachtet widerspricht das deutliche Ausmaß der Barrierenhöhe den zur Entwicklung der Spininjektionsstruktur angestellten Überlegungen und Bandstrukturrechnungen. Der in Kapitel 5.4.3 vorgestellte Entwurf der Heterostruktur sollte einen flachen Leitungsbandverlauf nahe dem Fermi-niveau sicherstellen.

Von unverhältnismäßig hohen Potentialstufen an $n\text{-n}$ -Heteroübergängen wurde bereits im Materialsystem $n\text{-Ge}/n\text{-Si}$ berichtet [Old64]. Aufgrund der Gitterfehlanpassung zwischen beiden Materialien bildet sich unmittelbar an der Heterogrenzfläche eine große Zahl von Kristalldefekten aus. Diese bewirkt eine hohe Dichte elektronischer Zustände deutlich unterhalb der Leitungsbandunterkanten beider Halbleiter, die die Lage des Fermi-niveaus bestimmen. Das Leitungsband ist dadurch am Heteroübergang energetisch erhöht. Zu beiden Seiten der Grenzfläche bildet sich folglich eine Verarmungszone aus, die die Leitungselektronen durchtunneln müssen.

Der elektronische Transport durch die heterovalente $n\text{-ZnSe}/n\text{-GaAs}$ -Grenzfläche ist ebenfalls einem starken Einfluss der Grenzflächendefekte unterworfen [Han97]. In den von Simulationsrechnungen begleiteten, experimentellen Untersuchungen an ZnSe/GaAs-Heterostrukturen mit stark unterschiedlicher Defektdichte N_{GD} am Heteroübergang zeigte sich, dass der an Ladungsträgern verarmte Bereich in den defektreicheren Proben deutlich verbreitert ist. Abbildung 8.7 stellt den berechneten Verlauf von Leitungs- und Valenzband ohne (a) und mit Berücksichtigung der Grenzflächenzustände (b) dar. Im letzteren Fall tritt am Heteroübergang eine Barriere im Leitungsband auf, die den üblichen Leitungsbandoffset weit übersteigt. Eine bestimmte Stromdichte

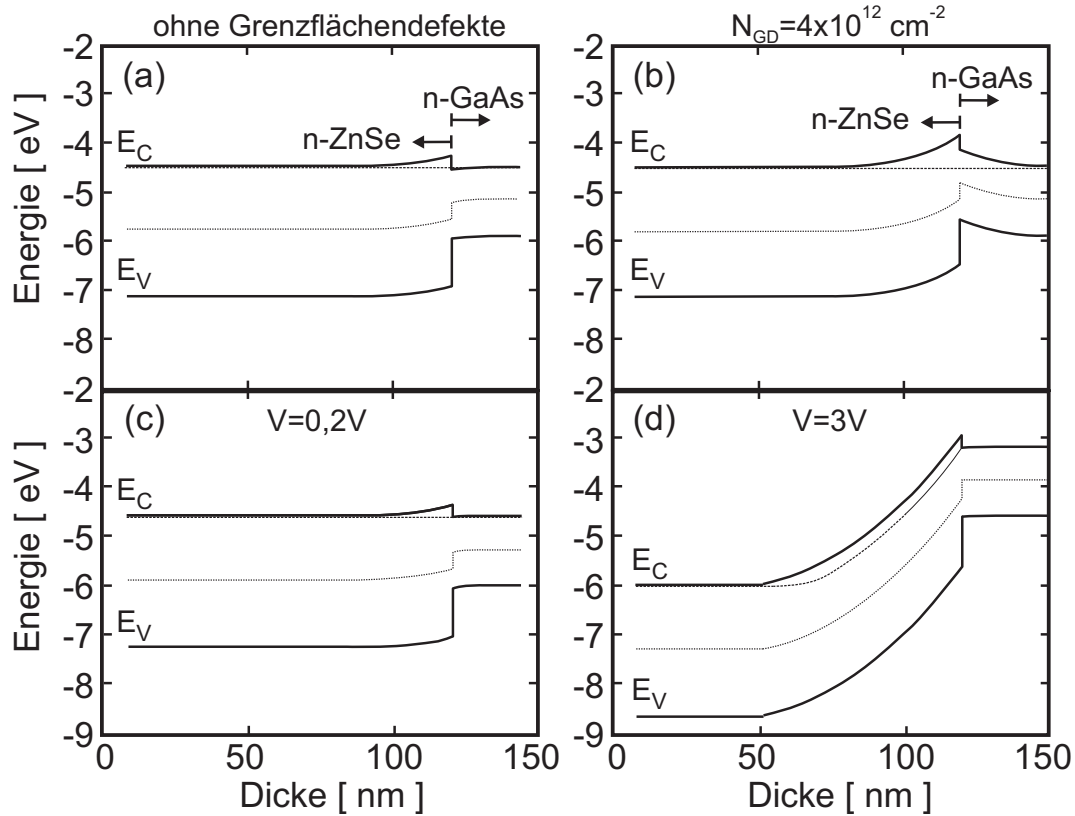


Abbildung 8.7. Simulierter Verlauf der Energien E_C und E_V des Leitungs- und Valenzbands an einem n-ZnSe/n-GaAs-Heteroübergang (i) im Gleichgewicht (a) ohne Berücksichtigung von Grenzflächendefekten, (b) bei einer Defektdichte von $N_{GD} = 4 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ am Heteroübergang. (ii) Bandstruktur bei angelegter Potentialdifferenz zur Strominjektion über die Grenzfläche: (c) Ohne Grenzflächendefekte ist eine geringe Spannung ausreichend. (d) Eine hohe Defektdichte bewirkt eine starke Ladungsträgerverarmung. Eine zu (c) vergleichbare Stromdichte lässt sich erst bei hohen Spannungen erzielen (nach [Han97]).

ließ sich in defektreichen Proben nur bei einer deutlich höheren angelegten Spannung erreichen als in Strukturen mit um Größenordnungen geringerer Defektdichte. Die entsprechend berechneten Bandverläufe für $N_{GD} = 0$ und $N_{GD} = 4 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ sind jeweils in Graph 8.7(c) und (d) aufgetragen.

Eine weitere, mögliche Ursache für eine Ladungsträgerverarmung an der Grenzfläche stellen Diffusionsprozesse über den polaren ZnSe/GaAs-Heteroübergang dar. In elektrischen und optischen Messungen an epitaktisch gewachsenen, undotierten und n^+ -dotierten ZnSe-Schichten auf n^+ -GaAs-Substraten konnte eine starke Interdiffusion von Zn- und Ga-Atomen mit Diffusionslängen von $\lambda_{\text{Zn}} = 10 \text{ nm}$ und $\lambda_{\text{Ga}} = 4 \text{ nm}$ festgestellt werden [Kas91]. Als unmittelbare Konsequenz bildete sich im Leitungsband des GaAs-Substrats eine Barriere aus, deren Höhe mit steigender Chlordotierung des ZnSe zunahm.

Eine genaue Klärung des stark nichtlinearen Verhaltens der hier vorgestellten Spininjektionsproben kann an dieser Stelle nicht erfolgen.

Die bei der Herstellung der Spininjektionsproben angestrebten Prozessbedingungen sollten einen niedrigen Leitungsbandoffset und eine geringe Defektdichte am II-VI/III-V-Heteroübergang sicherstellen. Unter hohem Aufwand wurden die 2DEG-Heterostrukturen unmittelbar vor dem Aufwachsen der ZnSe-basierten Spinausrichter mit frischen, nicht oxidierten, As-terminierten $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Epischichten versehen. Der Transfer zwischen den jeweiligen Epitaxiekammern erfolgte im Ultrahochvakuum. Die kritische Betrachtung einzelner Zwischenschritte der Herstellung offenbart jedoch Abweichungen, die die gewünschten Probeneigenschaften am Heteroübergang in Frage stellen:

- Aufgrund eines technischen Defekts an der II-VI-Epitaxiekammer erfolgte die Weiterverarbeitung der 2DEG-Heterostrukturen erst nach vier Wochen anstatt wie geplant nach 48 Stunden. Trotz der zwischenzeitlichen Aufbewahrung der Proben unter hochreiner Stickstoffatmosphäre kann die Alterung der As-Abdeckschicht nicht ausgeschlossen werden. Die zur Desorption des Arsens benötigten Temperaturen lagen dementsprechend um mehr als $T = 200^\circ\text{C}$ über dem sonst üblichen Wert. Des Weiteren gelang es nur in Einzelfällen, im RHEED-Beugungsbild eine glatte 2D-Oberfläche nachzuweisen.
- Die anhand des RHEED-Beugungsbilds abgeschätzte Güte der $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Epitaxie blieb unterhalb der im eingesetzten III-V-MBE-System üblichen Qualität. Eine Verdoppelung der Schichtdicke führte ebenfalls zu keiner erkennbaren Verbesserung.
- Es gelang nicht, das Wachstum der ZnSe-basierten Spinausrichter auf einer (2×4) -rekonstruierten $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Oberfläche zu beginnen. RHEED-Kontrolluntersuchungen in der II-VI-Kammer zeigten unmittelbar vor dem Wachstumsstart eine $c(4 \times 4)$ -Rekonstruktion an. Wie bereits in Abschnitt 2.3.2 beschrieben ist, wurde dadurch die Bildung von Grenzflächendefekten begünstigt.
- Die ventilgesteuerte Se-Cracker-Zelle der Epitaxiekammer sollte dazu genutzt werden, den Se-Hintergrunddruck im Reaktor während der Zn-Bestrahlung der III-V-Oberfläche zu minimieren. Ein Defekt im Ventilmechanismus verhinderte jedoch die Unterbrechung der Se-Zufuhr. Durch die demzufolge erhöhte Se-Exposition der $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Oberfläche lagen auch hier geeignete Voraussetzungen für eine hohe Defektdichte am Heteroübergang vor.

Die während der Herstellung der Spininjektionsproben gemachten Beobachtungen bestärken den Verdacht, dass vor allem eine durch kristalline Defekte am Heteroübergang zwischen $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ und $\text{Zn}_{1-x-y}\text{Be}_y\text{Mn}_x\text{Se}$ verursachte Potentialbarriere im Leitungsband den elektronischen Transport weitgehend unterbindet.

8.3.1 Funktion des Injektorprinzips in III-V-Komplettsystemen

Neben der oben beschriebenen Limitierung der Elektronendiffusion an der II-VI/III-V-Grenzfläche gilt es, auch der Frage nach dem Funktionieren der mehrschichtigen Injektorstruktur an sich nachzugehen. Zu diesem Zweck wurde eine zu den Spininjektionsproben vergleichbare, nichtmagnetische Heterostruktur hergestellt, die ausschließlich aus III-V-Halbleitermaterial bestand. Anstelle der II-VI-Halbleiterschichten trat eine 260 nm dicke Kontaktschicht aus n-leitendem $\text{Al}_{0,13}\text{Ga}_{0,87}\text{As}$ der Dotierung $n = 1,7 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$, abgedeckt von 5 nm hochdotiertem GaAs. Die detaillierte Schichtfolge oberhalb der deltadotierten $\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ -Barriere ist in Abbildung 8.8 dargestellt. Eine besondere Herausforderung stellte die Fertigung ohmscher Kontakte zu diesem Schichtsystem dar. Die aufgebrachte Metallisierung sollte einerseits zuverlässig eine flächige Verbindung zu den oberen GaAs/ $\text{Al}_{0,13}\text{Ga}_{0,87}\text{As}$ -Schichten ausbilden und ohmsches Verhalten zeigen. Andererseits musste das Kontaktmaterial auch bei thermischer Behandlung eine begrenzte Eindringtiefe in den Halbleiter aufweisen, um einen unmittelbaren Kontakt mit dem zweidimensionalen leitenden Kanal zu vermeiden. Hätte der Stromfluss die Injektorstruktur umgangen, hätte das Experiment an Aussagekraft verloren. Indium kam aufgrund seiner starken Tiefendiffusion in GaAs als Kontaktmaterial nicht in Frage. Eine Materialkombination aus Pd, AuGe, Ag und Au bildet hingegen nach Legieren bei lediglich geringer Diffusion in den Halbleiter ohmsche Kontakte zu n-GaAs und n- $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ aus [Zhe92].

In einem ersten Aufdampfprozess erfolgte daher in dem UNIVEX-System die Beschichtung der III-V-Heterostruktur mit 5 nm Pd und 100 nm eutektischer AuGe-Legierung (Gewichtsverhältnis: 88 : 12) in vorher lithographisch definierte Kontaktfenster. Nach dem Transfer in eine weitere UHV-Wachstumschamber wurden nacheinander 100 nm Ag und 100 nm Au aufgebracht. Die Parameter für den Legierprozess

- Aufheizzeit: 60 Sekunden
- Legiertemperatur: 475 °C
- Legierzeit: 60 Sekunden

ließen sich zuvor anhand einer Teststruktur ermitteln. Im Wesentlichen bestand diese aus einer 100 nm dicken n-GaAs-Schicht, die durch eine ebenso dicke $\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ -

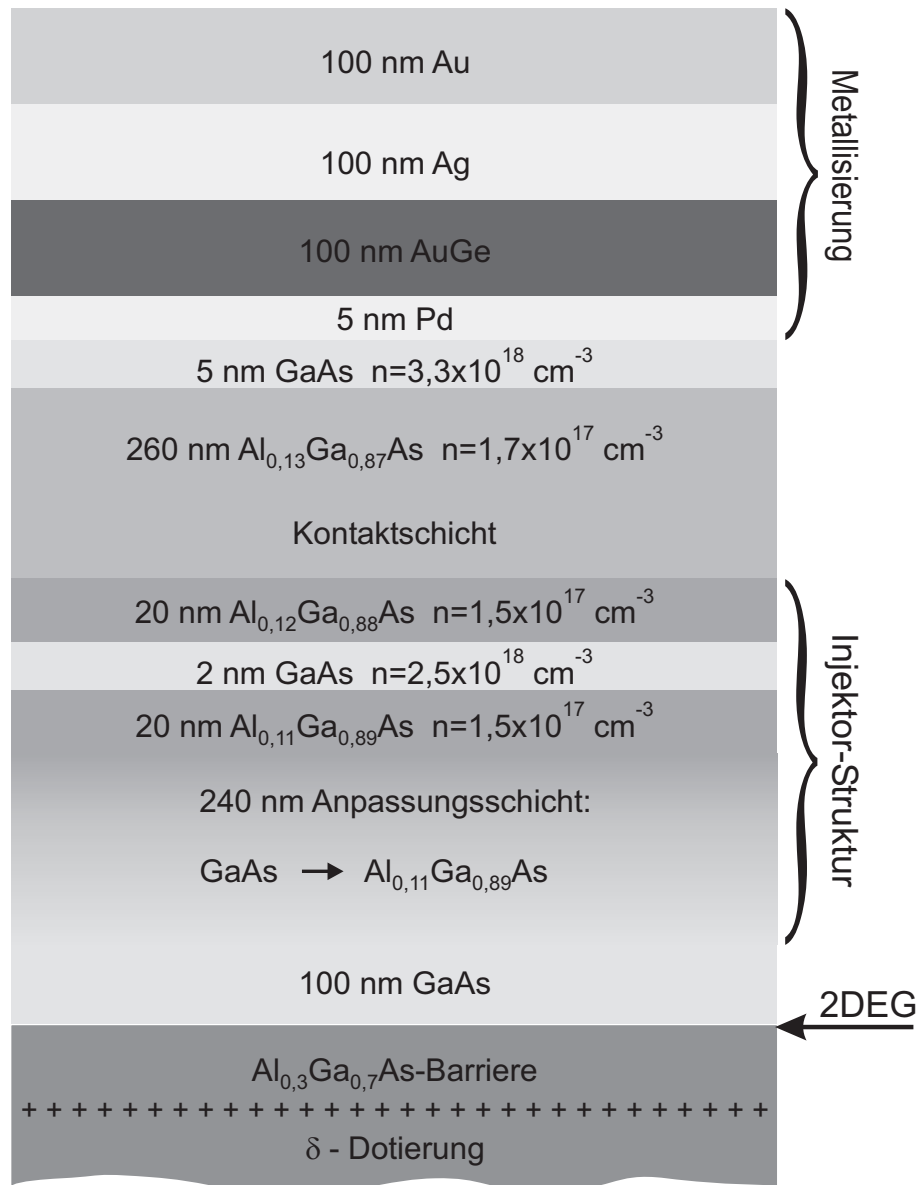


Abbildung 8.8. Schematische Darstellung der Schichtfolge einer tief liegenden invertierten 2DEG-Heterostruktur mit darüber liegender Injektorschicht, halbleitender $\text{Al}_{0,13}\text{Ga}_{0,87}\text{As}$ -Kontaktschicht und Pd/AuGe/Ag/Au-Metallisierung. Die nominellen Werte für Schichtdicke und Dotierung sind mit angegeben.

Barriere von einer Dünnschicht-MDSI-2DEG-Struktur getrennt war. Nach dem beschriebenen Legierprozess war elektronischer Transport durch das oberflächennahe dreidimensionale GaAs, nicht aber durch das unter der Barriere vergrabene 2DEG nachweisbar. Es konnte also davon ausgegangen werden, dass Diffusionsprozesse während der thermischen Behandlung der Proben auf oberflächennahe Bereiche begrenzt blieben.

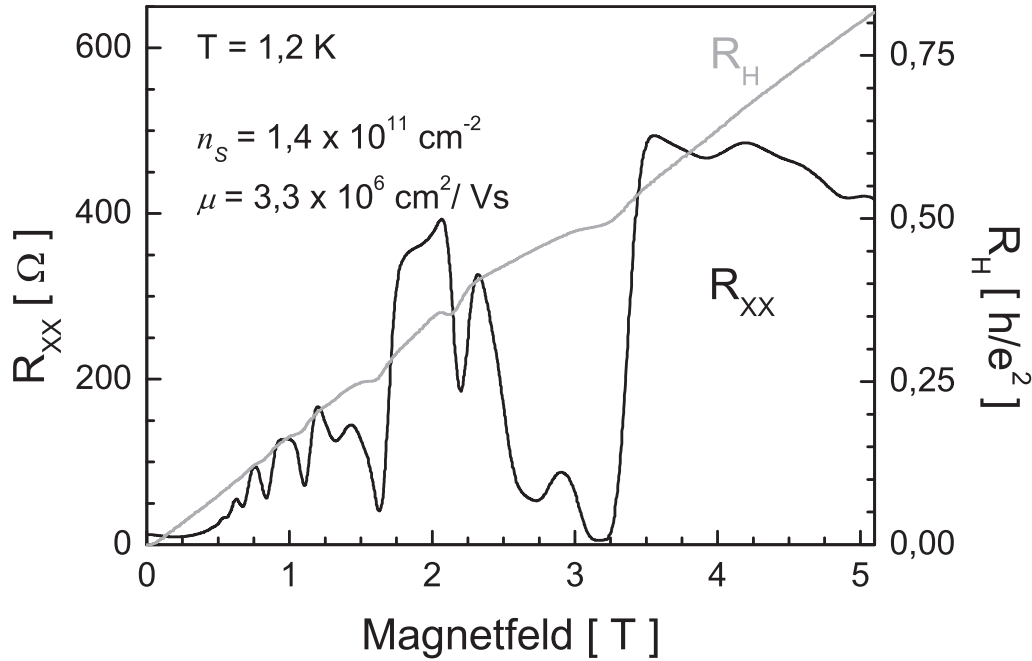


Abbildung 8.9. Magnetfeldabhängige Transportmessungen an einer den Spininjektionsproben entsprechenden, nichtmagnetischen III-V-Vergleichsprobe, die aus einer invertierten 2DEG-Heterostruktur, einem Injektor und einer $\text{Al}_{0,13}\text{Ga}_{0,87}\text{As}$ -Kontaktschicht besteht. Ein Pd/AuGe/Ag/Au-Schichtstapel liefert nach Legieren ohmsche Kontakte mit geringer Diffusionstiefe. Die Messungen von Längs- und quantisiertem Hallwiderstand (grau) erfolgten an einer Hallbar-Geometrie bei einer Temperatur von $T = 1,2\text{ K}$ und einem Strom von $I = 1\text{ }\mu\text{A}$. Die ermittelten Werte für Ladungsträgerdichte und Beweglichkeit sind angegeben.

Die kontaktierte $\text{Al}_{0,13}\text{Ga}_{0,87}\text{As}$ /Injektor/2DEG-Heterostruktur wurde nasschemisch zu einer Hallbar-Geometrie prozessiert. Bei Tests mit der im $\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ /GaAs-System als Selektivätzgebräuchlichen 1%-igen HF-Lösung konnte kein Ätzratenunterschied zwischen $\text{Al}_{0,13}\text{Ga}_{0,87}\text{As}$ und GaAs festgestellt werden. Zum Entfernen der $\text{Al}_{0,13}\text{Ga}_{0,87}\text{As}$ -Schichten zwischen den Kontaktsäulen fand deshalb eine nichtselektive Ätzlösung aus $\text{H}_2\text{SO}_4 : \text{H}_2\text{O}_2 : \text{H}_2\text{O}$ im Verhältnis von 1 : 8 : 1000 mit besonders langsamer Ätzrate von 32 nm/min Verwendung. Die Hallbar-Mesa konnte in einem für Strukturen GaAs/ $\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ üblichen Selektivprozess mit Zitronensäure ($\text{C}_5\text{H}_7\text{O}_5\text{-COOH}$) : H_2O_2 im Verhältnis 10 : 1 freigestellt werden. Alle bei Temperaturen von 1,2 – 4,2 K nach Beleuchtung gemessene Strom-Spannungs-Kennlinien zeigten ohmsches Verhalten mit Zweipunktwiderständen von 400 – 900 Ω , je nach Abstand der Kontakte und Breite des Strompfads. Im veränderlichen äußeren Magnetfeld konnte zweifelsfrei Quantentransport nachgewiesen werden. Der Verlauf des quantisierten Hallwiderstands und der Shubnikov-de Haas-Oszillationen im Längswiderstand ist in Abbildung 8.9 wiedergegeben. Bei Magnetfeldern oberhalb von 1 T tritt in den SdH-Oszillationen die

Aufhebung der Spinentartung deutlich zu Tage. Der Verlauf von R_{XY} zeigt, dass in der zu dem Konzept der Spininjektionsproben vergleichbaren III-V-Heterostruktur die Bestimmung und Auswertung des Quanten-Hall-Effekts problemlos möglich ist.

Die Wahl eines halbleitenden Kontaktmaterials und das Prinzip der Injektorstruktur stehen somit einem elektronischen Transport bei kleinen angelegten Spannungen nicht im Wege. Dieser stellt eine unverzichtbare Voraussetzung für Quanten-Hall-Messungen im Bereich der linearen Antwort dar, anhand derer der Nachweis der Spininjektion erfolgen sollte. Die in den Spininjektionsproben dominante Potentialbarriere am II-VI/III-V-Heteroübergang erschwert somit nicht nur das Transportexperiment, sondern vereitelt schließlich den Nachweis einer erfolgreichen Spininjektion aus dem DMS-Material in das 2DEG durch den Quanten-Hall-Effekt.

8.4 Die (110)-Grenzfläche - eine Alternative

Als besonderer Reiz der (001)-orientierten, polaren Grenzfläche zwischen den heterovalenten Halbleitersystemen ZnSe und GaAs gilt die hohe Variabilität des energetischen Versatzes von Valenz- und Leitungsband. Je nach geplanter Anwendung lässt sich dieser über die stöchiometrische Zusammensetzung am Materialübergang um mehrere hundert meV verändern. Wie sich im Rahmen dieser Arbeit herausstellte, ist die genaue Kontrolle der Zusammensetzung der Grenzfläche eine große Herausforderung. Kleine Abweichungen können bereits starke Einschränkungen des elektronischen Transports nach sich ziehen. Darüber hinaus erfordert das Konzept, ein hochbewegliches, (001)-orientiertes 2DEG durch eine vertikale Abfolge geeigneter Halbleiterschichten hindurch zu kontaktieren, einen hohen Aufwand an Planung und Herstellung der Heterostrukturen.

Als Alternative bietet sich das Wachstum des Spinausrichters auf die nach einem Spaltvorgang freiliegende (110)-Facette der 2DEG-Heterostruktur an. Die Injektion der spinpolarisierten Elektronen erfolgt in diesem Fall direkt in den zweidimensionalen Leitungs kanal. Auf speziell konstruierte Heterostrukturen wie beispielsweise die Injektor-schicht oder das invertierte 2DEG könnte dann verzichtet werden. Als niederdimensionales Transportmedium ist auch eine beidseitig des hochbeweglichen Quantentrops dotierte Heterostruktur denkbar, die besonders lange Spinrelaxationszeiten aufweist [Gig07].

Im Gegensatz zur (001)-orientierten GaAs-Oberfläche liegen in der (110)-Ebene von GaAs Ga- und As-Atome in gleicher Anzahl vor. Die GaAs(110)-Oberfläche ist somit elektrisch neutral und zeigt daher keine Rekonstruktionen. An der ZnSe/GaAs(110)-

Heterogrenzfläche bilden sich einfache Ga-Se/Zn-As-Bindungen aus [Miw97]. Die Anzahl geladener Fehlstellen wie etwa Zn-Vakanzen ist daher niedrig, die Versetzungsdichte im aufwachsenden ZnSe ist dementsprechend gering. Im Gegensatz zu dem breiten Spektrum der Bandfehlانpassung im polaren ZnSe/GaAs(001)-System wurden für den natürlichen Leitungsbandoffset am unpolaren ZnSe/GaAs(110)-Heteroübergang mittels Röntgenphotoemissionsspektroskopie einheitlich 200 meV gemessen [Bra93]. Viele der Fehlerquellen, die durch die beim (001)-Wachstum unabdingbare exakte Kontrolle zahlreicher Parameter auftreten, könnten bei der ZnSe-Epitaxie auf (110)-orientiertes GaAs entfallen. Eine weitere Verbesserung des Schichtwachstums erhält man durch die Präparation frischer, nicht oxidierten GaAs-(110)-Spaltflächen im Ultrahochvakuum, da in diesem Fall die Dichte der Oberflächenzustände innerhalb der Bandlücke deutlich reduziert ist [Far95].

Die im Rahmen dieser Arbeit verwendete II-VI-Halbleiterepitaxiekammer verfügt über eine vertikale, stehende Anordnung der Effusionszellen und ist daher nur bedingt für die oben angesprochene UHV-Spaltmethode geeignet. Eine Verunreinigung des Aufdampf-guts durch herabfallende GaAs-Stücke kann in einer solchen Geometrie nicht ausgeschlossen werden. In ersten Versuchen zur Epitaxie von (110)-orientiertem $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ ließ sich unter Einsatz der Wasserstoffplasma-Desoxidation die Oxidschicht von vorher an Luft präparierten GaAs(110)-Spaltflächen problemlos entfernen. Das RHEED-Beugungsbild zeigte wie erwartet die (1×1) -Symmetrie der nicht rekonstruierten GaAs(110)-Oberfläche.

Bei einer gemessenen Substrattemperatur $T_S = 270^\circ\text{C}$ wurden bei einem Teilchenfluss-verhältnis $J_{\text{Se}}/J_{\text{Zn}} \approx 0,5 - 0,75$ erfolgreich n-leitende $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Schichten epitaktisch abgeschieden. Aus der Analyse des (220)-Reflexes in der Röntgendiffraktometrie ließen sich Mn-Konzentrationen x zwischen 3 % und 7 % nachweisen. Hallmessungen in Vierpunkt-van der Pauw-Geometrie lieferten eine Ladungsträgerdichte $n = 1 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$. In Magnetotransportmessungen an n- $\text{Zn}_{0,93}\text{Mn}_{0,07}\text{Se}$ (110) verhielt sich der Längswiderstand ebenso wie in Untersuchungen an (001)-orientiertem $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ mit vergleichbarem Mn-Gehalt x (vgl. Kapitel 7.3.3). Hierdurch bestätigt sich erneut die Unabhängigkeit des Magnetowiderstands von der Richtung des angelegten Magnetfelds.

In diesen ersten Experimenten ist die Herstellung epitaktischer n- $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Schichten auf GaAs(110)-Spaltflächen gelungen, die die ihnen zugedachte Funktion als Spinausrichter erfüllen. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde damit einem alternativen Ansatz zur Spininjektion von ZnMnSe in GaAs der Weg bereitet. Darüber hinaus wurden bereits wesentliche Vorarbeiten angestellt. Detaillierte Untersuchungen müssen nun in Folgeprojekten zeigen, ob spinerhaltender elektronischer Transport aus der DMS-Kontaktschicht in dotiertes GaAs oder in GaAs/ $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Heterostrukturen

mit einem niederdimensionalen Leitungskanal möglich ist. Durch einen Wechsel vom (001)- zum (110)-orientierten Heteroübergang kann der Planungsaufwand für die Bedürfnisse der Ladungsträgerinjektion entfallen und ganz auf Elektronensysteme mit langer Spinlebensdauer konzentriert werden. Eine große Herausforderung bleibt allerdings die lithographische Mikrostrukturierung geeigneter Kontaktgeometrien auf der nur wenige $100\text{ }\mu\text{m}$ breiten Spaltfläche.

Kapitel 9

Zusammenfassung

Gegenstand dieser Arbeit ist die Entwicklung und die Herstellung von Halbleiterheterostrukturen, um mit elektrischen Transportexperimenten den Nachweis der elektrischen Injektion spinpolarisierter Elektronen in ein zweidimensionales Elektronengas (2DEG) zu erbringen. In Anlehnung an das Konzept des Spintransistors [Dat90] wurden hochbewegliche GaAs/AlGaAs-2DEG-Heterostrukturen mit Kontakten aus semimagnetischem ZnMnSe versehen. Dieser verdünnte magnetische Halbleiter (DMS) zeichnet sich bei tiefen Temperaturen und kleinem externen Magnetfeld durch eine nahezu vollständige Polarisation der Elektronenspins aus.

Gegenüber bisherigen Nachweismethoden durch Messung des zirkular polarisierten Elektrolumineszenzlichts oder eines stark überhöhten Magnetowiderstands wird ein neues Konzept vorgestellt, bei dem der Nachweis der Spininjektion im Quanten-Hall-Regime bei vollständiger Randkanalleitung bei ganzzahligen Füllfaktoren ν erfolgt. Dabei beziehen die theoretischen Betrachtungen die durch die Zeeman-Aufspaltung des Leitungsbands bestimmte Spinpolarisation der Kontakte sowie die durch Spin-Bahn-Effekte verursachte Equilibrierung zwischen spinaufgespaltenen Randkanälen mit ein. Der resultierende Widerstandswert der Hallplateaus erreicht dabei idealerweise bis zu $2\frac{e^2}{\nu h}$, was dem Zweifachen des bei vergleichbarem Füllfaktor gemessenen Wertes bei Injektion unpolarisierter Ladungsträger entspricht. Die Annäherung des tatsächlich gemessenen Hallwiderstands an $\frac{e^2}{\nu h}$ ist ein Maß für die fortschreitende Equilibrierung der sich im Ungleichgewicht befindenden Randkanäle eines spinaufgespaltenen Landau-niveaus.

Im experimentellen Teil dieser Arbeit konnte das MBE-Wachstum strukturell hochwertiger $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Schichten mit einem Mn-Gehalt x von 3 bis 8% auf unterschiedlichen GaAs-Oberflächen etabliert werden. Die strukturelle Qualität und der stöchiometrische Mn-Gehalt ließen sich mittels Röntgendiffraktometrie aus Halbwertsbreite und Position

des Röntgenpeaks ermitteln. Magnetfeldabhängige Photolumineszenzmessungen verifizierten die für die Spininjektion so bedeutende riesige Zeeman-Aufspaltung im Leitungsband der ZnMnSe-Proben und dienten zur Bestimmung des effektiven g-Faktors sowie des effektiven und strukturellen Mn-Gehalts. Diese Methode ermöglichte es, den Mn-Gehalt gerade der dickeren, bereits relaxierten ZnMnSe-Kontaktschichten alternativ zur Röntgendiffraktometrie zu bestimmen.

Mit Chlor dotierte, n-leitende ZnMnSe-Schichten konnten mit einem neu konstruierten Magnetotransportmessplatz bei den Temperaturen des flüssigen Heliums vermessen werden. Der Magnetowiderstand zeigte dabei den auch für andere verdünnte magnetische Halbleiter typischen Verlauf [Sha86]. Die Herstellung verlässlicher ohmscher Kontakte wurde erst durch Einführung einer Randdotierung erreicht. Allerdings fällt die Qualität der am Institut prozessierten, planaren Kontakte gegenüber einer in einer Mehrkammer-MBE möglichen *in-situ* Metallisierung stark ab.

Nachdem mit n-ZnMnSe-Schichten, die auf herkömmlichen GaAs/AlGaAs-MDSI-Heterostrukturen gewachsen wurden, kein ohmscher Kontakt zum 2DEG erzielt werden konnte, wurde mit Hilfe von Bandstruktursimulationen ein invertiertes Schichtsystem entwickelt, das interne Potentialbarrieren weitgehend vermeidet. Optimiertes Wachstum für den Bereich des invertierten Übergangs führte zu einer deutlich erhöhten Elektronenmobilität im 2DEG.

Um Barrieren am ZnMnSe-GaAs-Heteroübergang zu vermeiden, orientierten sich Strukturdesign und Epitaxie nach den Gesichtspunkten des *band offset engineering* [Fra96]. Einerseits wurde eine an das Leitungsband von ZnMnSe angegliche GaAs/AlGaAs-Injektorstruktur mit geeigneten Werten für Al-Gehalt und Dotierung entworfen. Darüber hinaus wurde das II-VI-Wachstum auf As-terminierten III-V-Oberflächen vorangetrieben. Zu diesem Zweck wurden die GaAs/AlGaAs-Heterostrukturen nach dem Wachstum mit einer As-Passivierung (As-Cap) versehen, die in der II-VI-Epitaxiekammer unmittelbar vor dem Wachstumsstart thermisch entfernt wurde. Mit dieser Verfahrensweise war es möglich, auch in einer separat stehenden II-VI-MBE-Anlage eine As-reiche, (2×4)-rekonstruierte Substratoberfläche zu erhalten.

Durch das Wachstum einer n-leitenden ZnMnSe-Schicht auf einer invertierten Heterostruktur mit einer (2×4)-rekonstruierten Oberfläche war es in ersten Experimenten möglich, einen ohmschen Kontakt zu dem darunter liegenden zweidimensionalen Elektronengas herzustellen. Ein wichtiges Zwischenziel war somit erreicht: Erstmals ließen sich Quanten-Hall-Effekt und Shubnikov-de Haas-Oszillationen an einem 2DEG mit ZnMnSe-Kontakten beobachten. Die Analyse der Transportmessungen erlaubt es jedoch nicht, auf eine erfolgreiche Spininjektion zu schließen. Dies ist folgendermaßen zu erklären: Zum einen erlaubt der zu große Kontaktabstand eine vollständige Spin-

equilibrierung zwischen den Kontakten [Mül92]. Zum anderen trägt eine sehr hohe Dotierung der obersten Injektorschicht im Übermaß zur Spinstreuung bei [Kik99]. Eine Spinstreuung durch Kristalldefekte an der ZnMnSe/GaAs-Grenzfläche muss ebenfalls berücksichtigt werden [Str02].

Auf Grundlage der gewonnenen Erkenntnisse wurde eine Mikrostruktur mit minimalen Kontaktabständen von $30\text{ }\mu\text{m}$ entworfen sowie die zur Lithographie benötigten nass- und trockenchemischen Ätzverfahren eingeführt. Es wurde eine abgewandelte Injektorstruktur mit für den Spintransport geeigneteren Dotierkonzentrationen entwickelt. Um die Qualität der Heterogrenzfläche zu verbessern, wurden in Zusammenarbeit mit dem physikalischen Institut der Universität Würzburg Zn(BeMn)Se-Schichten auf invertierten 2DEG-Substraten in einem Multikammer-MBE-System hergestellt. Die GaAs-Oberfläche der Substrate ließ sich dort in der III-V-Wachstumschamber genau präparieren und sogleich in-situ in die II-VI-Wachstumschamber transferieren. Eine an das UHV-Gesamtsystem angeschlossene Metallisierungschamber diente zur Herstellung qualitativ hochwertiger ohmscher Kontakte zu den Zn(BeMn)Se-Schichten.

Obwohl die II-VI-Schichten sehr gute elektrische und magnetische Eigenschaften aufwiesen, konnte an diesen Schichtsystemen kein Ladungstransport aus den Zn(BeMn)Se-Kontakten in das darunter liegende 2DEG erreicht werden. Eine eigens angefertigte Vergleichsstruktur mit AlGaAs-Kontakten zeigte sehr wohl die erwarteten Transporteigenschaften. Als Ursache der Fehlfunktion wird daher der Zn(BeMn)Se/Ga(Al)As(001)-Heteroübergang angesehen. Die in der vorliegenden (001)-Orientierung heterovalente Grenzfläche zeigt je nach chemischer Zusammensetzung und vorherrschenden Bindungsverhältnissen eine starke Variation des Leitungs- bzw. Valenzbandoffsets, der Polarität und der lokalen Zustandsdichte. Im Experiment wurde ein Zn-reicher Anwachsprozess auf einer As-terminierten GaAs-Oberfläche gewählt, der zu Lagenwachstum mit einer reduzierten Versetzungsdichte und einem geringen Leitungsbandoffset zwischen ZnSe und GaAs führt. Überalterte und schadhafte As-Passivierungsschichten, eine zu hohe As-Bedeckung sowie eine nicht vorgesehene Se-Exposition der Ga(Al)As-Oberflächen schufen allerdings Bedingungen, die das Auftreten akzeptorartiger Zustände an der Grenzfläche begünstigten. Die daraus resultierende Verarmungszone für Elektronen konnte in Transportexperimenten nicht überwunden werden.

Alternativ bietet sich deshalb das Wachstum auf der unpolaren GaAs(110)-Oberfläche an. Die aufwändige Präparation der Oberfläche lässt sich umgehen, wenn man die Technik des Überwachsens der Spaltfläche auf bereits etablierte, hochmobile GaAs/AlGaAs(001)-2DEG Proben anwendet. In ersten Experimenten wurde n-dotiertes ZnMnSe erfolgreich auf *ex-situ* präparierte und mit Wasserstoffplasma gereinigte GaAs(110)-Spaltflächen gewachsen. Die Transporteigenschaften sind mit denen der ZnMnSe(001)-Proben vergleichbar.

Die im Rahmen dieser Arbeit erzielten Ergebnisse liefern einen Beitrag zur Bewältigung der Herausforderung, die Injektion eines spinpolarisierten Stroms in ein 2DEG auf rein elektrischem Wege zu detektieren. Es wird ein neuartiges Konzept vorgestellt, um den Nachweis der Spininjektion auf der Grundlage der den niederdimensionalen Systemen eigenen Quanteneffekte zu erbringen. Im experimentellen Teil der Arbeit wurde bereits ein bedeutender Meilenstein erreicht: Erstmals konnte an einer mit semimagnetischen ZnMnSe-Kontakten versehenen GaAs/AlGaAs-Heterostruktur Quantentransport gemessen werden. In weiterführenden Experimenten sollten nun die geeigneten technischen Methoden geschaffen und experimentellen Verfahren entwickelt werden, um eine präzise Kontrolle über die Zusammensetzung der polaren Grenzfläche am ZnMnSe/GaAs(001)-Heteroübergang zu erlangen und spinstreuende Potentialbarrieren zu vermeiden. Folgende Schritte würden dabei direkt an die bereits erzielten Ergebnisse anknüpfen:

- Eine II-VI-MBE-Anlage mit verbesserten Vakuumbedingungen und einer ventilgesteuerten Se-Cracker-Zelle würde es erlauben, das Verhältnis der Materialflüsse genauer zu kontrollieren und eine Kontamination der Substratoberfläche mit unerwünschten Adsorbaten zu vermeiden.
- Diese Wachstumskammer sollte Probenhalter verwenden, die zur III-V-Epitaxieanlage kompatibel sind. Darüber hinaus sollte eine UHV-Transfermöglichkeit zwischen beiden MBE-Systemen bestehen. Auf diese Weise könnten die mit hohem Aufwand und vielen Fehlerquellen behafteten Arbeitsschritte zur Oberflächenpassivierung der III-V-Epischichten entfallen. Die dem II-VI-Wachstum vorausgehende Substratvorbehandlung könnte dadurch vereinfacht werden und würde sich durch eine höhere Reproduzierbarkeit auszeichnen.
- Auf der Grundlage der experimentellen Handlungsfreiheit, die solche apparativen Verbesserungen erwarten lassen, könnten die bisher gewonnenen Ergebnisse weiter konkretisiert werden. Eine intensive Forschungsarbeit ist zum einen erforderlich, um die richtige Zusammensetzung der III-V-Oberfläche und das geeignete Verhältnis von Zn- und Se-Angebot während des Anwachsprozesses von ZnMnSe zu finden. Die reproduzierbare Präparation der Heterogrenzfläche würde es zum anderen ermöglichen, optimale Werte für Dotierung, Aluminiumgehalt und Schichtdicke sowohl des ZnMnSe-Spinausrichters als auch der GaAs/AlGaAs-Injektorstruktur zu erarbeiten.
- Ist die elektrische Funktion der ZnMnSe/Ga(Al)As-Hybridstrukturen erreicht, könnten die bereits erarbeiteten Lösungen zur Miniaturisierung der Kontaktgeometrie ihren Nutzen entfalten.

Einen alternativen Ansatz verfolgt die Epitaxie der ZnMnSe-Spinausrichter auf die unpolare (110)-Oberfläche der GaAs/AlGaAs-Heterostrukturen. Auf diesem Gebiet konnten durch erfolgreiche Präparation n-leitender ZnMnSe-Schichten auf GaAs(110)-Spaltflächen bereits richtungsweisende Vorarbeiten geleistet werden. Die Kombination aus vollständig spinpolarisierten ZnMnSe-Spinausrichtern und GaAs/AlGaAs-Heterostrukturen mit höchsten Elektronenbeweglichkeiten ist generell ein sehr geeignetes Modellsystem, um auch in Zukunft die grundlegenden Fragen der Spininjektion zu erforschen.

Liste der verwendeten Abkürzungen

BEP	Druckgemessener Materialfluss (engl.: B eam E quivalent P ressure)
BMP	Gebundene magnetische Polaronen (engl.: B ound M agnetic P olarons)
CCD	C harge C oupled D evice
DMS	Verdünnte magnetische Halbleiter (engl.: D iluted M agnetic S emiconductors)
FWHM	Halbwertsbreite (engl.: F ull W idth at H alf M aximum)
GMR	Riesenmagnetowiderstand (engl.: G iant M agnetoresistance)
LED	Leuchtdiode (engl.: L ight E mitting D iode)
MBE	Molekularstrahlepitaxie (engl.: M olecular B eam E pitaxy)
MOSFET	M etal O xide S emiconductor F ield E ffect T ransistor
MOVPE	Metallorganische Gasphasenepitaxie (engl.: M etal O rganic C hemical V apor P hase E pitaxy)
MRAM	Magnetischer Arbeitsspeicher (engl.: M agnetoresistive R andom A ccess M emory)
OFHC	O xxygen F ree H igh C onductivity
PID	P roportional- I ntegral- D ifferential
PL	P hotolumineszenz
PPC	Persistente Photoleitfähigkeit (engl.: P ersistent P hoto C onductivity)
QHE	Q uanten- H all- E ffekt
QMS	Quadrupol-Massenspektrometer (engl.: Q uadrupole M ass S pectrometer)

RHEED	Reflexionsbeugung hochenergetischer Elektronen (engl.: R eflection H igh E nergy E lectron D iffraction)
RIE	R eactive I on E tching
TEM	T ransmissionselektronen m ikroskopie
TMR	Tunnelmagnetowiderstand (engl.: T unneling M agnetoresistance)
VTI	V ariable T emperature I nsert
XRD	Röntgendiffraktometrie (engl.: X - R ay D iffraction)

Abbildungsverzeichnis

2.1	Einheitszelle der Zinkblendestruktur	7
2.2	Versetzungstypen	11
2.3	Bandstruktur von ZnSe	12
2.4	Kompositionsabhängige Bandlücke von $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$	13
2.5	DX-Zentren in $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$	17
2.6	Rekonstruktionen der ZnSe(001)-Oberfläche	20
2.7	Rekonstruktionen der GaAs(001)-Oberfläche	22
3.1	Struktureller Aufbau und Bandverlauf eines 2DEG	27
3.2	Dispersion und Zustandsdichte im 2DEG	30
3.3	Landauquantisierung eines 2DEG im Magnetfeld	35
3.4	Streuverbreiterung der Landauniveaus	37
3.5	Landauniveaus unter Einfluss des Randpotentials	39
3.6	Ballistischer Leiter bei angelegter Potentialdifferenz	40
3.7	Hallbargeometrie	43
3.8	Gate-Elektrode über Hallbar	45
4.1	Mn^{++} - Mn^{++} -Superaustausch	52
4.2	Spinaufspaltung in DMS	55
4.3	Optische Auswahlregeln im Magnetfeld	57
4.4	Umverteilung der Elektronen im Magnetfeld	60
4.5	Konzept eines Spinausrichters	63

5.1	Spinpolarisierte Kontakte im Landauer-Büttiker-Formalismus	67
5.2	Hall- und Längswiderstand bei Spininjektion	69
5.3	Hall- und Längswiderstand bei Spinequilibration	72
5.4	Hallbargeometrie	75
5.5	Vergleich der MDSI- mit der invertierten 2DEG-Struktur	79
5.6	Oberflächennahes invertiertes 2DEG	81
5.7	Tiefliegendes invertiertes 2DEG mit Injektorstruktur	85
6.1	Oberflächenprozesse beim MBE-Wachstum	91
6.2	Wachstumsmodi in der Epitaxie	92
6.3	Schema der MBE-Anlage zur II-VI-Epitaxie	94
6.4	Schemaskizze des RHEED-Systems	98
6.5	Ewald-Konstruktion bei Transmissionsbeugung	99
6.6	Ewald-Konstruktion bei Reflexionsbeugung	100
6.7	RHEED-Beugungsbilder in Transmissions- und Reflexionsbeugung . . .	101
6.8	Schematischer Aufbau des Röntgendiffraktometers	104
6.9	Aufbauschema des Magnetotransportmessplatzes	107
6.10	Kontaktgeometrie zur Standardcharakterisierung	108
7.1	RHEED-Beugungsbild während der Plasma-Desoxidation	114
7.2	RHEED-Beugungsbild beim Entfernen des As-Cap	116
7.3	RHEED-Analyse des Anwachsprozesses nach H-Plasma-Desoxidation .	119
7.4	RHEED-Analyse des Anwachsprozesses nach Entfernen des As-Cap . .	120
7.5	RHEED-Intensitätssoszillationen	121
7.6	RHEED-Spiegelreflexverbreiterung	123
7.7	Messung und Simulation von Rockingkurven	125
7.8	Rockingkurven ausgewählter $\text{Zn}_{0,96}\text{Mn}_{0,04}\text{Se}$ -Proben	127
7.9	Substratabhängigkeit der Röntgenhalbwertsbreite	128
7.10	Abhängigkeit des Mn-Gehalts von der Mn-Ofentemperatur	129

7.11	Magnetfeldabhängige Photolumineszenzmessung	131
7.12	Das donatorgebundene Exziton im Magnetfeld	132
7.13	Abhängigkeit von S_{eff} und T_0 vom Mn-Gehalt in $Zn_{1-x}Mn_xSe$	134
7.14	Bestimmung des Mn-Gehalts aus der PL-Energie des freien Exzitons . .	135
7.15	Leitungsbandaufspaltung und Spinpolarisation nach PL	137
7.16	Dotiereichung für $Zn_{1-x}Mn_xSe$	139
7.17	Ausgewählte I-V-Kennlinien an Hallbar-Geometrie	144
7.18	Magnetotransportmessungen in van der Pauw-Geometrie	146
7.19	Magnetotransportmessungen in Hallbar-Geometrie	147
7.20	Magnetowiderstand von $Zn_{0,93}Mn_{0,07}Se$ bei verschiedenen Temperaturen	148
7.21	Magnetowiderstand von $Zn_{0,91}Be_{0,05}Mn_{0,04}Se$ bei verschiedenen Tempe- raturen	149
8.1	Probenschema und Schichtfolge einer Spininjektionsstruktur	154
8.2	Magnetotransportmessung an einer Spininjektionsstruktur	156
8.3	Schichtfolge eines tiefliegenden invertierten 2DEG	159
8.4	Magnetotransportmessung an einem tiefliegenden invertierten 2DEG . .	160
8.5	Elektrische Charakterisierung strukturierter Spininjektionsproben . . .	165
8.6	Quantentransport in einer strukturierten Spininjektionsprobe	166
8.7	Bandstruktur am gestörten n-ZnSe/n-GaAs-Heteroübergang	168
8.8	Schichtfolge einer nichtmagnetischen III-V-Vergleichsstruktur	171
8.9	Magnetotransportmessungen an einer nichtmagnetischen III-V- Vergleichsstruktur	172

Tabellenverzeichnis

2.1	Gitterparameter	9
2.2	Bandparameter	15
6.1	Verwendete Quellenmaterialien	95
6.2	Parameter für die Röntgensimulation bei $T = 20^{\circ}C$	105
8.1	Schichtaufbau der Spininjektionsproben	162

Literaturverzeichnis

- [Aba95] H. Abad, B.T. Jonker, W.Y. Yu, S. Stolz, A. Petrou, Appl. Phys. Lett. **66**, 2412 (1995).
- [Ada94] S. Adachi: *GaAs and Related Materials*, World Scientific, Singapur (1994).
- [Alp90] B.W. Alphenaar, P.L. McEuen, R.G. Wheeler, R.N. Sacks, Phys. Rev. Lett. **64**, 677 (1990).
- [Alt88] B.L. Al'tshuler, P.A. Lee, Phys. Today **41**, 36 (1988).
- [And05] T. Andrearczyk, J. Jaroszyński, G. Grabecki, T. Dietl, T. Fukumura, M. Kawasaki, Phys. Rev. B **72**, 121309(R) (2005).
- [Ash76] N.W. Ashcroft, N.D. Mermin: *Solid State Physics*, Saunders College Publishing, USA (1976).
- [Bai88] N.N. Baibich, J.M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friederich, J. Chazelas, Phys. Rev. Lett. **61**, 2472 (1988).
- [Bar49] J. Bardeen, W.H. Brattain, Phys. Rev. **75**, 1208 (1949).
- [Bee91] C.W.J. Beenakker, H. van Houten: *Quantum Transport in Semiconductor Nanostructures*, in H. Ehrenreich, D. Turnbull: *Solid State Physics: Advances in Research and Application*, Band 44, Academic Press, (1991).
- [Ber91] D. Bertho, D. Boiron, A. Simon, C. Jouanin, C. Priester, Phys. Rev. B **44**, 6118 (1991).
- [Bie90] D.K. Biegelsen, R.D. Bringans, J.E. Northrup, L.E. Swartz, Phys. Rev. B **41**, 5701 (1990).

- [Bin89] G. Binasch, P. Grünberg, F. Saurenbach, W. Zinn, Phys. Rev. B **39**, 4828 (1989).
- [Blo96] C.J. Blomfield, I.M. Dharmadasa, K.A. Prior, B.C. Cavenett, J. Cryst. Growth **159**, 727 (1996).
- [Blü98] S. Blümel: *MBE/CBE und RHEED-Charakterisierung von Quanten- und Halbleiterstrukturen*, Diplomarbeit, Universität Regensburg (1998).
- [Bra93] G. Bratina, L. Vanzetti, R. Nicolini, L. Sorba, X. Yu, A. Franciosi, G. Mula, A. Mura, Physica B **185**, 557 (1993).
- [Bra96a] G. Bratina, T. Ozzello, A. Franciosi, J. Vac. Sci. Technol. A **14**, 3135 (1996).
- [Bra96b] G. Bratina, T. Ozzello, A. Franciosi, J. Vac. Sci. Technol. B **14**, 2967 (1996).
- [Bue88] M. Büttiker, Phys. Rev. B **38**, 9375 (1988).
- [Byc84] Y.A. Bychkov, E.I. Rashba, J. Phys. C **17**, 6039 (1984).
- [Byl86] R.B. Bylsma, W.M. Becker, J. Kossut, U. Debska, D. Yoder-Short, Phys. Rev. B **33**, 8207 (1986).
- [Cai98] C. Cai, M.I. Nathan, S. Rubini, L. Sorba, B. Mueller, E. Pelucchi, A. Franciosi, Appl. Phys. Lett. **73**, 2033 (1998).
- [Cha89] D.J. Chadi, K.J. Chang, Phys. Rev. B **39**, 10063 (1989).
- [Cha94] D.J. Chadi, Phys. Rev. Lett. **72**, 534 (1994).
- [Che94] W. Chen, A. Kahn, P. Soukiassian, P.S. Mangat, J. Gaines, C. Ponzoni, D. Olego, Phys. Rev. B **49**, 10790 (1994).
- [Chr88] N.E. Christensen, Phys. Rev. B **37**, 4528 (1988).
- [Dav98] J. Davies: *The physics of low-dimensional semiconductors*, Cambridge University Press, Cambridge (1998).
- [Dat90] S. Datta, B. Das, Appl. Phys. Lett. **56**, 665 (1990).

- [Dat97] S. Datta: *Electronic Transport in Mesoscopic Systems*, Cambridge University Press, Cambridge (1997).
- [Die91] T. Dietl: *Transport Properties of Diluted Magnetic Semiconductors*, in M. Jain: *Diluted Magnetic Semiconductors*, World Scientific, Singapur (1991).
- [Din78] R. Dingle, H.L. Störmer, A.C. Gossard, W. Wiegmann, Appl. Phys. Lett. **33**, 665 (1978).
- [Dre55] G. Dresselhaus, Phys. Rev. **100**, 580 (1955).
- [Dzh02] R.I. Dzhioev, K.V. Kavokin, V.L. Korenev, M.V. Lazarev, B.Ya. Meltser, M.N. Stepanova, B.P. Zakharchenya, D. Gammon, D.S. Katzer, Phys. Rev. B **66**, 245204 (2002).
- [Fab07] J. Fabian: Persönliche Mitteilungen, (2007).
- [Fan96] Y. Fan, I. Karpov, G. Bratina, L. Sorba, W. Gladfelter, A. Franciosi, J. Vac. Sci. Technol. B **14**, 623 (1996).
- [Far95] R.F.C. Farrow: *Molecular Beam Epitaxy: Applications to Key Materials*, Noyes Publications, Park Ridge - USA (1995).
- [Far05] H.H. Farrell, R.A. LaViolette, J. Vac. Sci. Technol. B **23**, 406 (2005).
- [Fie99] R. Fiederling, G. Reuscher, W. Ossau, G. Schmidt, A. Waag, L.W. Mollenkamp, Nature **402**, 787 (1999).
- [Fie04] R. Fiederling: *Elektrische Spininjektion in GaAs LEDs*, Dissertation, Universität Würzburg (2004).
- [Fra49] F.C. Frank, J.H. van der Merwe, Proc. Roy. Soc. **198**, 216 (1949).
- [Fra96] A. Franciosi, C.G. Van de Walle, Surf. Sci. Rep. **25**, 1 (1996).
- [Fuk79] H. Fukuyama, K. Yosida, J. Phys. Soc. Jpn. **46**, 102 (1979).
- [Fur88a] J.K. Furdyna, J. Appl. Phys. **64**, R29 (1988).
- [Gaj79] J.A. Gaj, R. Planel, G. Fishman, Solid State Comm. **29**, 435 (1979).

- [Gig07] S. Giglberger, L.E. Golub, V.V. Bel'kov, S.N. Danilov, D. Schuh, C. Gerl, F. Rohlfing, J. Stahl, W. Wegscheider, D. Weiss, W. Prettl, S.D. Ganichev, Phys. Rev. B **75**, 035327 (2007).
- [Gra04] P. Grabs: Persönliche Mitteilungen, (2004).
- [Guh90] S. Guha, A. Madhukar and K.C. Rajkumar, Appl. Phys. Lett. **57**, 2110 (1990).
- [Hae98] D. Hägele, M. Oestreich, W.W Rühle, N. Nestle, K. Eberl, Appl. Phys. Lett. **73**, 1580 (1998).
- [Hak96] H. Haken, H.C. Wolf: *Atom- und Quantenphysik*, Springer-Verlag, Berlin u.a., 6. Auflage (1996).
- [Hal68] L. Halbo, R.J. Sladek, Phys. Rev. **173**, 794 (1968).
- [Ham99] P.R. Hammar, B.R. Bennett, M.J. Yang, M. Johnson, Phys. Rev. Lett. **83**, 203 (1999).
- [Han97] J. Han, R.L. Gunshor: *MBE Growth and Electrical Properties of Wide Bandgap ZnSe-based II-VI Semiconductors*, in R.L. Gunshor, A.V. Nur-mikko: *II-VI-Blue/Green Light Emitters: Device Physics and Epitaxial Growth*, Semiconductor and Semimetals, Band 44, Academic Press, San Diego u.a. (1997).
- [Han02] A.T. Hanbicki, B.T. Jonker, G. Itskos, G. Kioseoglou, A. Petrou, Appl. Phys. Lett. **80**, 1240 (1999).
- [Has95] T. Hashizume, Q.K. Xue, A. Ichimiya, T. Sakurai, Phys. Rev. B **51**, 4200 (1995).
- [Hau93] R.J. Haug, Semicond. Sci. Technol. **8**, 131 (1993).
- [Hei83] D. Heiman, P.A. Wolff, J. Warnock, Phys. Rev. B **27**, 4848 (1983).
- [Hei86] D. Heiman, P. Becla, R. Kershaw, D. Ridgley, K. Dwight, A. Wold, R.R. Galazka, Phys. Rev. B **34**, 3961 (1986).
- [Hel98] R. Held, T. Vancura, T. Heinzl, K. Ensslin, M. Holland, W. Wegscheider, Appl. Phys. Lett. **73**, 262 (1998).

- [Her89] M. A. Herman, H. Sitter: *Molecular Beam Epitaxy*, Springer-Verlag, Berlin u.a. (1989).
- [Her04] T. Herrle, T. Leeb, G. Schollerer, W. Wegscheider, Phys. Rev. B **70**, 155325 (2004).
- [Hu91] S.M. Hu, J. Appl. Phys. **69**, 7901 (1991).
- [Iba99] H. Ibach, H. Lüth: *Festkörperphysik*, Springer-Verlag, Berlin u.a. (1999).
- [Jon00] B.T. Jonker, Y.D. Park, B.R. Bennet, H.D. Cheong, G. Kioseoglou, A. Petrou, Phys. Rev. B **62**, 8180 (2000).
- [Jul75] M. Jullière, Phys. Lett. **54A**, 225 (1975).
- [Kal96] S. Kalisetty, M. Gokhale, K. Bao, J.E. Ayers, F.C. Jain, Appl. Phys. Lett. **68**, 1693 (1996).
- [Kas91] L. Kassel, J.W. Garland, P.M. Raccah, M.A. Haase, H. Cheng, Semicond. Sci. Technol. **6**, A146 (1991).
- [Kas93] M. Kastner: *Hochauflösende Röntgendiffraktometrie an III-V/II-VI-Heterostrukturen*, Diplomarbeit, Universität Regensburg (1993).
- [Kas97] M. Kastner: *Strukturcharakterisierung mit Röntgenbeugung, Wachstum und in-situ Oberflächenuntersuchungen von II-VI-Halbleiter-Heterostrukturen*, Dissertation, Universität Regensburg (1997).
- [Kha92] A.V. Khaetskii, Phys. Rev. B **45**, 13777 (1992).
- [Kik98] J.M. Kikkawa, D.D. Awschalom, Phys. Rev. Lett. **80**, 4313 (1998).
- [Kik99] J.M. Kikkawa, D.D. Awschalom, Nature **397**, 139 (1999).
- [Kim97] C.C. Kim, Y.P. Chen, S. Sivananthan, S.-C.Y. Tsen, D.J. Smith, J. Cryst. Growth **175/176**, 613 (1997).
- [Kit99] C. Kittel: *Einführung in die Festkörperphysik*, Oldenbourg-Verlag, München (1999).
- [Kle94] A. Kley, J. Neugebauer, Phys. Rev. B **50**, 8616 (1994).
- [Kli80] K. von Klitzing, G. Dorda, M. Pepper, Phys. Rev. Lett. **45**, 494 (1980).

- [Koe99] B. König, U. Zehnder, D.R. Yakovlev, W. Ossau, T. Gerhard, M. Keim, A. Waag, G. Landwehr, Phys. Rev. B **60**, 2653 (1999).
- [Kol86] B. König, U. Zehnder, D.R. Yakovlev, W. Ossau, T. Gerhard, M. Keim, A. Waag, G. Landwehr, Phys. Rev. B **60**, 2653 (1999).
- [Kow82] S.P. Kowalczyk, E.A. Kraut, J.R. Waldrop, R.W. Grant, J. Vac. Sci. Technol. **21**, 482 (1982).
- [Kub95] M. Kuball, D.T. Wang, N. Esser, M. Cardona, J. Zegenhagen, B.O. Fimland, Phys. Rev. B **52**, 16337 (1995).
- [Kuo96] L. H. Kuo, K. Kimura, T. Yasuda, S. Miwa, C.G. Jin, K. Tanaka, T. Yao, Appl. Phys. Lett. **68**, 2413 (1996).
- [Kuo97] L.H. Kuo, K. Kimura, S. Miwa, T. Yasuda, A. Ohtake, T. Yao, Appl. Surf. Sci. **117/118**, 495 (1997).
- [Lan99] Landolt-Börnstein III 41, Springer-Verlag, Berlin u.a. (1999).
- [Lar88] B.E. Larson, K.C. Hass, H. Ehrenreich, A. E. Carlsson, Phys. Rev. B **37**, 4137 (1988).
- [Lay91] G. Le Lay, D. Mao, A. Kahn, Y. Hwu, G. Margaritondo, Phys. Rev. B **43**, 14301 (1991).
- [Leh05] F. Lehmann: *Prozessierung und elektrische Charakterisierung von ZnSe Heterostrukturen in verschiedenen Messgeometrien zum eindeutigen Nachweis der elektrischen Spininjektion*, Dissertation, Universität Würzburg (2005).
- [Lev99] M. Levinshtein, S. Rumyantsev, M. Shur, *Handbook Series On Semiconductor Parameters, Volume 2*, World Scientific, Singapur (1999).
- [Lee85] P.A. Lee, T.V. Ramakrishnan, Rev. Mod. Phys. **57**, 287 (1985).
- [LiG90] D.Li, J.M. Gonsalves, N. Otsuka, J. Qiu, M. Kobayashi, R.L. Gunshor, Appl. Phys. Lett. **57**, 449 (1990).
- [LiP94] D. Li, M.D. Pashley, Phys. Rev. B **49**, 13643 (1994).
- [Mad83] A. Madhukar, Surf. Sci. **132**, 344 (1983).

- [Mal89] M.C. Maliepaard, M. Pepper, R. Newbury, J.E.F. Frost, D.C. Peacock, D.A. Ritchie, G.A.C. Jones, G. Hill, Phys. Rev. B **39**, 1430 (1989).
- [Mar90] T. Martin, S. Feng, Phys. Rev. Lett. **64**, 1971 (1990).
- [Mat74] J.W. Matthews und A.E. Blakeslee, J. Cryst. Growth **27**, 118 (1974).
- [Miw97] S. Miwa, L.H. Kuo, K. Kimura, A. Ohtake, T. Yasuda, C.G. Jin, T. Yao, Appl. Phys. Lett. **71**, 1192 (1997).
- [Miy92] T. Miyajima, H. Okuyama, K. Akimoto, Jpn. J. Appl. Phys. **31**, L1743 (1992).
- [Mon99] F.G. Monzon, H.X. Tang, M.L. Roukes, Phys. Rev. Lett. **84**, 5022 (1999).
- [Moo75] G.E. Moore, IEDM Tech. Dig. **21**, 11 (1975).
- [Moo95] J.S. Moodera, L.R. Kinder, T.M. Wong, R. Meservey, Phys. Rev. Lett. **74**, 3273 (1995).
- [Mot56] N.F. Mott, Can. J. Phys. **34**, 1356 (1956).
- [Mot61] N.F. Mott, Phil. Mag. **6**, 287 (1961).
- [Mül90] G. Müller, D. Weiss, S. Koch, K. von Klitzing, H. Nickel, W. Schlapp, R. Lösch, Phys. Rev. B **42**, 7633 (1990).
- [Mül92] G. Müller, D. Weiss, A.V. Khaetskii, K. von Klitzing, S. Koch, H. Nickel, W. Schlapp, R. Lösch, Phys. Rev. B **45**, 3932 (1992).
- [Nex04] <http://www.wsi.tum.de/nextnano3> und <http://www.nextnano.de> (2004).
- [Nic94] R. Nicolini, L. Vanzetti, G. Mula, G. Bratina, L. Sorba, A. Franciosi, M. Peressi, S. Baroni, R. Resta, A. Baldereschi, J.E. Angelo, W.W. Gerberich, Phys. Rev. Lett. **72**, 294 (1994).
- [Oes99] M. Oestreich, J. Hübner, D. Hägele, P.J. Klar, W. Heimbrodt, W.W. Rühle, D.E. Ashenford, B. Lunn, Appl. Phys. Lett. **74**, 1251 (1999).
- [Oht98] A. Ohtake, S. Miwa, L.H. Kuo, T. Yasuda, K. Kimura, C. Jin, T. Yao, J. Cryst. Growth **184/185**, 163 (1997).

- [Oht02] A. Ohtake, M. Ozeki, T. Yasuda, T. Hanada, Phys. Rev. B **65**, 165315 (2002).
- [Old64] W.G. Oldham, A.G. Milnes, Solid State Electron. **7**, 153 (1964).
- [Par99] M.R. Park, W.A. Anderson, M. Jeon, H. Luo, Solid State Electron. **43**, 113 (1999).
- [Pas89] M.D. Pashley, Phys. Rev. B **40**, 10481 (1989).
- [Phi73] J.C. Phillips: *Bonds and bands in semiconductors*, Academic Press, New York (1973).
- [Pre98] H. Preis, T. Frey, T. Reisinger und W. Gebhardt, J. Cryst. Growth **184/185**, 85 (1998).
- [Pre00] H. Preis: *Selbstorganisierte Inselbildung in CdSe/ZnSe (001)*, Dissertation, Universität Regensburg (2000).
- [Pre01] H. Preis: Persönliche Mitteilungen, (2001).
- [Pri98] G.A. Prinz, Science **282**, 1660 (1998).
- [Rei96] Th. Reisinger: *II-VI Halbleiter-Heterostrukturen: Wachstum und Charakterisierung*, Dissertation, Universität Regensburg (1996).
- [Rei05] M. Reinwald: *Herstellung und Charakterisierung von ferromagnetischem GaMnAs auf der GaAs (001)- und (311)A-Oberfläche*, Dissertation, Universität Regensburg (2005).
- [Rom90] D. Romero, S. Liu, H.D. Drew, K. Ploog, Phys. Rev. B **42**, 3179 (1990).
- [Ros96] A. Rosenauer: *TEM-Untersuchungen von epitaktischen Grenzflächen in II-VI-/III-V-Heterostrukturen*, Dissertation, Universität Regensburg (1996).
- [Saw86] M. Sawicki, T. Dietl, J. Kossut, J. Igalsen, T. Wojtowicz, W. Plesiewicz, Phys. Rev. Lett. **56**, 508 (1986).
- [Sch89] E.F. Schubert, L. Pfeiffer, K.W. West, A. Izabelle, Appl. Phys. Lett. **54**, 1350 (1989).

- [Sch00] G. Schmidt, D. Ferrand, L.W. Molenkamp, A.T. Filip, B.J. van Wees, Phys. Rev. B **62**, R4790 (2000).
- [Sch01] G. Schmidt, G. Richter, P. Grabs, C. Gould, D. Ferrand, L.W. Molenkamp, Phys. Rev. Lett. **87**, 227203 (2001).
- [Sch04] G. Schmidt, C. Gould, P. Grabs, A.M. Lunde, G. Richter, A. Slobodskyy, L.W. Molenkamp, Phys. Rev. Lett. **92**, 226602 (2004).
- [Ser83] J. Serre, A. Ghazali, Phys. Rev. B **28**, 4704 (1983).
- [Sha86] Y. Shapira, N.F. Oliveira, Jr., D.H. Ridgley, R. Kershaw, K. Dwight, A. Wold, Phys. Rev. B **34**, 4187 (1986).
- [Sha90] Y. Shapira, N.F. Oliveira, Jr., P. Becla, T.Q. Vu, Phys. Rev. B **41**, 5931 (1990).
- [Sha98] H. Shao, J. Gerschütz, S. Scholl, H. Schäfer, B. Jobst, D. Hommel, G. Landwehr, phys. stat. sol. (b) **206**, 575 (1998).
- [Sni90a] G.L. Snider, I.-H. Tan, E.L. Hu, J. Appl. Phys. **68**, 2849 (1990).
- [Sni90b] I.-H. Tan, G.L. Snider, L.D. Chang, E.L. Hu, J. Appl. Phys. **68**, 4071 (1990).
- [Sou98] R.J. Soulen Jr., J.M. Byers, M.S. Osofsky, B. Nadgorny, T. Ambrose, S.F. Cheng, P.R. Broussard, C.T. Tanaka, J. Nowak, J.S. Moodera, A. Barry, J.M.D. Coey, Science **282**, 85 (1998).
- [Spa86] J. Spałek, A. Lewicki, Z. Tarnawski, J.K. Furdyna, R.R. Galazka, Z. Obuszko, Phys. Rev. B **33**, 3407 (1986).
- [Str37] I.N. Stranski, L. Krastanow: *Zur Theorie der orientierten Ausscheidung von Ionenkristallen aufeinander* Monatshefte für Chemie, **71**, 351, Springer-Verlag, Wien (1937).
- [Str02] R.M Stroud, A.T. Hanbicki, Y.D. Park, G. Kioseoglou, A.G. Petukhov, B.T. Jonker, G. Itskos, A. Petrou, Phys. Rev. Lett. **89**, 166602 (2002).
- [Svo92] P. Svoboda, P. Středa, G. Nachtweih, A. Jaeger, M. Cukr, M. Láznička, Phys. Rev. B **45**, 8763 (1992).

- [Sze85] S.M. Sze: *Semiconductor Devices: Physics and Technology*, Wiley, New York u.a. (1985).
- [Tan05] M. Tanaka, J. Cryst. Growth **278**, 25 (2005).
- [Til07] A. Tilke, K. Schröder, C. Stapelmann, Physik Journal **6**, 35 (2007).
- [Twa83] A. Twardowski, T. Dietl, M. Demianiuk, Solid State Comm. **48**, 845 (1983).
- [Twa84] A. Twardowski, M. von Ortenberg, M. Demianiuk, R. Panthenet, Solid State Commun. **51**, 849 (1984).
- [Vaz94] M. Vaziri, Appl. Phys. Lett. **65**, 2568 (1994).
- [Veg21] L. Vegard, Zeitschrift für Physik **5**, 17 (1921).
- [Ven84] J.A. Venables, G.D.T. Spiller, M. Hanbücken, Rep. Prog. Phys. **47**, 399 (1984).
- [vdP58] L.J. van der Pauw, Philips Res. Rep. **13**, 1 (1958).
- [Vol26] M. Volmer, A. Weber, Z. Phys. Chem. **119**, 277 (1926).
- [Vos89] M. Vos, F. Xu, S.G. Anderson, J.H. Weaver, H. Cheng, Phys. Rev. B **39**, 10744 (1989).
- [vWe89] B.J. van Wees, E.M.M. Willems, C.J.P.M. Harmans, C.W.J. Beenakker, H. van Houten, J.G. Williamson, C.T. Foxon, J.J. Harris, Phys. Rev. Lett. **62**, 1181 (1989).
- [Wan92] Y.X. Wang, P.H. Holloway, Vacuum **43**, 1149 (1992).
- [Wes98] S.J. Weston, M. O'Neill, J.E. Nicholls, J. Miao, W.E. Hagston, T. Stirner, Phys. Rev. B **58**, 7040 (1998).
- [Wei92] D. Weiss: *Komensurabilitätseffekte in lateralen Übergittern*, Habilitationsschrift, Max-Planck-Institut für Festkörperforschung, Stuttgart (1992).
- [Wei06] D. Weiss, W. Wegscheider: *Halbleiterphysik*, Vorlesungsskript, Universität Regensburg (2006).

- [Win04] R. Winkler, M. Oestreich, Physik Journal **3**, 39 (2004).
- [Woj83] T. Wojtowicz, A. Mycielski, Physica B **117/118**, 476 (1983).
- [Woj89] T. Wojtowicz, M. Sawicki, J. Jaroszyński, T. Dietl, W. Plesiewicz, Physica B **155**, 357 (1989).
- [Woo64] E.A. Wood, J. Appl. Phys. **35**, 1306 (1964).
- [Yan02] Y. Yang, B. VanMil, L. Muratov, B.R. Cooper, T.H. Myers, J.M. Wills, Phys. Rev. B **66**, 16522 (2002).
- [Xue95] Q. Xue, T. Hashizume, J.M. Zhou, T. Sakata, T. Ohno, T. Sakurai, Phys. Rev. Lett. **74**, 3177 (1995).
- [Zhe92] L. Zheng, J. Appl. Phys. **71**, 3566 (1992).
- [Zhu89] Z. Zhu, T. Nomura, M. Miyao, M. Hagino, J. Cryst. Growth **96**, 513 (1989).

Danksagung

Im Folgenden möchte ich an die vielen Personen erinnern, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben. Mein besonderer Dank gilt:

- Prof. Dr. Werner Wegscheider für die Vergabe dieses interessanten, vielseitigen und herausfordernden Themas sowie für fortwährende Motivation und wertvolle Hinweise im Laboralltag. Nicht zuletzt möchte ich mich für sein persönliches Engagement bei der Optimierung und dem Wachstum vieler GaAs/AlGaAs-Heterostrukturen und bei der rekordverdächtigen, gewissenhaften Durchsicht meiner Arbeit bedanken.
- Max Bichler, Dr. Dieter Schuh, Dr. Matthias Reinwald, Dr. Hans-Peter Tranitz und Christian Gerl, die mich mit zahlreichen GaAs/AlGaAs-Heterostrukturen aus den III-V-MBE-Anlagen in Regensburg und am Walter-Schottky-Institut in Garching versorgten.
- Dr. Herbert Preis für unzählige wertvolle Tips zur Bändigung der II-VI-Epitaxiekammer sowie Guido Schollerer und Dr. Thomas Herrle, die in ihren Diplomarbeiten entscheidend zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.
- Dr. Robert Schuster, Dr. Andreas Able, Dr. Nikolaus Gmeinwieser und Klaus Wagenhuber, die die Infrastruktur des Optiklabors aufgebaut und mir oft wertvollen Platz auf den überfüllten optischen Tischen überlassen haben.
- Dr. Thomas Feil für die fruchtbare Zusammenarbeit im Magnetlabor und viele Diskussionen über unterschiedlichste Fragestellungen.
- Prof. Dr. Dieter Weiss für die Möglichkeit, den Reinraum und – besonders während der Aufbauphase unseres Lehrstuhls – das Kryolabor nutzen zu dürfen.
- Matthias Döppe für seine tatkräftige Unterstützung in der lithographischen Probenprozessierung, Wilfried Meindl für die Nutzung der Metallepitaxieanlage und vielen anderen Kollegen im Reinraum für ihre sachkundige Beratung und Einführung in die Gerätschaften und ihre Hinweise auf aktuelle Rezepte.

- Dr. Christian Mitzkus für die Einweisung am Helium-Mischkryostaten.
- Prof. Dr. Laurens Molenkamp, Dr. Georg Schmidt, Dr. Peter Grabs und Dr. Roland Fiederling für viele Anregungen auf dem Gebiet der Spinelektronik und dafür, den III-V/II-VI-MBE-Cluster nutzen zu dürfen. Besonders möchte ich Dr. Peter Grabs für seinen unermüdlichen Einsatz bei der Epitaxie der Zn(BeMn)Se-Kontaktschichten und Volkmar Hock für die Abscheidung der Al/Ti/Au-Metallisierung und seine wertvollen Tips zur selektiven nasschemischen Prozessierung danken.
- Martin Beer und Olga Ganitcheva für die zeitraubende TEM-Präparation einiger meiner Proben, auch wenn die Ergebnisse keinen Eingang in die Arbeit finden konnten.
- Allen Kollegen am Lehrstuhl für zahlreiche Hilfestellungen und die gute und aufmunternde Atmosphäre, die ein angenehmes und konstruktives Arbeiten ermöglichte. Meinen Bürokollegen Guido Schollerer, Elisabeth Reinwald, Dr. Thomas Herrle und Stefan Knott möchte ich an dieser Stelle besonders erwähnen und für die geduldige Beantwortung vieler Fragen danken.
- Annemarie Dinkel und Renate Creuzburg für die schnelle und freundliche Hilfe bei vielen verwaltungs- und versicherungstechnischen Angelegenheiten.
- Dr. Thomas Riepl, Tanja Hajak, Thomas Burgmayer, Christian Herdeggen, Ursula Wurstbauer, Dr. Dieter Schuh und besonders Elisabeth Leeb für sorgfältiges Korrekturlesen und viele wertvolle Anregungen zur prägnanteren Formulierung.
- Dr. Matthias Habl und Dr. Thomas Herrle, die mich mit zahlreichen Synonymen und unschätzbaren L^AT_EX-Kniffen unterstützt und Teile dieser Arbeit einer akribischen Korrektur unterzogen haben.
- Den Technikern des Lehrstuhls, Peter Müller, Fritz Koch, Siegfried Heider, Ulrich Zacharias für kompetente Unterstützung beim Aufbau der Labore und in allen weiteren technischen Fragen.
- Norbert Sommer, Johann Deinhart und allen Mitarbeitern der feinmechanischen Werkstatt für die akkurate und rechtzeitige Erledigung zahlreicher Aufträge. Besonderer Dank gilt Friedrich Dietl und Walter Wendt für ihren Ideenreichtum und die technische Finesse bei der Entwicklung und Konstruktion des VTI-Kannenmagnetstabs.

- Dieter Riedl und allen Mitarbeitern der Elektronikwerkstatt für die Instandsetzung vieler wichtiger Geräte und ihre technische Beratung. Gerhard Peter möchte ich für seinen nervenzehrenden Einsatz an der Wickelmaschine danken.
- Den Mitarbeitern der Kühlmittelausgabe für die stets zuverlässige und unkomplizierte Versorgung mit Helium und manch eilig gefülltes Fass Stickstoff.
- Herrn Fitterer für seine hilfreichen Ratschläge bei der Konstruktion des geschlossenen Kühlkreislaufs.

Darüber hinaus möchte ich mich bei meiner Familie bedanken. Bei meinen Eltern, die mir durch ihre Unterstützung mein Studium ermöglichten, bei allen Angehörigen für ihre stete Anteilnahme und bei meinen Kindern Johanna und Jakob, die mich immer schnell auf andere Gedanken brachten. Besonderer Dank gilt meiner Frau Elisabeth, deren Motivation, Unterstützung und Vertrauen mich durch die Promotion getragen haben.