

ELEKTRONISCHER TRANSPORT IN SPINPOLARISIERTEN
OBERFLÄCHEN

Von der Fakultät für Mathematik und Physik
der Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover

zur Erlangung des Grades
Doktor der Naturwissenschaften
Dr. rer. nat.

genehmigte Dissertation von
M. Sc. Philipp Constantin Kröger

2017

Referent: Prof. Dr. Herbert Pfnür

Korreferent: Prof. Dr. Christoph Tegenkamp

Tag der Promotion: 10.08.2017

Schlagwörter: Magnetotransport, Spintronik, ultra-dünne Bismuthfilme

Keywords: Magnetotransport, Spintronics, ultra thin Bismuth films

KURZZUSAMMENFASSUNG

Diese Arbeit befasst sich mit der Analyse spinpolarisierter Oberflächenzustände in den Systemen Bismuth und Bismuthantimonid. Es werden dünne Filme beider Materialien durch epitaktisches Wachstum in einer Ultrahochvakuum-Kammer erzeugt und insitu durch elektronischen Transport charakterisiert. Als Substrat für das Kristallwachstum wird niedrigdotiertes Silizium(111) verwendet. Dazu wird die schichtdickenabhängige Bandlücke ultra-dünner Bismuth(111)-Filme untersucht. Dazu wird der temperaturabhängige Leitwert unterschiedlich dicker Bismuthfilme analysiert. Neben der Beobachtung des *Quanten-Size-Effect* stellt sich heraus, dass der elektrische Transport bei tiefen Temperaturen allein von Ladungsträgern des Oberflächenzustandes getragen wird.

Der Rashba-Effekt führt zudem zu einer Spinpolarisation der Oberflächenbänder, wobei Zustände mit entgegengesetztem Wellenvektor entgegengesetzte Spinorientierungen aufweisen. Zwischen diesen als Kramers-Paaren bezeichneten Zuständen ist die direkte Rückstreuung aufgrund der Zeitinversionssymmetrie nicht möglich, so dass trotz geringer Ladungsträgerkonzentrationen hohe Leitfähigkeiten entstehen. Es bleibt nur die Mehrfachstreuung als Rückstreukanal, wobei die starke Spin-Bahn-Wechselwirkung zu einer Richtungsänderung der Spinwellenfunktion bei jedem Streueignis führt. Der Anteil der kohärent gestreuten Ladungsträger interferiert deshalb in Rückstreurichtung destruktiv. Dieser als schwache Antilokalisierung bezeichnete Effekt wird mithilfe magnetfeldabhängiger Messungen des Leitwerts untersucht.

Zusätzlich spielen bei den untersuchten Schichtdicken von wenigen Nanometern Streueignisse zwischen den Grenzflächen eine große Rolle. Wird das Magnetfeld parallel zur Probenoberfläche ausgerichtet, ist der elektrische Transport auf diese Prozesse empfindlich. Die dabei erhaltenen Daten lassen sich nur mit der Existenz eines Grenzflächenzustandes zwischen Si-Substrat und Bismuthfilm verstehen.

Werden magnetische Atome (3d-Übergangsmetalle Cr, Mn und Fe) auf einem Bismuthfilm adsorbiert, führt dies zu einem lokalen Bruch der Zeitinversionssymmetrie. Die direkte Rückstreuung zwischen Kramers-Paaren ist also nicht länger verboten. Dies äußert sich in einem Übergang zwischen schwacher Antilokalisierung und schwacher Lokalisierung und wird ebenfalls durch magnetfeldabhängige Messungen quantifiziert. Um die Größe des magnetischen der einzelnen Adsorbate zu analysieren, wurden zusätzlich XMCD-Messungen durchgeführt.

Der Oberflächenzustand des Materialsystems Bismuthantimonid ist aufgrund seines topologisch nichttrivialen Charakters spinpolarisiert. Auch in diesem System werden mithilfe des Magnetotransport Streueigenschaften und mit temperaturabhängigen Messungen der *Quanten-Size-Effect* untersucht.

ABSTRACT

This work is dealing with the analysis of spin polarized surface states of the materials bismuth and bismuthantimonide. Thin films are prepared by epitaxial growth in ultra high vacuum and characterized insitu by electronic transport measurements. Low doped silicon(111) are used as substrates.

A film thickness dependent study of the temperature dependent conduction was carried out to investigate the quantum size effect in ultra thin bismuth films. Alongside the thickness dependent energy gap, pure surface state transport at low temperatures has been observed. The energy bands of the surface state are spin polarized by the Rashba-Effect and protected by time reversal symmetry because carriers of opposite wavevector possess a opposite spin orientation. As a consequence the direct backscattering between these kramers-pairs is strongly suppressed. This leads to a high conductivity, despite low charge carrier concentrations. Backscattering is achieved by multiple scattering events. Because of the strong spin orbit interaction, each event alters the orientation of the spin wavefunction, leading to destructive interference of coherent scattered carriers, also known as weak anti-localization. This can be studied by magnetotransport measurements.

Due to the small film thicknesses of several nm, intersurface scattering is taking place. These processes are studied by parallel field magnetotransport measurements. The obtained results can only be explained by including a spin polarized Bi/Si interface state.

By the adsorption of magnetic impurities (3d transition metals Cr, Mn and Fe) onto the bismuth surface, the time reversal symmetry is locally broken. The direct backscattering between kramers-pairs is no longer forbidden, which is detected by magnetotransport as a transition from weak anti localization to weak localization. To quantify the remaining magnetic moments of the transition metals, XMCD measurements were carried out.

The surface state of the alloy bismuthantimonide is spin polarized because of its topologic non trivial character. The scattering mechanism of this system is also characterized by magnetotransport and the quantum size effect by temperature dependence of the conduction.

INHALTSVERZEICHNIS

1	EINLEITUNG	1
I	PHYSIKALISCHE GRUNDLAGEN	5
2	MESSMETHODEN	7
2.1	Elektronenbeugung und SPA-LEED	7
2.2	Elektronischer Transport - Modelle	10
2.2.1	Drude Modell	10
2.2.2	Temperaturabhängigkeit der Leitfähigkeit von Metallen	12
2.2.3	Diffuser Magnetotransport	13
2.2.4	Kohärenter Magnetotransport	14
2.2.5	Van der Pauw-Methode	20
2.3	Spinpolarisierte Zustände	21
2.3.1	Der Rashba-Effekt	21
2.3.2	Topologische Isolatoren	22
2.4	XMCD	24
3	MATERIALSYSTEME	27
3.1	Silizium(111) - (7×7)-Rekonstruktion	27
3.2	Bismuth(111) und Antimon(111) - Kristallstruktur	28
3.2.1	Dünne Bi(111)-Filme	30
3.2.2	Bi _{1-x} Sb _x -Filme	32
4	EXPERIMENTELLER AUFBAU	35
4.1	Die Vakuumkammer	35
4.1.1	Metallverdampfer	36
4.1.2	Der Probenhalter	38
4.2	Die Probe - Präparation und Geometrie	40
4.3	Transportmessungen	41
4.3.1	8-Punkt-Messung	42
4.4	XMCD	43
II	EXPERIMENTE	45
5	WACHSTUM ULTRA-DÜNNER BI(111)- UND TI-FILME AUF SI(111)	47
5.1	Wachstum von Bi(111) und Bi _{1-x} Sb _x (111)	47
5.1.1	Oszillationen des Leitwerts bei der Homoepitaxie	51
5.1.2	Einfluss der Substratalterung auf die Schichtqualität und sukzessives Filmwachstum	53
5.1.3	Vertikale Verteilung des Antimons in der Bismuthmatrix	55
6	ELEKTRONISCHER TRANSPORT IN ULTRA-DÜNNEN BISMUTHFILMEN	57
6.1	Temperaturabhängigkeit ultra-dünner Bismuthfilme	58

6.2	Magnetotransport und Hall-Effekt ultra-dünner Bismuthfilme	64
6.2.1	Diffuse Streuung im Magnetfeld	66
6.2.2	Kohärente Streuung im Magnetfeld	70
6.3	Winkelabhängigkeit des Magnetotransports	73
6.3.1	Magnetotransport im parallelen Feld	75
7	MAGNETISCHE FREMDATOME AUF DER BI(111)-OBERFLÄCHE	85
7.1	Änderung des Leitwerts bei Adsorption	85
7.1.1	Einfluss der Adsorption auf die Temperaturabhängigkeit	89
7.2	Adsorptionsplätze	91
7.3	Adsorbatinduzierte Änderung des Magnetotransports	92
7.3.1	Diffuser Transport bei Adsorption	93
7.3.2	Kohärenter Transport bei Adsorption	98
7.4	XMCD-Messungen an Cr/Bi(111) und Fe/B(111)	101
7.4.1	Ergebnisse der Summenregeln für Fe und Cr	102
7.4.2	Magnetische Anisotropie	106
7.5	Einfluss der magnetischen Momente auf die Ladungsträgerstreuung	107
8	ELEKTRISCHER TRANSPORT ULTRA-DÜNNER $Bi_{1-x}Sb_x$ -FILME	111
8.1	Temperaturabhängigkeit ultra-dünner $Bi_{1-x}Sb_x$ -Filme	112
8.1.1	Volumen und Oberflächenbeiträge	112
8.1.2	Dominanz des Oberflächenzustands	115
8.1.3	Einfluss der Antimonkonzentration x	117
8.2	Magnetotransport in dünnen $Bi_{1-x}Sb_x$ Filmen	119
8.2.1	Streuverhalten und Ladungsträgerkonzentration	120
8.2.2	Kohärente Ladungsträgerstreuung	121
8.2.3	Magnetische Adsorbate auf der TI Oberfläche	123
9	ZUSAMMENFASSUNG	129
	III APPENDIX	131
	A ANHANG	133
	A.1 Wachstum	133
	A.2 $G(T)$ Anpassungen	133
	A.3 Diffuser Transport - Anpassungen	135
	A.4 Kohärenter Transport - Anpassungen	139
	A.5 XMCD	145
	LITERATUR	147

ABBILDUNGSVERZEICHNIS

Abbildung 2.1	Eletkronenbeugung und Ewaldkonstruktion	9
Abbildung 2.2	SPA-LEED Aufbau und modifizierte Ewaldkonstruktion	10
Abbildung 2.3	Wahrscheinlichkeitsverteilung der Elektronen bei schwacher (Anti)-Lokalisierung	15
Abbildung 2.4	Schematische Darstellung der zeitinversiven Pfade bei schwacher (Anti)-Lokalisierung im Realraum und im reziproken Raum	16
Abbildung 2.5	Streuprozesse und Transportregime des parallelen MLW	19
Abbildung 2.6	Van der Pauw Geometrie	20
Abbildung 2.7	Topologie	22
Abbildung 2.8	Eigenschaften topologischer Isolatoren	23
Abbildung 2.9	XMCD Prinzip	25
Abbildung 3.1	LEED-Beugungsbild der Si(111) 7x7 Oberfläche	28
Abbildung 3.2	Kristallstruktur von Bismuth	29
Abbildung 3.3	Volumenbrillouin-Zone von Bismuth	30
Abbildung 3.4	Fermi-Fläche dünner Bismuthfilme (ARPES und Skizze)	31
Abbildung 3.5	$\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$: Änderung der Gitterparameter und Bandstruktur . . .	32
Abbildung 3.6	Bandstruktur und Modell von $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$	33
Abbildung 4.1	Schematische Darstellung der Vakuumkammer	36
Abbildung 4.2	Schematische Darstellung von Metallverdampfern	37
Abbildung 4.3	Fotografie des Probenhalters	38
Abbildung 4.4	Vergleich der Kryostat- und Probentemperatur	39
Abbildung 4.5	Schematische Darstellung der Probengeometrie	40
Abbildung 4.6	Messanordnung bei der 4-Punkt-Methode	41
Abbildung 4.7	Messanordnung bei der 8-Punkt-Methode	43
Abbildung 5.1	Verlauf des Leitwerts während des Filmwachstums und Aus- heilens	48
Abbildung 5.2	SPA-LEED Aufnahmen von Bi und $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ unterschiedlicher Schichtdicke	50
Abbildung 5.3	SPA-LEED und G(T) nach dem Wachstum und nach dem Aus- heilen	51
Abbildung 5.4	$G(\delta\theta)$ bei Homoepitaxie von Bi(111) und $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ und 11 K. . .	52
Abbildung 5.5	$G(\delta\theta)$ bei Homoepitaxie von Bi(111) und 80 K	53
Abbildung 5.6	Einfluss der Substratalterung auf die Schichtqualität	54
Abbildung 5.7	SPA-LEED Aufnahmen von Bismuthfilmen unterschiedlicher Schichtdicke	55
Abbildung 5.8	Sputter XPS Messung eines $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ -Films	56

Abbildung 6.1	Schematische Darstellung der Bandstruktur von Bismuthvolumenkristallen und dünnen Filmen.	58
Abbildung 6.2	G(T)-Verläufe von Bi(111)-Filmen zwischen 20- und 75 BL und Fitparameter	59
Abbildung 6.3	Beispielhafte Fits des G(T)-Verlaufs	62
Abbildung 6.4	Minimum des G(T)-Verlaufs als Funktion der Schichtdicke d	63
Abbildung 6.5	Vergleich vom G(T)-Verlauf eines 20 BL Bi(111)-Films unterschiedlicher Kristallinität	64
Abbildung 6.6	Darstellung der Transportkanäle und Messgeometrie	65
Abbildung 6.7	Änderung des Leitwerts und spezifischer Hall-Widerstand verschieden dicker Bismuthfilme	67
Abbildung 6.8	Ladungsträgerbeweglichkeiten und -konzentrationen verschieden dicker Bismuthfilme	68
Abbildung 6.9	G(B) $\rho_{\text{HALL}}(B)$ von Bi(111)-Filmen verschiedener Schichtdicke (100 K)	69
Abbildung 6.10	Hikami Residuen und Fit Parameter von Bi(111)-Filmen unterschiedlicher Schichtdicke	71
Abbildung 6.11	Hikami Residuen des 20- und 40 BL dicken Films für unterschiedliche Fitparameter	72
Abbildung 6.12	Winkelabhängiger MLW eines 30 BL Bi(111)-Films	74
Abbildung 6.13	Winkelabhängiger MLW als Funktion von $B\cos(\delta)$	75
Abbildung 6.14	Schematische Darstellung der Streuprozesse beim parallelen Magnetotransport	77
Abbildung 6.15	Paralleler MLW bei 11- und 100 K	78
Abbildung 6.16	Fitparameter der parallelen MLW	80
Abbildung 6.17	Bandstruktur Rechnungen und ARPES-Messungen an Bi(111)	82
Abbildung 7.1	G($\delta\theta$) bei Adsorption verschiedener 3d Übergangsmetalle	87
Abbildung 7.2	DFT Bandstruktur von Bi(111) und Einfluss von Dotierung	88
Abbildung 7.3	G($\delta\theta$) nach Abzug des Dotiereffekts	89
Abbildung 7.4	G(T)-Verlauf von Bi(111) und Cr/Bi(111)	90
Abbildung 7.5	DFT-Rechnung: Adorptionsplätze von Bi, Co und Fe auf der Bi(111)-Oberfläche	92
Abbildung 7.6	G(B) und $\rho_{\text{HALL}}(B)$ dünner Bi(111)-Filme bei Adsorption von Cr, Mn und Fe.	94
Abbildung 7.7	Entwicklund der Ladungsträgerbeweglichkeiten und -konzentrationen bei der Adsorption von Cr, Mn und Fe	95
Abbildung 7.8	DFT Bandstruktur von Co/Bi(111) und Fermi Flächen	97
Abbildung 7.9	Schematisch Darstellung der Bandstruktur bei Dotierung.	99
Abbildung 7.10	Hikami Residuen und Streuzeiten bei Adsorption von Cr.	100
Abbildung 7.11	Hikami Residuen und Streuzeiten bei Adsorption von Mn	101
Abbildung 7.12	Datenverarbeitung der XMCD-Messungen	103

Abbildung 7.13	XAS/XMCD Messungen von Cr und Fe auf Bi(111)	104
Abbildung 7.14	Magnetisierungskurven für Cr und Fe	107
Abbildung 7.15	Änderung der Spin Orbit Streuzzeit als Funktion des Spinmo- ments der Adsorbate Co, Fe, Mn und Cr.	108
Abbildung 7.16	Änderung der elastischen Streuzzeiten bei Adsorption von Co, Fe, Mn und Cr.	109
Abbildung 8.1	$\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ Phasendiagramm	112
Abbildung 8.2	$G(T)$ Verläufe unterschiedlich dicker $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ Filme.	113
Abbildung 8.3	$G(11\text{ K})$ unterschiedlich dicker $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ -Filme und Homoepita- xie bei 11 K.	116
Abbildung 8.4	Vergleich der $G(T)$ -Verläufen von dünnen Bi(111)- und $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ - Filmen <10 BL.	118
Abbildung 8.5	$G(T)$ -Verlauf von 10 BL dicken $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ unterschiedlicher Sb- Konzentration.	119
Abbildung 8.6	$G(B)$ und $\rho_{\text{HALL}}(B)$ von 20 BL dicken $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ -Filmen unter- schiedlicher Sb-Konzentration	121
Abbildung 8.7	Ladungsträgerbeweglichkeiten und -konzentrationen von 20 BL dicken $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ -Filmen unterschiedlicher Sb-Konzentration . . .	122
Abbildung 8.8	Hikami Residuen von 20 BL dicken $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ Filmen unterschied- licher Sb-Konzentraion sowie paralleler MLW und Fitparameter	123
Abbildung 8.9	Änderung des Leitwerts bei Adsorption von Cr auf $\text{Bi}_{0,82}\text{Sb}_{0,18}$	124
Abbildung 8.10	MLW und Hall-Widerstand bei Cr Absorption	125
Abbildung 8.11	Ladungsträgerbeweglichkeiten und -konzentrationen bei Cr Ab- sorption	126
Abbildung 8.12	Einfluss des magnetischen Adsorbates Cr auf die kohärente Streuung	127

TABELLENVERZEICHNIS

Tabelle 2	Ergebnisse des Bahn- bzw. effektiven Spinmoments m_L und m_S^{eff} durch die Anwendung der entsprechenden Summenregeln auf die gemessenen Spektren für normalen (0°) und streifenden Einfall (60°) in μ_B . Zudem sind die mittels DFT berechneten Werte des Bahn- und Spinmomente sowie die gemäß $T_z=(m_S^{\text{eff}}-m_{S,\text{DFT}})/7$ bestimmten magnetischen Dipoloperatoren gezeigt.	105
-----------	--	-----

ABKÜRZUNGSVERZEICHNIS

Bi	Das Element Bismuth, Ordnungszahl 83
BL	Bilage
c	Verhältnis aus Elektronen- und Löcherkonzentration
c_+	Absorption links-zirkular polarisierter Röntgenstrahlen
c-	Absorption rechts-zirkular polarisierter Röntgenstrahlen
Co	Das Element Kobalt, Ordnungszahl 27
Cr	Das Element Chrom, Ordnungszahl 24
E_F	Fermi-Energie
Fe	Das Element Eisen , Ordnungszahl 26
G	Leitwert
G_0	Leitwert bei $T = 11$ K und $B = 0$ T
G_{\perp}	Leitwert im parallelen Magnetfeld mit $\vec{I} \perp \vec{B}$
G_{\parallel}	Leitwert im parallelen Magnetfeld mit $\vec{I} \parallel \vec{B}$
k_F	Fermi-Wellenvektor
l_{ϕ}	Phasenkohärenzlänge
l_H	Magnetische Länge
l_e	Mittlere freie Weglänge
λ_F	Fermi-Wellenlänge
μ_n	Beweglichkeit der Elektronen
μ_p	Beweglichkeit der Löcher
m_l	Magnetische Drehimpulsquantenzahl
m_L	Magnetisches Bahnmoment
m_s	Magnetische Spinquantenzahl
m_S	Magnetisches Spinmoment
m_S^{eff}	Effektives magnetisches Spinmoment
Mn	Das Element Mangan, Ordnungszahl 25
ML	Monolage
MLW	Magnetoleitwert
n	2D-Elektronenkonzentration
NMLW	Negativer Magnetoleitwert

p	2D-Löcherkonzentration
PMLW	Positiver Magnetoleitwert
Sb	Das Element Antimon, Ordnungszahl 51
SPA-LEED	Spot Profile Analysis - Low Energy Electron Diffraction
σ	Leitfähigkeit
TI	Topologischer Isolator
τ_0	Elastische Streuzeit
τ_ϕ	Phasenkohärenz Streuzeit
τ_m	Magnetische Streuzeit
τ_s	Tunnelstreuzeit zwischen Grenzflächen
τ_{so}	Spin-Orbit Streuzeit
T_z	Magnetischer Dipoloperator
WL	Schwache Lokalisierung, engl. weak localization
WAL	Schwache Antilokalisierung, engl. weak anti localisation
XMCD	X-Ray Magnetic Circular Dichroism

EINLEITUNG

Das Verständnis von spinpolarisiertem Ladungstransport ist von großem wissenschaftlichen Interesse in Bezug auf die Entwicklung spintronischer Bauelemente, wobei nicht die elektrische Ladung, sondern das magnetische Moment von Elektronen zur Übertragung von Informationen genutzt werden kann. Die Vorteile eines Bauelements mit dem zusätzlichen Freiheitsgrad Spin gegenüber herkömmlichen Bauelementen sind bestechend. Größere Datenübertragungsraten, kleinerer Verbrauch und größere Integrationsdichten sind nur einige Stichwörter zu diesem Thema. Der spinpolarisierte Transport ist dabei einer von vielen Bausteinen zur Realisierung eines spintronischen Bauelements. Bismuth und auch topologischen Isolatoren sind potentielle Materialsysteme, die zweidimensionale Oberflächenzustände ausbilden und einen verlustfreien Transport spinpolarisierter Ladungsträger aufgrund von unterdrückter Rückstreuung ermöglichen. Für eine effektive Nutzung ist die Kontrolle über physikalische Eigenschaften wie z. B. Ladungsträgerdichten, Bandlückenenergien, mögliche Dotierung und die Manipulation von Streukanälen erstrebenswert.

In dieser Arbeit werden die Transporteigenschaften dünner Bismuthfilme mit Rashba spinpolarisierten Oberflächenzuständen sowie dünner Bismuthantimonidfilme mit topologisch nicht trivialen, spinpolarisierten Oberflächenzuständen untersucht. In beiden Materialsystemen spielt die Zeitinversionssymmetrie (\mathcal{T} -Symmetrie) eine zentrale Rolle. Diese besagt, dass die 180° -Rückstreuung zwischen entgegengesetzt spinpolarisierten Zuständen, welche auch als Kramers-Paare bezeichnet werden, nicht möglich ist.

Das Materialsystem Bismuth ist bereits seit den 60er Jahren ein Thema wissenschaftlicher Debatten. Als Volumenmaterial zeigt Bismuth mit überlappenden Leitungs- und Valenzbändern an Symmetriepunkten der Brillouin-Zone halbmetallischen Charakter [1]. Es tragen also sowohl Elektronen als auch Löcher zum elektrischen Transport bei. Untersuchungen bezüglich des Quanten-Size-Effekts (QSE) wurden aufgrund der langen Fermi-Wellenlänge ($\lambda_F \approx 30 \text{ nm}$) durchgeführt. Durch Erniedrigung der Bismuthfilmdicke werden dabei die Ladungsträger in z-Richtung eingeschränkt, wodurch quantisierte Subbänder mit einer Energielücke entstehen. Dieser Halbmetall-Halbleiter- (SM-SC) Übergang, wurde bereits 1967 vorhergesagt [2]. Erst etwa 40 Jahre später, als ARPES-Messungen die Existenz eines metallischen Oberflächenzustands von dünnen Bismuthfilmen zeigten, konnten Messungen elektrischen Transports richtig interpretiert und der SM-SC-Übergang nachgewiesen werden [3–5]. Es gibt zwei Oberflächenbänder, wovon eines die Elektronentaschen am Γ - und M-Punkt ausbildet, während das andere für eine Lochtasche zwischen Γ - und

M-Punkt sorgt. Der Ursprung der dabei beobachteten schichtdickenabhängigen Leitfähigkeit ($d > 6 \text{ BL}$) bei tiefen Temperaturen wird der Koexistenz von Oberflächen- und Volumenkanälen zugeordnet, wobei der Volumenkanal mit zunehmender Schichtdicke an Gewicht gewinnt [6–8]. Unklar bleibt jedoch der Mechanismus, der den vollbesetzten quantisierten Valenzbändern erlaubt, bei tiefen Temperaturen am Transport teilzunehmen.

Da der Oberflächenzustand durch den Rashba-Effekt spinpolarisiert ist, gibt es ein großes Interesse an der Charakterisierung der Oberflächenleitfähigkeit in Transportexperimenten [8–11] sowie der Analyse der Bandstruktur durch spinaufgelöste ARPES-Messungen [12–14]. Hierbei stehen die durch die \mathcal{T} -Symmetrie beeinflussten Streuprozesse im Vordergrund. Die unterdrückte Rückstreuung führt zu großen Ladungsträgerbeweglichkeiten im Oberflächenzustand [15]. Zudem gibt es theoretische Vorhersagen sowie experimentelle Hinweise der Existenz des Quanten-Spin-Hall-Effekts und der damit verbundenen Ausbildung von eindimensionalen Kantenzuständen einer Bismuthbilage [16–22].

Das relativ neue Forschungsfeld der topologischen Isolatoren findet seinen Ursprung in der Entdeckung des Quanten-Hall-Effekts durch Klitzing et al. [23]. Dieses makroskopische Quantenphänomen, bei dem dissipationsfreie Randkanäle entstehen, sollte nach theoretischen Vorhersagen auch ohne die Notwendigkeit eines starken magnetischen Feldes möglich sein [24] und fand seine Realisierung im Quanten-Spin-Hall-Effekt in HgTe-Heterostrukturen, dem ersten zweidimensionalen topologischen Isolator mit spinpolarisierten Randkanälen [25]. Auf der Suche nach 3D TIs gelang Hsieh et al. die erste experimentelle Realisierung mit $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ [26], kurz nach der theoretischen Vorhersage von Fu und Kane [27]. Aufgrund der helikalen Spinpolarisation der Oberflächenzustände wurden eine Vielzahl von Materialsystemen (Bi_2Se_3 , Bi_2Te_3 , Sb_2Te_3), die als topologische Isolatoren der zweiten Generation bezeichnet werden, untersucht. Diese Verbindungen leiden jedoch unter großen Defektdichten, die zu leitenden Volumenzuständen und niedrigen Ladungsträgerbeweglichkeiten im Oberflächenzustand führen.

Unter diesen Umständen stellt das epitaktische Wachstum von TI-Schichten eine vielversprechende Alternative dar [28–30]. Durch diese Technik wird sowohl das Wachstum dünner Schichten mit hochqualitativer Kristallinität als auch die Untersuchung der Bandstruktur durch den QSE erlaubt [31]. Im Gegensatz zu geschnittenen Volumenkristallen, bei denen es zu undefinierter Terminierung der Oberfläche kommen kann [32, 33], führt die Kontrolle von Stöchiometrie und Morphologie beim epitaktischen Wachstum zu wohldefinierten Oberflächen.

Die Beurteilung des topologisch nicht trivialen Charakters von $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ -Volumenkristallen erfolgte in den ersten ARPES-Messungen anhand von fünf Schnittpunkten von drei Oberflächenbändern mit dem Fermi-Niveau [26]. In jüngsten hochauflösenden ARPES-Experimenten wurde diese Interpretation von Benia et al. durch die Beobachtung von zwei Oberflächenbändern widerlegt [34] und ist konsistent mit den

theoretischen Vorhersagen [27]. Die Identifizierung des dritten Oberflächenbandes als defektinduzierten Volumenkanal bekräftigt die Fertigung dieses Systems durch die Epitaxie. $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ ist dabei nicht zuletzt aufgrund der zu erwartenden Beweglichkeiten von $10^4 \text{ cm}^2 \text{ Vs}^{-1}$ [35], sondern auch wegen der Variabilität, ein triviales Halbmetall als Funktion der Antimonkonzentration in einen nicht trivialen Zustand zu versetzen, attraktiv [27, 34, 36].

Beide Materialsysteme können mittels epitaktischem Wachstum auf isolierenden Silizium(111)-Substraten hergestellt werden. Die Ausbildung des QSE stellt sicher, dass oberflächensensitive Transportmessungen realisiert werden können. Temperaturabhängige Messungen des Leitwerts werden durchgeführt, um die beteiligten Transportkanäle zu identifizieren sowie über Beiträge des aktivierten Transports die Aufspaltung der Bänder durch den *Quanten-Size-Effekt* zu quantifizieren. Dazu werden Filme mit unterschiedlichen Schichtdicken hergestellt. Für die TI-Filme können die schichtdickenabhängigen Untersuchungen sogar den Übergang zwischen dem dreidimensionalen topologischen Isolator und dem zweidimensionalen Limit aufdecken [37–39]. Magnetotransport- und Hall-Messungen komplementieren die Charakterisierung, da hierbei Informationen über die Ladungsträgerdichten und Ladungsträrgbeweglichkeiten gewonnen werden. Die $G(B)$ -Messungen sind zudem sensitiv auf die kohärenten Streuprozesse der Ladungsträger. Dies manifestiert sich durch die Beobachtung der schwachen Antilokalisierung dieser stark Spin-Bahn gekoppelten Systeme. Die schwache Kopplung von Bismuth an das Siliziumsubstrat führt zur Ausbildung eines Rashba aufgespaltenen Grenzflächenzustandes [13, 40]. Bei topologischen Isolatoren muss der Grenzflächenzustand zwangsläufig aufgrund der Topologie der Bandstruktur existieren [27] und wurde anhand dessen Hybridisierung mit dem Oberflächenzustand unter Öffnung einer Bandlücke in Bi_2Se_3 beobachtet [38]. Um diesbezüglich Untersuchungen anzustellen, eignet sich der Magnetotransport in einem parallel zur Probenoberfläche angelegten Magnetfeld [41]. Klassische Beiträge werden dabei durch Abwesenheit der Lorentzkraft eliminiert, sodass der Transport lediglich durch kohärente Streuung zwischen den Grenzflächen dominiert wird.

Zuletzt werden die Rückstreumechanismen, die von der \mathcal{T} -Symmetrie stark beeinflusst sind, überprüft. Dazu werden kleinste Mengen verschiedener 3d-Übergangsmetalle (magnetische Adsorbate) verwendet, die einen lokalen Bruch der \mathcal{T} -Symmetrie bewirken [42–46]. Diese Manipulation ist nur dann möglich, falls die Adsorbate ein verbleibendes magnetisches Moment aufweisen und hängt damit stark von deren lokaler Ordnung ab. Theoretische Strukturrechnungen in Verbindung mit STM-Messungen konnten belegen, dass die Metalle hochsymmetrische Plätze innerhalb der ersten Bismuthlage einnehmen [47], sodass lokale magnetische Bahn- und Spinmomente möglich sind. Wie neuste DFT-Rechnungen belegen, besteht darüberhinaus die Möglichkeit zur Inkorporation einer gesamten Monolage von 3d-Metallen. Es entsteht ein geordnetes Gitter unterhalb der ersten Bismuthlage. Unter Erhaltung der magnetischen Eigenschaften des einzelnen Adsorbats, könnte diese Kombination von

Materialien die Realisierung eines Kondo-Gitters darstellen [48] und damit die Möglichkeit bieten, physikalische Effekte jenseits von Fermi-Flüssigkeiten zu studieren.

Die Analyse der kohärent gestreuten Ladungsträger stellt dabei eine Femtosekunden-spektroskopie der beteiligten Streuprozesse dar, sodass die Auswirkungen der Adsorption auf das Gesamtsystem untersucht werden. Diese werden durch XMCD-Messungen komplementiert, die zur Charakterisierung der lokalen magnetischen Eigenschaften der 3d-Übergangsmetalle eingesetzt werden.

Die Gliederung dieser Arbeit gestaltet sich wie folgt: Der erste Teil befasst sich mit den physikalischen Grundlagen und ist in drei Kapitel unterteilt. Im Kapitel 2 werden theoretische Grundlagen, die für das Verständnis der auftretenden Effekte wichtig sind, diskutiert. Eine Einführung und Überblick der verwendeten Materialsysteme wird in Kapitel 3 vorgestellt. Im Kapitel 4 wird der experimentelle Aufbau beschrieben. Im zweiten Teil der Arbeit, der aus insgesamt vier Kapiteln besteht, werden alle Messungen präsentiert. Im Kapitel 5 wird das Kristallwachstum der beiden untersuchten Systeme vorgestellt. Kapitel 6 befasst sich mit Bismuth. Hierbei liegt das Hauptaugenmerk auf der Untersuchung des QSE und der Streuprozesse zwischen den Grenzflächen. In Kapitel 7 werden die Messungen mit magnetischen Adsorbaten vorgestellt. Zuletzt folgen die Transporteigenschaften des topologischen Isolators $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ im Kapitel 8.

Teil I

PHYSIKALISCHE GRUNDLAGEN

MESSMETHODEN

In diesem Kapitel werden einige grundlegende physikalische Konzepte vorgestellt, die zum Verständnis der in dieser Arbeit vorgestellten Messungen notwendig sind. Der erste Abschnitt befasst sich mit der Elektronenbeugung an Oberflächen mithilfe von SPA-LEED (*Spot Profile Analysis - Low Energy Electron Diffraction*). Die Methode wurde zur Charakterisierung der Oberflächengüte verwendeter Substrate und hergestellter Kristallschichten verwendet. Der nächste Abschnitt befasst sich mit dem elektronischen Transport in Festkörpern. Hier stehen die temperatur- und magnetfeldabhängigen Effekte im Vordergrund, die hauptsächlich als Charakterisierungsmethode der Streueigenschaften verwendet wurden. Bei den magnetfeldabhängigen Untersuchungen ist dabei zwischen zwei Effekten zu unterscheiden: Dem semiklassischen oder diffusen Transport und dem quantenmechanischen oder kohärenten Transport. Da die gemessenen Magnetoleitwerte (MLW) bei tiefen Temperaturen eine Überlagerung aus beiden Effekten darstellen, können durch deren separate Analyse unterschiedliche Informationen über das untersuchte System extrahiert werden. Die semiklassische Analyse gibt Aufschluss über die Ladungsträgerbeweglichkeiten und -konzentrationen, wohingegen die Analyse des kohärenten Transports eine Spektroskopie der kohärenten Streuprozesse auf einer Femtosekundenzeitskala liefert. Im letzten Abschnitt wird ein kurzer Überblick über die Methode der magnetischen Röntgenabsorption von zirkular polarisiertem Licht (XMCD) gegeben. Hiermit wurden die magnetischen Momente von 3d-Übergangsmetallen auf Bismuthoberflächen bestimmt.

2.1 ELEKTRONENBEUGUNG UND SPA-LEED

Die Beugung von Elektronen niedriger Energie (20 - 200 eV) an Festkörpern eignet sich gut für die Charakterisierung von Oberflächen. Dies liegt zum einen an der geringen Eindringtiefe von einigen Å[49] und zum anderen liegt die de-Broglie-Wellenlänge langsamer Elektronen in der Größenordnung typischer Gitterparameter von Kristallen. Die Messmethode LEED (*Low Energy Electron Diffraction*) nutzt diese Eigenschaften durch die Beugung der Elektronenwellen an einer geordneten Oberfläche.

Die Laue-Bedingung $\mathbf{k}_o - \mathbf{k}_i = \Delta\mathbf{k} = \mathbf{K}$ dient zur Beschreibung des Prozesses und besagt, dass konstruktive Interferenz nur dann auftritt, wenn die Differenz aus einfallendem (\mathbf{k}_i) und ausfallendem Wellenvektor (\mathbf{k}_o) einem Gittervektor des reziproken Raumes \mathbf{K} entspricht. Bei diesen Beugungsbedingungen ist, anders als bei der Rönt-

genbeugung, aufgrund der endlichen Eindringtiefe der Elektronen in den Festkörper zwischen paralleler und senkrechter Komponente (\mathbf{k}_{\parallel} und \mathbf{k}_{\perp}) der Wellenvektoren zu unterscheiden. Parallel zur Oberfläche sind die reziproken Gittervektoren sehr gut definiert und die entsprechende Laue-Bedingung lautet:

$$\Delta\mathbf{k}_{\parallel} = \mathbf{G}_{\parallel} \quad (2.1)$$

Senkrecht zur Oberfläche ist der Streuvektor aufgrund der Oberfläche selbst und der endlichen Eindringtiefe der Elektronen nicht gut definiert. Dies führt dazu, dass für jedes \mathbf{k}_{\perp} konstruktive Interferenz auftritt. Im reziproken Raum entsteht daher eine periodische Anordnung von Beugungsstangen.

Zur Beschreibung der Intensitätsverteilung von Beugungsreflexen dient die kinematischen Streutheorie. In diesem Rahmen wird die Mehrfachstreuung vernachlässigt und die Amplitude $\Psi(\mathbf{K}, \mathbf{k}_i)$ als Summe ebener Wellen, deren Ausgangspunkt durch $\mathbf{r}(\mathbf{n})$ gegeben ist, gemäß

$$\Psi(\mathbf{K}, \mathbf{k}_i) = \sum_{\mathbf{n}} f(\mathbf{n}, \mathbf{K}, \mathbf{k}_i) e^{i\mathbf{K}\mathbf{r}(\mathbf{n})} \quad (2.2)$$

beschrieben. $f(\mathbf{n}, \mathbf{K}, \mathbf{k}_i)$ ist der Strukturfaktor. Die Intensität des Reflexes kann damit anhand von

$$I(\mathbf{K}, \mathbf{k}_i) = |\Psi(\mathbf{K}, \mathbf{k}_i)|^2 = \sum_{\mathbf{n}, \mathbf{m}} f(\mathbf{n}, \mathbf{K}, \mathbf{k}_i) f^*(\mathbf{m}, \mathbf{K}, \mathbf{k}_i) e^{i\mathbf{K}(\mathbf{r}(\mathbf{n}) - \mathbf{r}(\mathbf{m}))} \quad (2.3)$$

berechnet werden[50]. Für eine homogen geordnete glatte Oberfläche bestehend aus einer Atomsorte ist zu erwarten, dass der Strukturfaktor für alle Gitterpositionen gleich ist. Daher können alle Strukturfaktoren durch ihren räumlichen Mittelwert $f(\mathbf{K}, \mathbf{k}_i) = \langle f(\mathbf{n}, \mathbf{K}, \mathbf{k}_i) \rangle_{\mathbf{n}}$ beschrieben werden. An Defekten, wie z. B. atomaren Stufen, ändert sich die elektronische Konfiguration und damit auch der Strukturfaktor. Da dieser sich nur in unmittelbarer Umgebung des Defekts vom Rest der Oberfläche unterscheidet, kann die Intensität des Beugungsreflexes mit

$$I(\mathbf{K}, \mathbf{k}_i) = F(\mathbf{K}, \mathbf{k}_i) \cdot G(\mathbf{K}), \quad (2.4)$$

beschrieben werden. Dabei ist $F(\mathbf{K}, \mathbf{k}_i) = |f(\mathbf{K}, \mathbf{k}_i)|^2$ der dynamische Formfaktor, der die integrale Intensität des Beugungsreflexes bestimmt. $G(\mathbf{K})$ ist der Gitterfaktor, welcher die Intensitätsverteilung im reziproken Raum bestimmt [50]:

$$G(\mathbf{K}) = \frac{1}{2\pi} \left| \sum_{\mathbf{n}} e^{ia\mathbf{K}_{\parallel}\mathbf{n}} e^{id\mathbf{K}_{\perp}h(\mathbf{n})} \right|^2 \quad (2.5)$$

Hierbei ist $h(\mathbf{n})$ die Höhenfunktion und a die Gitterkonstante parallel zur Oberfläche die über $\mathbf{r}(\mathbf{n}) = a\mathbf{n} + \mathbf{d}_z h(\mathbf{n})$ definiert sind. \mathbf{d}_z beschreibt den Translationsvektor senkrecht zur Oberfläche. Eine atomar glatte und geordnete Oberfläche resultiert also in scharfen Beugungsreflexen, wohingegen Abweichungen davon zu einer Umverteilung der Intensität und der Ausbildung eines diffusen Untergrunds führt.

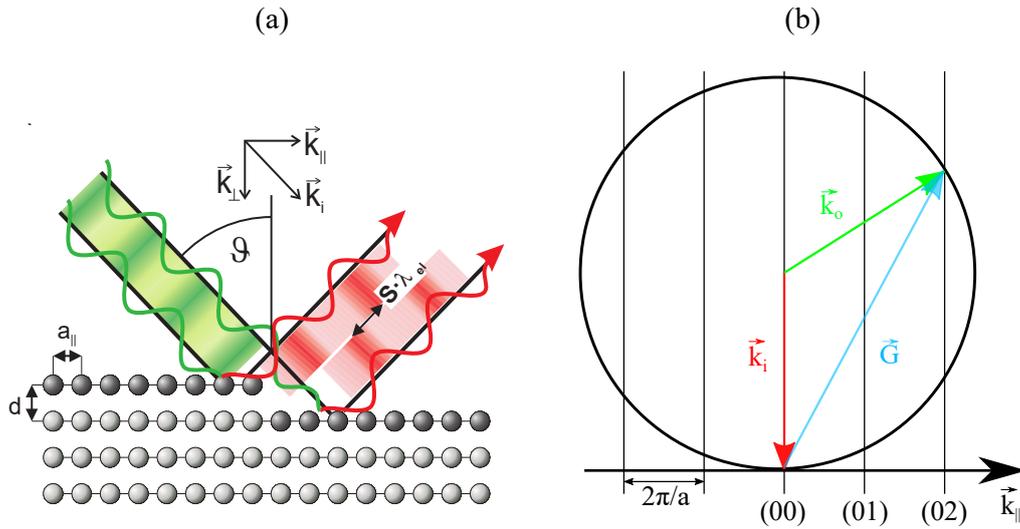


Abbildung 2.1: (a) Beugung von zwei Elektronenwellen an einer atomaren Stufe. (b) Ewald-konstruktion bei der Beugung von langsamen Elektronen an einer Oberfläche. Die Abbildung (a) stammt aus Referenz [51].

Während der dynamische Formfaktor im Wesentlichen energieunabhängig ist, liefert die Energieabhängigkeit von $G(\mathbf{K})$ Informationen über die Morphologie der Oberfläche.

Diese Abhängigkeit ist anschaulich anhand der Interferenz von zwei Elektronenwellen der Wellenlänge λ_{el} an einer atomaren Stufe der Höhe d in der Abbildung 2.1 (a) dargestellt. Für den (00) -Beugungsreflex, d. h. $K_{\parallel} = 0$, und dem Einfallswinkel Θ gilt die Bragg-Bedingung:

$$S \cdot \lambda_{el} = 2d \cos(\Theta) \quad (2.6)$$

Konstruktive Interferenz entsteht demnach bei ganzzahligem S (Inphase), während destruktive Interferenz bei halbzahligem S (Gegenphase) auftritt. S wird auch als Streuphase bezeichnet [50]. Unter Berücksichtigung von $K_{\perp} = 2\pi \cos(\Theta)/\lambda_{el}$ folgt der Zusammenhang zwischen der vertikalen Komponente des Wellenvektors und der Streuphase:

$$S = K_{\perp} d/\pi. \quad (2.7)$$

Der diffuse Anteil der Intensität ist demnach für die Gegenphase maximal (vgl. Gleichung (2.5)). Dies wird bei der sogenannten $H(S)$ -Analyse verwendet um Informationen über Strukturgrößen der untersuchten Oberfläche zu erhalten. In einem zwei Level System wird die mittlere Strukturgröße Γ durch die Analyse der Halbwertsbreiten des diffusen Anteils gemäß

$$H(S) = \frac{4(1 - \cos(2\pi S))}{\Gamma} \quad (2.8)$$

beschrieben [52, 53].

die Elektronen in Feldrichtung beschleunigt und durch Stoßprozesse abgebremst. Die klassische Bewegungsgleichung lautet:

$$m\dot{v} + \frac{m}{\tau}v_D = -e\mathcal{E} \quad (2.9)$$

Dabei beschreibt der Reibungsterm $m \cdot v_D/\tau$, mit der Relaxationszeit τ , die hemmende Wirkung der Stoßprozesse und $v_D = v - v_{th}$ ist die Driftgeschwindigkeit der Elektronen, hervorgerufen durch das elektrische Feld. Im stationären Fall ($\dot{v} = 0$) folgt

$$v_D = -\frac{e\tau}{m}\mathcal{E} \quad (2.10)$$

und daher für die Stromdichte j in Richtung des elektrischen Feldes:

$$j = -env_d = ne\mu\mathcal{E} = \frac{e^2\tau n}{m}\mathcal{E}. \quad (2.11)$$

Dabei ist n die Ladungsträgerdichte aller freien Elektronen. Der Faktor μ wird als Beweglichkeit bezeichnet. Im klassischen Drude Modell ergibt sich damit die elektrische Leitfähigkeit zu

$$\sigma = \frac{j}{\mathcal{E}} = \frac{e^2n\tau}{m}, \quad (2.12)$$

mit der Elektronenbeweglichkeit

$$\mu = \frac{e\tau}{m}. \quad (2.13)$$

In diesem Modell tragen alle freien Elektronen zum Strom bei. Diese Aussage steht jedoch im Widerspruch zum Pauli-Prinzip. Für ein Fermi-Gas der Elektronen verbietet es, dass Elektronen unterhalb des Fermi-Niveaus Energie durch das elektrische Feld aufnehmen, da alle Zustände in der Umgebung bereits besetzt sind. Um ein fortgeschritteneres Modell zu erhalten, müssen die vorherigen Überlegungen zur Stromdichte um das Pauli-Prinzip und das Bändermodell erweitert werden. Dafür wird über alle besetzten und unbesetzten Zustände der ersten Brillouin-Zone aufsummiert und die Stromdichte ergibt sich zu [55]:

$$\mathbf{j}_n = \frac{e}{8\pi^3} \int_{1.BZ} \mathbf{v}(\mathbf{k}) f(\mathbf{k}) d\mathbf{k} \quad (2.14)$$

Dabei ist $f(\mathbf{k})$ die Besetzungswahrscheinlichkeit des Zustandes \mathbf{k} , wodurch nur die besetzten Zustände erfasst werden. Diese Darstellung ist auch dahingehend von Vorteil, dass sowohl Elektronen als auch Löcher den Strom tragen können. Das elektrische Feld sei weiterhin in x -Richtung angelegt. Für ein isotropes Medium und für kubische Gitter verschwinden die y - und z -Komponenten von j und der tensorielle Zusammenhang vereinfacht sich zu einem skalaren. Nach einiger Rechnung kann die elektrische Leitfähigkeit letztlich über das Flächenintegral der Fermi-Fläche $E(\mathbf{k}) = E_F$ mit

$$\sigma \simeq \int_{E=E_F} \frac{v_x^2(\mathbf{k})}{v(\mathbf{k})} \tau(\mathbf{k}) df_E. \quad (2.15)$$

genähert werden und es treten nur noch Elektronengeschwindigkeiten $v(E_F)$ und Relaxationszeiten $\tau(E_F)$ von Elektronen auf der Fermi-Fläche auf. In einem parabolischen Band mit konstanter effektiver Masse $m^* = \hbar^2(d^2E/dk^2)^{-1}$ gilt weiter

$$v(E_F) = \hbar k_F / m^* \quad (2.16)$$

und

$$k_F^3 = 3\pi^2 n. \quad (2.17)$$

Daher ergeben sich für die elektrische Leitfähigkeit

$$\sigma \simeq \frac{e^2 \tau(E_F)}{m^*} n \quad (2.18)$$

und für die Beweglichkeit

$$\mu \simeq \frac{e \tau(E_F)}{m^*}. \quad (2.19)$$

Diese Beziehungen ähneln den Drude-Formeln bis auf die Tatsache, dass die effektive Masse m^* und die Relaxationszeit der Elektronen an der Fermi-Kante $\tau(E_F)$ eingehen. Zur Bestimmung der Leitfähigkeit eines zweidimensionalen Systems ist die Ladungsträgerdichte n durch die zweidimensionale Ladungsträgerdichte n_{2D} zu ersetzen.

2.2.2 Temperaturabhängigkeit der Leitfähigkeit von Metallen

Da die Elektronenkonzentration n unabhängig von der Temperatur ist, wird die Temperaturabhängigkeit der Leitfähigkeit von Metallen von den Streuprozessen der Elektronen, die durch $\tau(E_F)$ charakterisiert werden, bestimmt. Als Mechanismus kommen hierbei im Wesentlichen die Phononenstreuung und die Störstellenstreuung in Frage. Sind beide Mechanismen voneinander unabhängig, ergibt die Summe beider Streuwahrscheinlichkeiten die Gesamtstreuwahrscheinlichkeit, die umgekehrt proportional zur Relaxationszeit τ ist:

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_{Ph}} + \frac{1}{\tau_{St}} \quad (2.20)$$

Dabei ist τ_{Ph} und τ_{St} die mittlere freie Flugzeit für Phononenstreuung bzw. Störstellenstreuung. Die Zahl der Stöße pro Zeiteinheit ist proportional zum Streuquerschnitt Σ und der Geschwindigkeit v ($1/\tau \propto \Sigma v$). Dabei sind $v(E_F)$ sowie der Wirkungsquerschnitt Σ für die Störstellenstreuung temperaturunabhängig, sodass τ_{St} einen konstanten Beitrag ρ_{St} zum spezifischen Widerstand liefert. Da demnach nur die Phononenstreuung einen temperaturabhängigen Beitrag liefert, kann der spezifische Widerstand mithilfe der Matthiesen'schen Regel als

$$\rho = 1/\sigma = \rho_{Ph}(T) + \rho_{St}. \quad (2.21)$$

angegeben werden. Der Streuquerschnitt bei Phononenstreuung kann als mittleres Quadrat der Schwingungsamplitude $\langle s^2(\mathbf{q}) \rangle$ des entsprechenden Phonons beschrieben werden. Dabei ist \mathbf{q} der Wellenvektor und $\omega_{\mathbf{q}}$ die Frequenz. Nach dem Gleichverteilungssatz im Fall großer Temperaturen gilt dann:

$$M\omega_{\mathbf{q}}^2 \langle s^2(\mathbf{q}) \rangle = k_B T, \quad (T \gg \Theta) \quad (2.22)$$

Dabei ist M die Masse der Atomrümpfe. Durch Ersetzen der Phononenfrequenz durch die Debyesche Abschneidefrequenz $\omega_D = k_B \Theta / \hbar$ ergibt sich schließlich

$$\tau_{\text{Ph}} \sim \frac{M\Theta^2}{T} \quad (2.23)$$

für $T \gg \Theta$ und der Debye-Temperatur Θ . Für Temperaturen $T < \Theta$ wird die Phononenanregung geringer und aufgrund der abnehmenden Phononenenergie ist bevorzugt Kleinwinkelstreuung zu erwarten. Grüneisen gelang es einen Ausdruck des spezifischen Widerstands für alle Metalle anzugeben[56]:

$$\rho_{\text{Ph}} = A(T/\Theta)^5 \int_0^{\Theta/T} \frac{x^5 dx}{(e^x - 1)(1 - e^{-x})} \quad (2.24)$$

In diesem Temperaturbereich ist der spezifische Widerstand also proportional zu T^5 .

2.2.3 Diffuser Magnetotransport

Bei eingeschaltetem Magnetfeld wirkt zusätzlich zur Kraft durch das Elektrische Feld noch die Lorentzkraft auf die Ladungsträger, sodass die Bewegungsgleichung (2.9) um einen zusätzlichen Term erweitert wird:

$$m^* \dot{\mathbf{v}} = -e(\mathcal{E} + \mathbf{v}_D \times \mathbf{B}) - m^* \frac{\mathbf{v}_D}{\tau} \quad (2.25)$$

Im stationären Fall für einen Stab mit rechteckigem Querschnitt und einem Magnetfeld in z -Richtung ergibt sich nach einiger Rechnung daraus für die Stromdichte:

$$\begin{pmatrix} j_x \\ j_y \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \sigma_{xx} & \sigma_{xy} \\ -\sigma_{xy} & \sigma_{xx} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \mathcal{E}_x \\ \mathcal{E}_y \end{pmatrix} \quad (2.26)$$

Mit den Leitfähigkeiten

$$\sigma_{xx} = \frac{ne}{B} \frac{\omega_c \tau}{1 + \omega_c^2 \tau^2} \quad \text{und} \quad \sigma_{xy} = -\frac{ne}{B} \frac{\omega_c^2 \tau^2}{1 + \omega_c^2 \tau^2}. \quad (2.27)$$

Dabei beschreibt $\omega_c = eB/m^*$ die Umlauffrequenz (Zyklotronfrequenz) auf den durch die Lorentzkraft verursachten Kreisbahnen der Ladungsträger. Auflösen des Gleichungssystems nach den elektrischen Feldern liefert:

$$\begin{pmatrix} \mathcal{E}_x \\ \mathcal{E}_y \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \rho_{xx} & \rho_{xy} \\ -\rho_{xy} & \rho_{xx} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} j_x \\ j_y \end{pmatrix} \quad (2.28)$$

Mit den Widerständen

$$\rho_{xx} = \frac{B}{ne} \frac{1}{\omega_c \tau} \quad \text{und} \quad \rho_{xy} = -\frac{B}{ne}. \quad (2.29)$$

Interessanterweise ergibt sich für den Längswiderstand der zuvor beschriebene Zusammenhang der Gleichung (2.18). Im Drude Modell tritt also kein Magnetowiderstand auf. In der vorliegenden Geometrie mit einem Strom in x-Richtung ergibt sich aus (2.28)

$$\mathcal{E}_y = -\frac{e\tau}{m^*} B \mathcal{E}_x. \quad (2.30)$$

Es baut sich also ein Feld in y-Richtung auf, das im stationären Fall die Lorentz-Kraft kompensiert.

Eine Verallgemeinerung dieses einfachen Zusammenhangs ergibt sich, wenn zwei Ladungsträger (Elektronen und Löcher) mit unterschiedlichen Beweglichkeiten μ_n und μ_p und Konzentrationen n und p zum Transport beitragen. Die Leitfähigkeit wird in diesem Fall durch

$$\sigma = e(n\mu_n + p\mu_p) \quad (2.31)$$

beschrieben. Unter Ausnutzen von $\rho(B)/\rho_0 = G(0)/G(B)$ ergibt sich der magnetfeldabhängige Leitwert zu

$$G(B) = G(0) \frac{1 + (1-c)^2 \frac{\mu_n^2 \mu_p^2}{(\mu_n + c\mu_p)^2} B^2}{1 + \mu_n \mu_p \frac{\mu_p + c\mu_n}{\mu_n + c\mu_p} B^2}, \quad c = \frac{p}{n} \quad (2.32)$$

sowie der spezifische Hall-Widerstand

$$\rho_{\text{HALL}}(B) = -\frac{B}{ne} \frac{\mu_n^2 - c\mu_p^2 + (1-c)\mu_n^2 \mu_p^2 B^2}{(\mu_n + c\mu_p)^2 + (1-c)^2 \mu_n^2 \mu_p^2 B^2}. \quad (2.33)$$

Anhand von Gleichung (2.32) lässt sich eine quadratische Abhängigkeit der Beweglichkeiten vom magnetischen Feld erkennen, sodass die Amplitude von $G(B)$ mit zunehmenden Beweglichkeiten zunimmt. Die Interpretation des Hall-Widerstandes $\rho_{\text{HALL}}(B)$ ist in diesem Fall nicht mehr trivial. Für nur eine Sorte von Ladungsträgern kann anhand der Steigung des Hall-Widerstandes die Art der Ladungsträger bestimmt werden. Dies gilt für Systeme mit zwei Ladungsträgern nicht. In diesem Fall bedeutet eine positive (negative) Steigung, dass c größer (kleiner) als μ_n^2/μ_p^2 . Für den Fall, dass $n\mu_n^2 = p\mu_p^2$ gilt, ist der Leiter kompensiert und der Hall-Effekt verschwindet.

2.2.4 Kohärenter Magnetotransport

Die Leitfähigkeit eines zweidimensionalen Elektronengases kann neben der diffusen Ladungsträgerstreuung, beschrieben durch die Boltzmann Theorie, zusätzlich quantenmechanische Korrekturen enthalten. Diese entstehen durch kohärente Überlagerung der Ladungsträgerwellenfunktionen nach der Streuung an einer Störstelle. Dieser als schwache (Anti)-Lokalisierung bezeichnete Effekt wird beobachtet, falls die

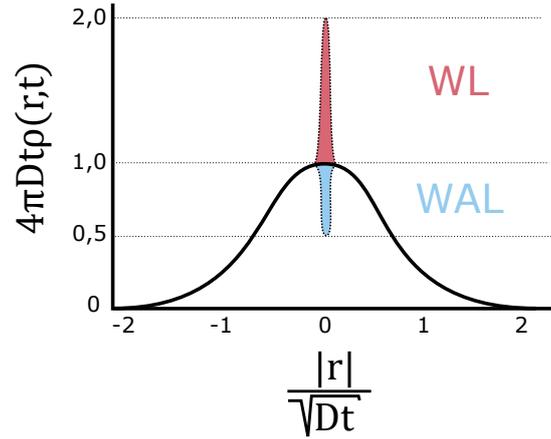


Abbildung 2.3: Wahrscheinlichkeitsverteilung eines Elektrons am Ort $r = 0$ zur Zeit $t = 0$. Bei kohärenter Überlagerung erhöht sich die Wahrscheinlichkeit das Elektron am Ursprung zu finden auf das Doppelte (roter Peak, WL). Im Fall starker Spin-Bahn-Wechselwirkung hingegen halbiert sich die Wahrscheinlichkeit (blauer Peak, WAL). Nach [58].

elastische Streuzzeit τ_0 (die Lebensdauer eines Leitungselektrons im Eigenzustand des Impulses) kleiner als die Phasenkohärenzzeit τ_ϕ (die Lebensdauer im Eigenzustand der Energie) ist. Bei tiefen Temperaturen kann τ_0 um Größenordnungen kleiner sein als τ_ϕ . Ein Leitungselektron kann demnach mehrfach an Störstellen gestreut werden, bevor es seine Phaseninformation durch einen inelastischen Streuprozess (z. B. e-ph-Streuung oder Streuung an magnetischen Verunreinigungen) verliert. Eine mögliche Folge von Streuprozessen ist in der Abbildung 2.4 im Real- und k-Raum dargestellt. Die Wahrscheinlichkeit, das Elektron zur Zeit t am Ort \vec{r} zu finden ist [57]

$$P(\vec{r}, t) = \frac{1}{4\pi Dt} \cdot \exp\left(\frac{-\vec{r}^2}{4Dt}\right). \quad (2.34)$$

D ist die Diffusionskonstante. Die Wahrscheinlichkeit, dass sich das Elektron am Ursprung $\vec{r} = 0$ befindet, ist demnach $1/(4\pi Dt)$.

In der Abbildung 2.4 (a) ist ein möglicher Diffusionspfad dargestellt, bei dem ein Elektron nach n Streuprozessen zu seinem Ursprung zurückkehrt. In der Abbildung 2.4 (b) ist die gleiche Situation im reziproken Raum dargestellt. Nach n Streuprozessen und der Zeit $t = n\tau_0$ mit den jeweiligen Impulsüberträgen $\vec{g}_1, \vec{g}_2, \dots, \vec{g}_n$ wird der Wellenvektor über die Streuserie $\vec{k} \rightarrow \vec{k}'_1 \rightarrow \vec{k}'_2 \rightarrow \dots \rightarrow \vec{k}'_n \rightarrow -\vec{k}$ umgekehrt. Aufgrund des Wellencharakters der Elektronen kann eine Partialwelle des Elektrons mit gleicher Wahrscheinlichkeit den genau entgegengesetzten Pfad mit demselben Impulsübertrag, $\vec{g}_n, \dots, \vec{g}_1$ über die Serie $\vec{k} \rightarrow \vec{k}''_1 \rightarrow \vec{k}''_2 \rightarrow \dots \rightarrow \vec{k}''_n \rightarrow -\vec{k}$ durchlaufen, vorausgesetzt es gilt die Zeitumkehrinvarianz. Die Amplitude im Zustand $-\vec{k}$ ist für beide Streupfade identisch. Da inelastische Streuprozesse ausgeschlossen sind, befinden sich alle Zwischenzustände bei der gleichen Energie, sodass die zeitabhängige Phasenverschiebung $\Delta\phi = Et/\hbar$ für beide Wellen gleich ist. Aufgrund der Phasenkohärenz der Partialwellen können beide konstruktiv miteinander inter-

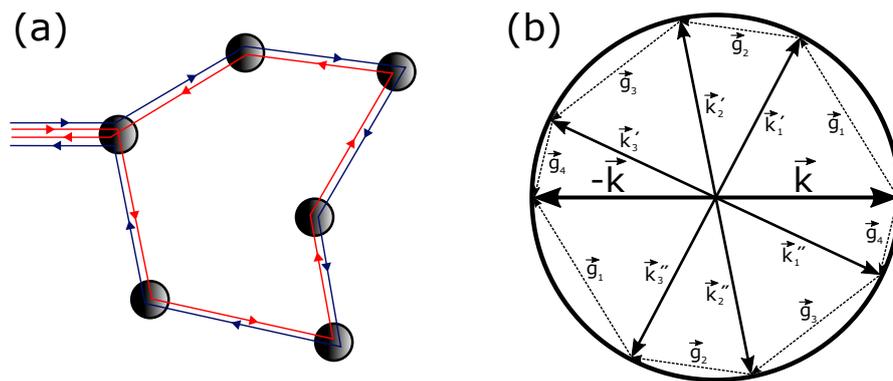


Abbildung 2.4: Schematische Darstellung der zeitinversiven Pfade bei schwacher (Anti-)Lokalisierung im Realraum (a) und im reziproken Raum (b).

ferieren, wodurch deren Amplituden A sich zu $|A' + A''|^2 = 4|A|^2$ summieren. Im Fall nicht kohärenter Überlagerung beträgt diese lediglich $2|A|^2$. Die Wahrscheinlichkeit das Elektron am Ursprung zu finden, nimmt in diesem Fall also den doppelten Wert an. Dies entspricht einer Wahrscheinlichkeit von $1/(2\pi Dt)$. Als Konsequenz ist das Elektron an diesem Ort lokalisiert und die Leitfähigkeit des Materials nimmt ab. Dieser Prozess wird als schwache Lokalisierung (engl. weak localization, Abk. WL) bezeichnet.

Anders stellt sich die Situation in Systemen mit starker Spin-Bahn-Kopplung (engl. spin-orbit-interaction Abk. SOI) dar, da sich in diesem Fall der Spin bei einem Streuprozess ändern kann. Die spinabhängigen Streuprozesse werden durch die Spin-Orbit-Streuzzeit τ_{so} beschrieben. Um die Wellenfunktion von Spin $1/2$ Teilchen in sich selbst zu überführen, muss die Phase der Spinwellenfunktion um 4π rotiert werden, wohingegen eine Rotation um 2π einen Vorzeichenwechsel des Spinzustands zur Folge hat. Als Konsequenz ist die Interferenz der Partialwellen, die beim Durchlaufen der zeitinversiven Pfade je eine Berry-Phase von π ansammeln und damit eine relative Rotation von 2π aufweisen, destruktiv. In diesem Fall hat sich die Aufenthaltswahrscheinlichkeit am Ursprung halbiert ($1/(8\pi Dt)$) wodurch die Leitfähigkeit des Materials zunimmt. Dieser Prozess wird als schwache Antilokalisierung (engl. weak anti-localization Abk. WAL) bezeichnet. WAL wird beobachtet falls $\tau_{so} \ll \tau_\phi$ ist. Ein weiterer möglicher Prozess ist die Streuung an magnetischen Verunreinigungen, der durch die Streuzzeit τ_m beschrieben wird. An solchen Verunreinigungen wird die Phasenbeziehung der beiden Partialwellen zerstört, wodurch keine kohärente Überlagerung mehr stattfinden kann.

Dieses Interferenzexperiment kann durch Anlegen eines externen Magnetfeldes beeinflusst werden, da dieses die Phasenbeziehung der beiden Partialwellen stört und somit für hinreichend große Felder den Effekt verschwinden lässt. In einem senkrecht zur Probenoberfläche angeordneten Magnetfeld ist die Phasenverschiebung $\Delta\phi = 2e\Phi/\hbar$ proportional zum magnetischen Fluss durch die Fläche A , die durch die Diffusionspfade umschlossen wird.

In der Abbildung 2.3 ist der Einfluss des magnetischen Feldes auf die Leitfähigkeit für WL und WAL dargestellt. Im Fall von WL nimmt die Leitfähigkeit mit steigendem Magnetfeld zu, während sie für WAL abnimmt.

In dieser Arbeit wird die Abhängigkeit der Leitfähigkeit dünner Filme von magnetischen Feldern, die sowohl senkrecht als auch parallel zur Oberfläche orientiert sind, untersucht. Da sich die Abhängigkeiten je nach Orientierung ändern, werden im Folgenden theoretische Modelle für beide Fälle erläutert.

Das erste Modell von S. Hikami, A. I. Larkin und Y. Nagaoka (HLN- oder Hikami-Modell) beschreibt die Änderung der Leitfähigkeit eines zweidimensionalen Systems in einem senkrechten Feld unter der Berücksichtigung der vier Streuzeiten $\tau_0, \tau_{so}, \tau_\phi, \tau_m$ [59] zu:

$$\Delta\sigma(B)_\perp = -\frac{e^2}{2\pi^2\hbar} \left[\Psi\left(\frac{1}{2} + \frac{B_1}{B}\right) - \frac{3}{2}\Psi\left(\frac{1}{2} + \frac{B_2}{B}\right) + \frac{1}{2}\Psi\left(\frac{1}{2} + \frac{B_3}{B}\right) \right] \quad (2.35)$$

wobei

$$B_1 = B_0 + B_{so} + B_m \quad (2.36)$$

$$B_2 = 4/3B_{so} + 2/3B_m + B_\phi \quad (2.37)$$

$$B_3 = 2B_m + B_\phi. \quad (2.38)$$

Die magnetischen Felder $B_n \tau_n = \hbar/4eD$ beschreiben den Kompensationsbereich der entsprechenden Komponenten $n = 0, so, \phi, m$. Die Funktion Ψ ist die Digammafunktion. Diese ist definiert über: $\Psi(x) := d_x \ln(\Gamma(x))$. Im Grenzfall, dass beide inelastischen Streuzeiten sehr viel größer als die elastische bzw. Spin-Orbit-Streuzeit sind ($\tau_{so}, \tau_0 \ll \tau_\phi, \tau_m$) vereinfacht sich Gleichung (2.35) zu [59]:

$$\Delta\sigma(B_\perp) = \alpha \frac{e^2}{2\pi^2\hbar} \left[\psi\left(\frac{1}{2} + \frac{B_\phi}{B}\right) - \ln\left(\frac{B_\phi}{B}\right) \right] \quad (2.39)$$

Der Parameter α nimmt im Fall starker Spin-Bahn-Wechselwirkung den Wert $-0,5$ an und es liegt schwache Antilokalisierung vor bzw. 1 im Fall schwacher Spin-Bahn-Wechselwirkung, wobei schwache Lokalisierung vorliegt. Trägt mehr als ein Kanal zum Transport bei, kann α auch andere Werte annehmen. Dabei ist zu unterscheiden, ob die Kanäle gekoppelt oder entkoppelt sind. Im entkoppelten Regime mit zwei WAL Kanälen führt jeder Kanal i zu einer Korrektur der Leitfähigkeit $\Delta\sigma_i$, wobei die gesamte Änderung dann $\Delta\sigma_{Gesamt} = \Delta\sigma_1 + \Delta\sigma_2$ beträgt. Als Resultat beträgt $\alpha = (-0,5) + (-0,5) = -1$. Gekoppelte Systeme verhalten sich im Transport wie ein einziger Kanal, weswegen in diesem Fall α Werte zwischen -1 und 1 annehmen kann.

Systeme aus ge- oder entkoppelten Kanälen werden z. B. durch topologische Isolatoren realisiert. Bei dieser Klasse von Materialien ist die gesamte Oberfläche leitend. In dünnen Schichten können die sich gegenüberliegenden Flächen miteinander wechselwirken. Da in den üblichen Materialsystemen wie z. B. Bi_2Se_3 oft zusätzlich parasitäre Volumenkanäle existieren, finden sich in der Literatur auch Beispiele für

$-0,5 < \alpha < -1$, bei denen durch Gatespannung verursachte Änderung des chemischen Potentials eine Kopplung bzw. Entkopplung der Transportkanäle vorgenommen werden kann [60, 61]. Weiterhin kann es in topologischen Isolatoren zu einer Hybridisierung des Grenzflächen- und Oberflächenzustandes kommen. In diesem Fall verliert das System seine topologisch geschützten Zustände, was mit der Öffnung einer Energielücke einhergeht [34, 62]. In einem solchen Fall wird für α ein Wert von 0 beobachtet, da kein leitender Kanal vorhanden ist. Somit verschwindet die Lokalisierung.

Für eine anschaulichere Interpretation der Magnetoleitwertdaten in den Kapiteln 6 und 7 wird die mit dem Streufeld B_ϕ verknüpfte Phasenkohärenzlänge $l_\phi = \sqrt{\hbar/4eB_\phi}$ verwendet.

2.2.4.1 Kohärenter Magnetotransport im parallelen Magnetfeld

Schwache (Anti-)Lokalisierung kann ebenfalls in einem parallel zur Probenoberfläche orientierten Magnetfeld aufgrund der endlichen Ausdehnung der Schicht auftreten. Der Grund für die Kopplung des magnetischen Feldes mit der Phase der Ladungsträger ist der Aharonov-Bohm-Effekt und die damit verbundenen Diffusionspfade mit einem Wirkungsquerschnitt senkrecht zum Magnetfeld. Dieser Sachverhalt ist in der Abbildung 2.5 (a) skizziert. Die Änderung der Leitfähigkeit wurde zuerst von Altshuler und Aronov [63] (AA) sowie unabhängig von Maekawa und Fukuyama [64] für verunreinigte Metalle beschrieben. Später wurde diese Theorie für metallische Filme von Beenakker und van Houten (BvH) [65] und Bilagenstrukturen von Raichev und Vasilopoulos (RV) [66] erweitert. Eine Zusammenfassung aller theoretischen Arbeiten erfolgte durch Lin et al. [41]. Die Änderung der Leitfähigkeit im magnetischen Feld ergibt sich zu:

$$\Delta\sigma(B_{\parallel}) = \alpha \frac{e^2}{2\pi^2\hbar} \ln \left(1 + \beta \frac{ed^2}{4\hbar B_\phi} B^2 \right) \quad (2.40)$$

Dabei ist d die Schichtdicke. Der Parameter β hängt von dem Verhältnis l_e/d ab, wobei l_e die elastische mittlere freie Weglänge der Ladungsträger ist. Die Autoren unterscheiden weiterhin die unterschiedlichen Regime anhand dieses Verhältnisses.

Im Altshuler und Aronov Regime ergibt sich $\beta_{AA} = 1/3$. Dieses liegt vor, falls die mittlere freie Weglänge der Ladungsträger sehr klein gegen die Schichtdicke d ist ($l_e/d \ll 1$) und tritt in stark verunreinigten Filmen auf.

Dugaev und Khmel'nitskii betrachteten den Fall großer mittlerer freier Weglängen ($l_e/d \gg 1$). Aufgrund der Grenzflächenstreuung ergibt sich in diesem Regime eine andere Abhängigkeit von $\beta_{DK} = 1/16 \cdot d/l_e \ll 1$.

Eine Überschneidung dieser beiden Regime wurde von Beenakker und van Houten mit der Einschränkung $d \sim l_e$ beschrieben. Der Parameter $\beta_{BvH} \approx 1/12,1 \cdot d/l_e$ ist hierbei kleiner als β_{AA} und größer als β_{DK} .

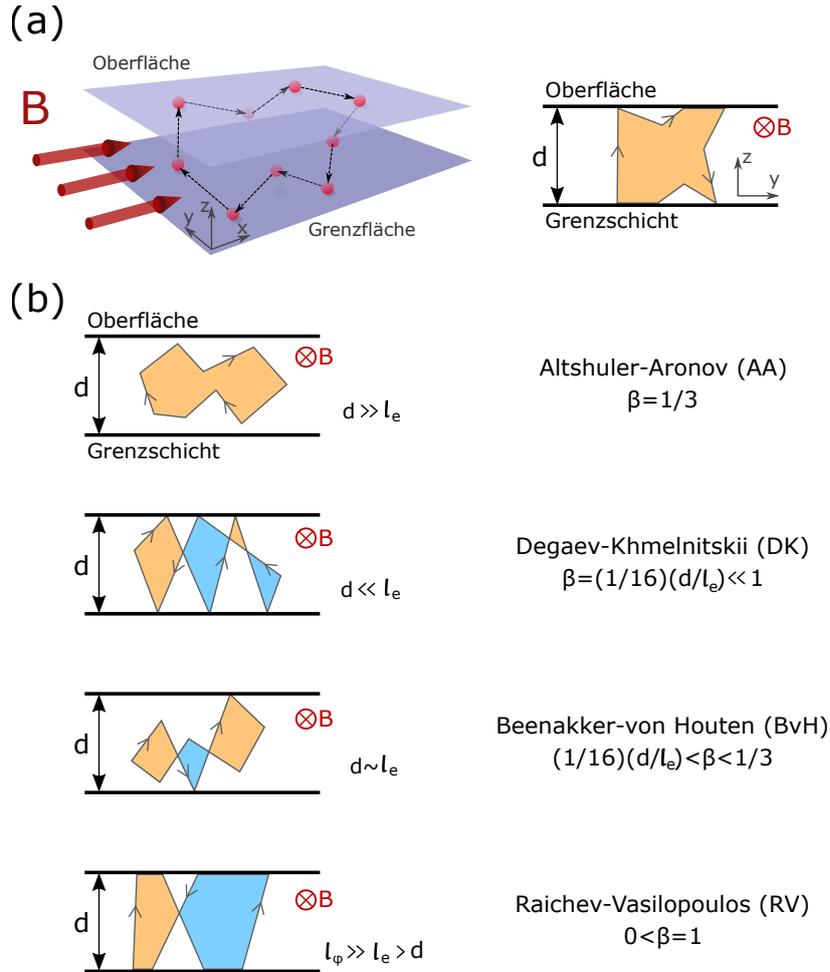


Abbildung 2.5: (a) Ein zeitinversiver Streupfad zwischen Oberflächen- und Grenzflächenzustand im parallelen Magnetfeld und die projizierte Fläche senkrecht zum B-Feld. (b) Transportregime in Abhängigkeit des Verhältnisses aus Schichtdicke d und mittlerer freier Weglänge eines Ladungsträgers l_e und die resultierende Größe des Parameters β . Nach [41].

Das letzte Regime, beschrieben von Raichev und Vasilopoulos, wurde für den Fall gekoppelter Quantentöpfe berechnet. Dieses spielt eine Rolle bei der Charakterisierung von TI's, bei denen Oberflächen- und Grenzflächenzustand existieren und miteinander wechselwirken. Der Parameter β unterscheidet sich dabei von den drei anderen Regimen und beträgt:

$$\beta = \frac{2(1+s)}{1+2s} - \frac{\ln(1+2s)}{s}. \quad (2.41)$$

Dabei beschreibt $s \equiv \tau_\phi/\tau_s$ die Kopplungsstärke zwischen den beiden Zuständen. Für eine starke Kopplung ($s \gg 1$) ist $\beta \sim 1$. Für eine schwache Kopplung ($s \ll 1$) gilt hingegen $\beta \sim 4/3(\tau_\phi/\tau_s)^2$.

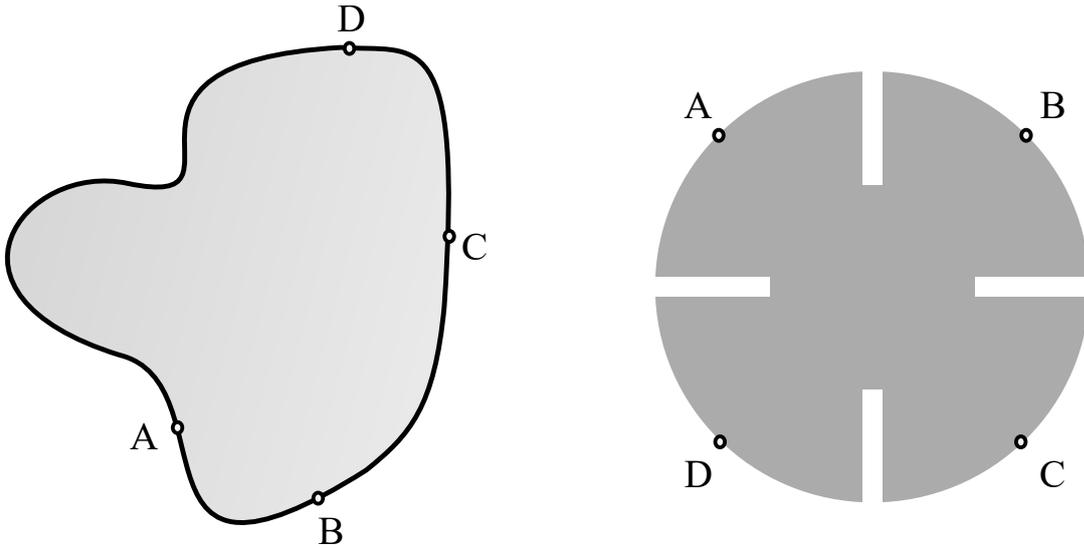


Abbildung 2.6: Beliebige geformte Proben mit Punktkontakten auf ihrem Rand (links). Kleeblattgeometrie, vorgeschlagen von Van der Pauw [67] (rechts).

2.2.5 Van der Pauw-Methode

Mit der Van der Pauw-Methode lässt sich der Flächenwiderstand und Hall-Koeffizient von beliebig geformten und homogen leitfähigen Schichten bestimmen. Die Grundvoraussetzung für deren Anwendung sind vier punktförmige Messkontakte am Rand der Probe sowie eine gleichmäßig dicke geschlossene Schicht. In der Abbildung 2.6 (a) ist diese Situation schematisch dargestellt. Van der Pauw konnte zeigen, dass unter diesen Bedingungen die Beziehung

$$\exp\left(-\frac{\pi}{\rho_s} R_{AB,CD}\right) + \exp\left(-\frac{\pi}{\rho_s} R_{BC,DA}\right) = 1 \quad (2.42)$$

gilt [67]. Dabei ist ρ_s der Schichtwiderstand und

$$R_{AB,CD} = \frac{U_{AB}}{I_{CD}} \quad R_{BC,DA} = \frac{U_{BC}}{I_{DA}} \quad (2.43)$$

die Widerstände mit kommutierten Kontakten. Daraus folgt für den Schichtwiderstand:

$$\rho_s = \frac{\pi}{\ln 2} \frac{R_{AB,CD} + R_{BC,DA}}{2} f\left(\frac{R_{AB,CD}}{R_{BC,DA}}\right). \quad (2.44)$$

Die Funktion f berücksichtigt die Asymmetrie der beiden Widerstände und kann Werte zwischen 0 und 1 annehmen. Für symmetrische Widerstände wird $f=1$ und der Zusammenhang vereinfacht sich zu:

$$\rho_s = \frac{\pi}{\ln 2} R_{AB,CD} \quad (2.45)$$

Van der Pauw schlug weiterhin eine besonders geeignete Probengeometrie zur effektiven Messung von Schichtwiderständen und Hall-Koeffizienten vor. Die Geometrie

ist in der Abbildung 2.6 (b) dargestellt. Die in dieser Arbeit verwendete Geometrie ist dieser Kleeblattform sehr ähnlich (vgl. Abbildung 4.5). Dadurch wird der gemessene Bereich auf die Probenmitte konzentriert und die Kontakte entsprechen der Voraussetzung eines punktförmigen Kontaktes.

2.3 SPINPOLARISIERTE ZUSTÄNDE

Die Bewegung von Ladungsträgern in Festkörpern wird durch bestimmte Symmetrien festgelegt. Die Rauminversionssymmetrie (\mathcal{P} -Symmetrie) bezeichnet die Invarianz der Energie eines Elektrons, unabhängig davon, in welche Raumrichtung es läuft und kann durch den Zusammenhang $E(\vec{k}, \uparrow) = E(-\vec{k}, \uparrow)$ ausgedrückt werden. Der Pfeil bezeichnet den Spinzustand des Elektrons. Die energetische Entartung von Zuständen mit unterschiedlichem Spin folgt dann aus der Zeitinversionssymmetrie (\mathcal{T} -Symmetrie). Diese besagt, dass die Energie von zwei entgegengesetzt laufenden Elektronen nicht vom Spinzustand abhängt und kann durch $E(\vec{k}, \uparrow) = E(-\vec{k}, \downarrow)$ beschrieben werden. Sind beide Symmetrien aktiv, folgt trivialerweise $E(\vec{k}, \uparrow) = E(\vec{k}, \downarrow)$. Die Aufhebung einer der beiden Symmetrien kann zur Spinpolarisation der Zustände führen. Dies kann beispielsweise durch Anlegen eines magnetische Feldes realisiert werden, das die \mathcal{T} -Symmetrie bricht.

2.3.1 Der Rashba-Effekt

Der Grundgedanke aus der Arbeit von E. I. Rashba [68] war die Realisierung spinpolarisierter Zustände ohne das magnetische Feld als Hilfsmittel. Um die Spinentartung aufzuheben, muss demnach die \mathcal{T} - oder \mathcal{P} -Symmetrie gebrochen werden. Genau dies geschieht an einer Oberfläche. Die Spinentartung wird aufgrund des Bruchs der \mathcal{P} -Symmetrie aufgehoben. Durch die Terminierung des Kristalls entsteht an seiner Oberfläche ein Potentialgradient senkrecht zur Ebene, also ein lokales elektrisches Feld, welches auf die Elektronen in den Bändern wirkt. Im ruhenden Bezugssystem eines Elektrons wird aus diesem elektrischen Feld ein magnetisches Feld, das eine Zeeman-Aufspaltung der elektronischen Zustände entsprechend ihrer Spinausrichtung hervorruft. Es entsteht eine energetische Separation zwischen Spin-Up- und Spin-Down-Zuständen, die außerdem vom Impuls \mathbf{k} der Elektronen abhängt. Bei $\mathbf{k}=0$, also am Γ -Punkt verschwindet die Aufspaltung, da das effektive magnetische Feld verschwindet. Dieser Zusammenhang wird durch den Hamilton-Operator $H=H_0+H_{RB}$ beschrieben. Mit dem Hamilton-Operator des zweidimensionalen Elektronengases $H_0 = E_0 - \hbar^2/2m^*\nabla^2$ und dem zusätzlichen Rashba-Term $H_{RB} = -\hbar^2/4m^*c^2(\nabla V \times \mathbf{p})\sigma$ ergeben sich die neuen Eigenenergien des Systems zu:

$$E_{\pm}(\mathbf{k}) = E_0 + \frac{\hbar^2 \mathbf{k}^2}{2m^*} \pm \alpha_{RB} |\mathbf{k}|, \quad \alpha_{RB} = \frac{\hbar^2 k_0}{m^*} \quad (2.46)$$

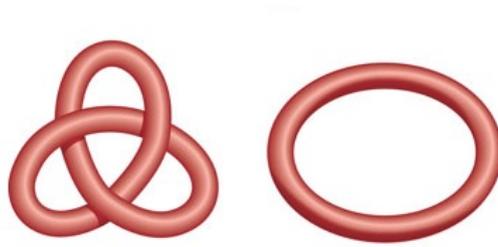


Abbildung 2.7: Topologie am Beispiel eines Knotens und eines Rings. Der Knoten ist topologisch nicht trivial, der Ring topologisch trivial. Die Abbildung wurde aus Referenz [70] übernommen.

Dabei ist E_0 das Energieminimum der Parabel, ∇V der Potentialgradient, σ die entsprechenden Pauli-Matrizen und m^* die effektive Elektronenmasse [69]. Die Spinrichtung der um $2k_0$ separierten Energieparabeln liegt in der Ebene und steht senkrecht auf dem Vektor \mathbf{k} . In einer Fläche konstanter Energie entstehen zwei konzentrische Kreise, deren Spinrichtung im inneren (äußeren) Kreis rechts (links) herum rotiert.

2.3.2 Topologische Isolatoren

Die Topologie ist ein Teilgebiet der Mathematik, das sich mit den Eigenschaften von räumlichen Strukturen unter stetiger Deformation befasst und diese klassifiziert. Beispielsweise gehören eine Orange und eine Schale zur gleichen topologischen Klasse, unterscheiden sich aber von einem Donut oder einer Kaffeetasse, die beide ein Loch aufweisen. Außerdem wird zwischen topologisch trivialen und nicht trivialen Materialien unterschieden. Ein einfaches Beispiel ist in der Abbildung 2.7 durch den topologisch trivialen Ring und den topologisch nicht trivialen Knoten dargestellt. Um eine Klassifizierung der Materialien mit unterschiedlicher Topologie vorzunehmen, werden ganzzahlige topologische Invariante eingeführt. Werden ein topologisch triviales und nicht triviales Material in Kontakt gebracht, muss sich die topologische Invariante beim Überschreiten der Grenzfläche ändern und führt daher zu interessanten Eigenschaften an der Grenzfläche.

Dieses Prinzip gilt ebenfalls für Festkörper. Die Wellenfunktionen der elektronischen Zustände von TIs spannen einen Hilbertraum mit nicht trivialer Topologie auf. Durch die Terminierung des Kristalls entsteht eine Grenzfläche. Ist diese im Kontakt mit einem topologisch trivialen Isolator, z. B. dem Vakuum, schließt sich die Bandlücke zwangsläufig und führt zu metallischen Zuständen an den Grenzflächen [70].

Die Klassifizierung dreidimensionaler topologischer Zustände erfolgt über Z_2 -Invarianten. Im Fall trivialer Topologie gilt $Z_2=0$, während für nicht triviale Topologie $Z_2=1$ gilt. Wichtige Voraussetzungen für einen TI ist eine starke Spin-Bahn-

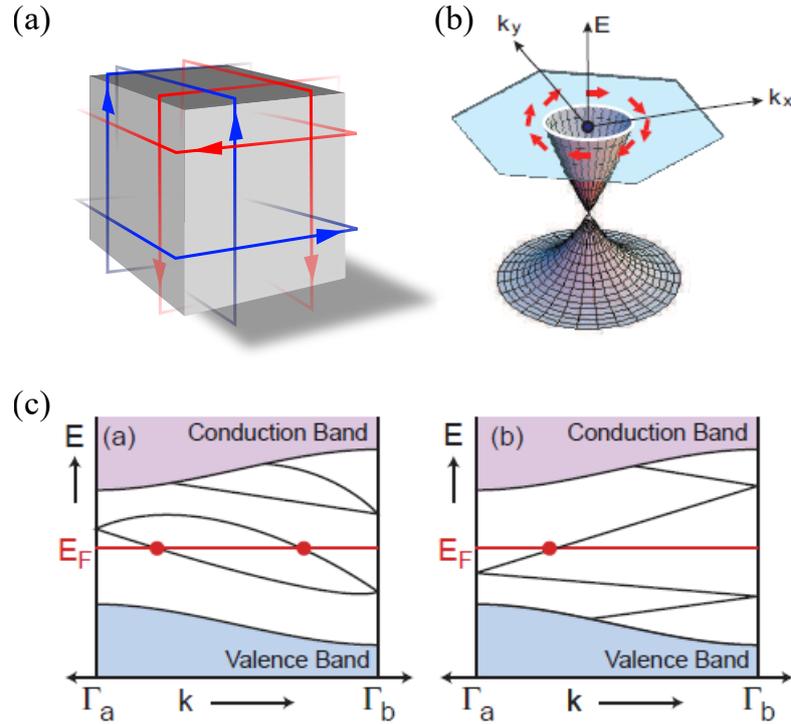


Abbildung 2.8: (a) 3D topologischer Isolator mit spinpolarisierter Oberfläche und isolierendem Volumen. (b) Helikale Spinpolarisation des Oberflächenzustandes. (c) Dispersion zwischen zwei TRIM $\Gamma_a = 0$ und $\Gamma_b = \pi/a$. Im topologisch trivialen Fall (links) existiert eine gerade Anzahl an Schnittpunkten mit E_F . Im topologisch nicht trivialen Fall (rechts) ist die Anzahl ungerade. Die Abbildungen (b) und (c) wurden aus Referenz [72] übernommen.

Aufspaltung sowie die Anwesenheit der \mathcal{T} -Symmetrie. Da der \mathcal{T} -Operator Θ für Fermionen die Eigenschaft $\Theta^2 = 1$ hat, folgt für den Bloch Hamilton-Operator $H(-\mathbf{k}) = \Theta H(\mathbf{k}) \Theta^{-1}$, was bedeutet, dass die Energiebänder in Paaren auftreten und bei $+\mathbf{k}$ und $-\mathbf{k}$ energetisch entartet sind [71]. Diese Paare werden auch als Kramers-Paare bezeichnet. Die Punkte der Brillouin-Zone an denen \mathbf{k} und $-\mathbf{k}$ äquivalent sind, werden als TRIM (engl. *time reversal invariant momentum*) bezeichnet. Die Anzahl der TRIM, welche die Fermi-Energie schneiden, sind mit den Z_2 -Invarianten verbunden. Dabei folgt für eine gerade Anzahl von Schnittpunkten $Z_2=0$ und für eine ungerade Anzahl $Z_2=1$ (vgl. Abbildung 2.8 (c)). Diese Bedingung erlaubt die experimentelle Bestimmung eines TI durch Messungen der Bandstruktur mittels ARPES.

Eine weitere wichtige Eigenschaft der TI ist deren helikale Spinpolarisation. In der Abbildung 2.8 (b) ist diese schematisch dargestellt. Da die Spinrentartung des Oberflächenzustandes aufgehoben ist und die Spinrichtung in der Ebene senkrecht auf dem Wellenvektor \mathbf{k} steht, ist die Rückstreuung zwischen $-\mathbf{k}$ und \mathbf{k} Zuständen verboten. Dies ist eine direkte Folge aus dem Kramers-Theorem. Diese Bedingung erlaubt einen dissipationslosen, spinpolarisierten Stromfluss in der Oberfläche. Daher

sind die Oberflächenzustände von topologischen Isolatoren sehr leitfähig und robust gegenüber Störungen und man bezeichnet sie als topologisch geschützt [27, 72].

2.4 XMCD

In diesem Abschnitt wird eine kurze Einführung in die Messmethode *X-Ray Magnetic Circular Dichroism* (XMCD) gegeben. Diese dient der Bestimmung von magnetischen Momenten und Anisotropien. Mithilfe einfacher Summenregeln können sogar Orbital- (m_L) und Spinnmoment (m_S) separat analysiert werden.

Bei der Röntgenabsorption werden Photonen genutzt, um elektronische Übergänge in Atomen anzuregen. In der Abbildung 2.9 (a) ist der Prozess am Beispiel eines $2p \rightarrow 3d$ -Übergangs mit linear polarisiertem Licht schematisch dargestellt. Bei Anwesenheit von Spin-Bahn-Wechselwirkung ist die Entartung der p-Kernniveaus aufgehoben, sodass Übergänge zwischen den $2p_{3/2}$ - und $2p_{1/2}$ -Zuständen in unbesetzte $3d$ -Zustände angeregt werden können. Diese beiden Absorbptionskanten werden als L_3 - bzw. L_2 -Kante bezeichnet und können um bis zu 15 eV separiert sein. Im Absorptionsspektrum, dargestellt im unteren Teil der Abbildung 2.9 (a), tauchen beide Kanten mit unterschiedlicher Intensität auf, was eine Folge der Zustandsdichten ist ($2p_{3/2}$ ist mit vier Elektronen besetzt, $2p_{1/2}$ mit zwei). Dieses Spektrum wird auch als *White-Line* bezeichnet. Von der *White-Line* wird wegen des Kantensprungs an der L_3 - und L_2 -Kante eine Stufenfunktion abgezogen.

In einem Röntgenabsorptionsexperiment mit links- bzw. rechts zirkular polarisiertem Licht werden diese inneratomare Übergänge mit spinpolarisierten Photoelektronen durchgeführt. Die Spinpolarisation ist eine Folge der Drehimpulserhaltung bei elektrischen Dipolübergängen und wird durch folgende Auswahlregeln festgelegt:

$$\Delta l = \pm 1; \Delta m_l = 0, \pm 1 \quad \Delta s = 0; \Delta m_s = 0 \quad (2.47)$$

Der Drehimpuls eines rechts (links) zirkular polarisierten Photons beträgt $+\hbar$ ($-\hbar$), sodass bei dessen Absorption $\Delta m_l = +1$ ($\Delta m_l = -1$) gelten muss. Die möglichen Übergänge sind also begrenzt und die Übergangswahrscheinlichkeiten werden durch die jeweiligen Drehimpuls-Matrixelemente gegeben [73]. Bei der Absorption eines rechts zirkular polarisierten Photons an der L_3 -Kante werden mehr Spin-Up als Spin-Down Elektronen erzeugt (62,5 %/37,5 %), während an der L_2 -Kante mehr Spin-Down als Spin-Up Elektronen angeregt werden (75 %/25 %). Für links zirkular polarisierte Photonen sind diese Verhältnisse genau entgegengesetzt.

Um die zugrunde liegenden Physik dieser Messmethode zu beschreiben, wird im Folgenden das von J. Stöhr vorgeschlagene 2-Stufen-Modell wiedergegeben [74]. Es handelt sich um ein Einelektronenmodell, welches in der Abbildung 2.9 schematisch dargestellt ist.

Im ersten Schritt wird der Drehimpuls des rechts- bzw. links zirkular polarisierten Photons auf ein Elektron übertragen. Stammt das Elektron aus einem Spin-Bahn

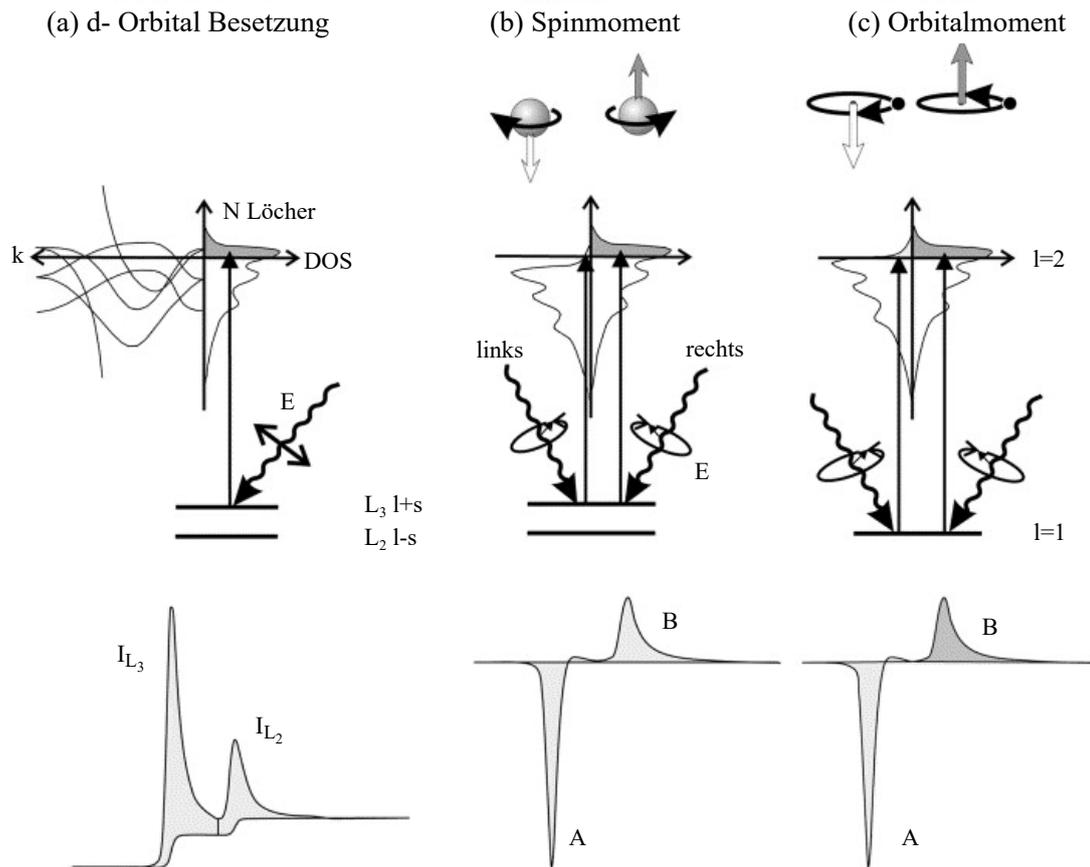


Abbildung 2.9: XMCD Prinzip. (a) Absorption eines Photons linearer Polarisation an der L-Kante. In (b) und (c) ist die Situation bei Absorption eines zirkular polarisierten Photons gezeigt. Die Intensitäten A und B sind über die Summenregeln mit den magnetischen Momenten verknüpft. Die Abbildung wurde aus Referenz [74] übernommen.

aufgespaltenen Niveau, wird der Drehimpuls des Photons aufgrund der Spin-Bahn-Wechselwirkung zum Teil auf den Spin übertragen. Die Spinpolarisation an den Absorptionskanten L_3 und L_2 ist daher entgegengesetzt.

Die magnetischen Eigenschaften gehen im zweiten Schritt ein. Hierbei dient das Valenzband als Spindetektor. Da bei elektrischen Dipolübergängen keine Änderung des Spins erlaubt ist, können Spin-Up (Spin-Down) Photoelektronen aus dem Valenzband nur in Spin-Up (Spin-Down) Löcher der d-Schale angeregt werden. Die Quantisierungsachse des Detektors wird dabei durch die Richtung der Magnetisierung vorgegeben, sodass für eine parallele Ausrichtung mit dem Photonenspin maximaler Dichroismus entsteht.

Dieser Sachverhalt ist in der Abbildung 2.9 (b) schematisch dargestellt. Im oberen Teil sind die Zustandsdichten der Spin-Up und Spin-Down Bänder dargestellt. Für ein Elektron mit passendem Spin ist die Übergangswahrscheinlichkeit höher. Die Differenz der Intensitäten bei der Absorption von rechts- und links zirkular polarisiertem Licht wird mit A (L_3) und B (L_2) bezeichnet. Die unterschiedlichen Vorzei-

chen der Intensitäten A und B resultiert aus der entgegengesetzten Polarisation der p-Zustände und die Intensitäten sind proportional zu der Anzahl N der 3d-Löcher und über die Summenregel

$$m_S^{\text{eff}} = -\frac{6 \int_{L_3} (c_+ - c_-) - 4 \int_{L_3+L_2} (c_+ - c_-)}{\int_{L_3+L_2} (c_+ + c_-)} N; \quad m_S^{\text{eff}} = m_S + 7 \langle T_z \rangle, \quad (2.48)$$

mit dem effektiven Spinmoment m_S^{eff} verknüpft [75]. Dabei sind c_+ und c_- die Absorption von links- bzw. rechts zirkular polarisierten Röntgenstrahlen. Falls der Erwartungswert des magnetischen Dipoloperators $7 \cdot \langle T_z \rangle \ll 1$, entspricht das effektive Spinmoment dem tatsächlichen Spinmoments m_S . Dies ist eine gute Näherung für magnetische Volumenkristalle, kann aber für einzelne Atome an Oberflächen nicht gegeben sein [76]. Eine weitere Voraussetzung ist die Reinheit der $2p_{3/2}$ und $2p_{1/2}$ Zustände, d. h. eine ausreichende energetische Separation beider Kanten, sodass die integralen Intensitäten gut bestimmt werden können.

Ähnliches gilt in Bezug auf das Bahnmoment. Gibt es ein endliches Orbitalmoment in der d-Schale, fungiert diese als Bahnmomentdetektor für das Photoelektron. Dies ist in der Abbildung 2.9 (c) dargestellt. Durch die Summierung über die Intensitäten der L_3 - und L_2 -Kante wird der Spin eliminiert. Das Bahnmoments ist über die Summenregel

$$m_L = -\frac{4 \int_{L_3+L_2} (c_+ - c_-)}{3 \int_{L_3+L_2} (c_+ + c_-)} \cdot N \quad (2.49)$$

gegeben [77].

In diesem Kapitel werden die verwendeten Materialsysteme vorgestellt. Zunächst wird ein kurzer Überblick über das für das Filmwachstum benutzte Substrat Si(111), sowie die Herstellung der (7×7)-Rekonstruktion gegeben. Als nächstes werden kristallografische Eigenschaften von Bismuthvolumenkristallen und deren Änderung bei dem Dünnschichtwachstum diskutiert. Daraufhin werden die elektronischen Eigenschaften dünner Bismuthfilme vorgestellt. Zuletzt werden grundlegende Eigenschaften topologischer Isolatoren (TI) anhand des Beispiels $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ beschrieben.

3.1 SILIZIUM(111) - (7×7)-REKONSTRUKTION

Silizium ist ein indirekter Gruppe IV Halbleiterkristall. Es besteht aus zwei um $1/4$ der Raumdiagonalen verschobenen kubisch flächenzentrierten (fcc) Gittern, wobei jedes Atom durch vier weitere Atome in einer tetraedrischen Anordnung kovalent gebunden ist. Es kristallisiert daher in der Diamantstruktur. Die Gitterkonstante beträgt $a_{\text{Si}} = 5,43 \text{ \AA}$ [78]. Silizium hat eine indirekte Bandlücke von $1,17 \text{ eV}$. Hierbei ist jedoch das Leitungsbandminimum gegenüber dem Valenzbandmaximum auf der k -Achse verschoben, d. h. bei der thermischen oder optischen Anregung muss jeweils ein energetisch passendes Phonon an dem Prozess teilnehmen. Silizium wird daher als indirekter Halbleiter bezeichnet.

Für das heteroepitaktische Wachstum dünner Schichten werden in dieser Arbeit Si(111)-Proben verwendet. Diese zeichnen sich durch die energetisch günstigste (7×7)-Oberflächenrekonstruktion aus. Diese Überstruktur beinhaltet 49 Atome in der zweidimensionalen Einheitszelle und kann durch das DAS-Modell (*Dimer Atom Stacking-Fault Model*) beschrieben werden [79].

Zur Erzeugung der (7×7)-Rekonstruktion wird die Probe bei einem Basisdruck von $1 \cdot 10^{-1} \text{ mbar}$ mehrfach für einige Sekunden auf etwa 1370 K erhitzt, wodurch die native Oxidschicht der Oberfläche desorbiert. Nach jedem dieser Heizschritte wird die Temperatur für etwa eine Minute zwischen 1070 K und 1170 K gehalten. In diesem Temperaturbereich wird die (7×7)-Rekonstruktion gebildet.

In der Abbildung 3.1 ist ein LEED-Beugungsbild einer derart behandelten Probe dargestellt. Die gelben Kreise markieren die hexagonale (1×1)-Einheitszelle. Diese zeichnet sich durch den Reihenabstand von $a'_{\text{Si}(111)} = 3,33 \text{ \AA}$, welcher sich gemäß $a_{\text{Si}}/\sqrt{2} = a_{\text{Si}(111)}$ und $a'_{\text{Si}(111)} = a_{\text{Si}(111)} \cdot \cos(30^\circ)$, ergibt. Im unteren Teil der Abbildung ist ein Linienscan von (00) nach (10) dargestellt. Die Reflexe der

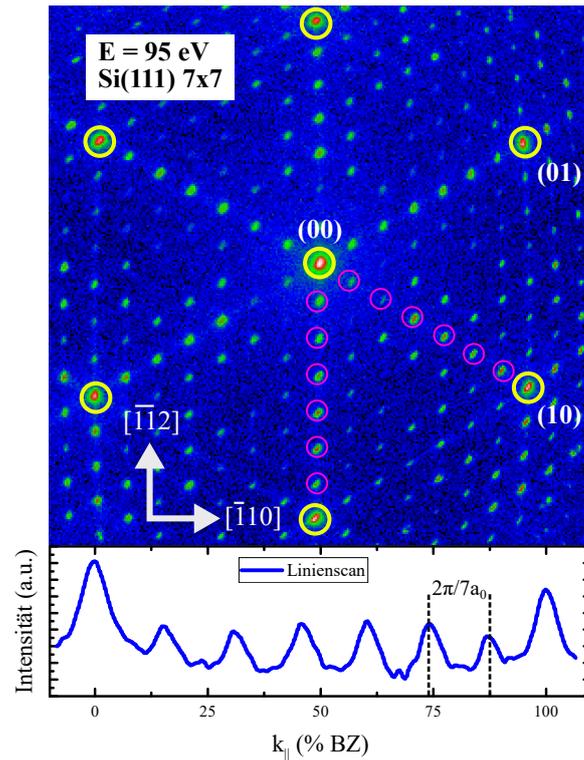


Abbildung 3.1: Oben: SPA-LEED-Beugungsbild der Si(111) (7×7)-Oberfläche. Die hexagonale (1×1)-Zelle ist durch die gelben Kreise, die (7×7)-Reflexe durch magentafarbene Kreise markiert. Unten: Linienscan zwischen (00) und (01) Reflex.

(7×7)-Struktur, markiert durch magentafarbene Kreise, haben dabei den Abstand $k_{\parallel} = 2\pi/7a'_{\text{Si}(111)}$, bzw. 14,3 % BZ.

Auf derart präparierten Substraten findet das Bi(111)- und Bi_{1-x}Sb_x-Wachstum statt. Um sicherzustellen, dass diese nicht zum Transport beitragen, werden niedrig dotierte Siliziumproben ($\rho > 1000 \Omega\text{cm}$) verwendet.

3.2 BISMUTH(111) UND ANTIMON(111) - KRISTALLSTRUKTUR

Bismuth und Antimon sind Schwermetalle der fünften Hauptgruppe. Beide kristallisieren in der rhomboedrischen (A7) Struktur mit einer zweiatomigen Basis und können aus zwei ineinander verschachtelten kubisch flächenzentrierten Gittern (fcc) konstruiert werden, die entlang der trigonalen Achse verschoben und gestreckt sind. Es entsteht eine gekräuselte Bilagenstruktur. In der Abbildung 3.2 (a) ist die Kristallstruktur schematisch dargestellt und die Gitterparameter für Bismuth eingetragen. Die roten Vektoren markieren die hexagonale Basis und sind durch die Gitterkonstanten $a=4,535 \text{ \AA}$ und $c=11,814 \text{ \AA}$ (Antimon: $a=4,308 \text{ \AA}$ und $c=11,274 \text{ \AA}$) charakterisiert [80, 81], wobei die Bilagenabstände $3,94 \text{ \AA}$ und $3,73 \text{ \AA}$ betragen. Die blauen Vektoren markieren die rhomboedrische Basis. Der Winkel zwischen den primitiven Vektoren ist α . Eines der Basisatome ist per Definition am Koordinatenursprung, das

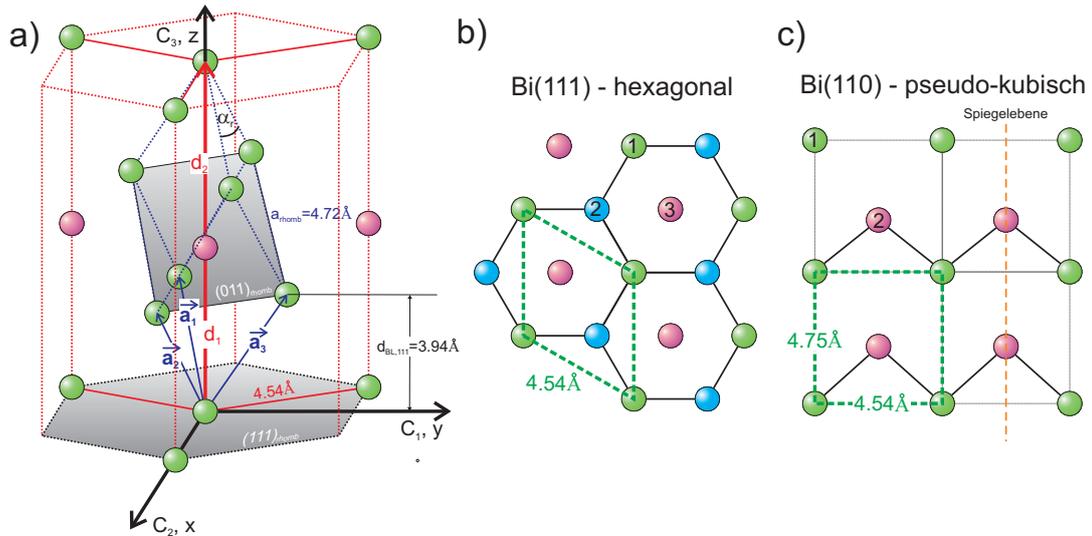


Abbildung 3.2: (a) Kristallstruktur von Bismuth. Die roten Linien zeigen die Achsen des hexagonalen Gitters, die blauen Linien die des rhomboedrischen Gitters. Die Projektionen der (111) Ebene (b) und der pseudokubischen (110) Ebene. Die Abbildungen wurde aus Referenz [51] übernommen.

zweite an der Position $(\mathbf{a}_1 + \mathbf{a}_2 + \mathbf{a}_3)d_1/(d_1 + d_2)^1$. Mit $d_1/d_2 = 0,88$, $\alpha = 57,35^\circ$ und $a_{rh} = 4,724 \text{ \AA}$ [80, 82] kann das System vollständig beschrieben werden. Die Einheitsvektoren können mit den hexagonalen Gitterkonstanten gemäß

$$\mathbf{a}_1 = \left(-a/2, -a\sqrt{3}/6, c/3\right) \quad \mathbf{a}_2 = \left(a/2, -a\sqrt{3}/6, c/3\right) \quad \mathbf{a}_3 = \left(0, a\sqrt{3}/3, c/3\right) \quad (3.1)$$

ausgedrückt werden. Aufgrund der unterschiedlichen Gitterkonstanten von Antimon und Bismuth ändert sich bei deren Mischung die Gitterkonstante der Legierung linear mit der Sb-Konzentration. Dabei wird die rhomboedrische Kristallstruktur beibehalten [83] (vgl. Abbildung 3.5 (a)).

Die Elektronenkonfiguration von Bismuth ist $[\text{Xe}]4f^{14}5d^{10}6s^26p^3$. Die zweiatomige Basis der rhomboedrischen Struktur liefert zwei gefüllte s- und drei gefüllte p-Bänder und sollte demnach halbleitenden Charakter aufweisen. Die Verzerrung der Gitterparameter entlang der trigonalen Achse führt jedoch zu einem halbmetallischen Verhalten von Bismuth. Am T- und L-Punkt der Brillouin-Zone entstehen Elektronentaschen bzw. eine Lochtasche. Die Volumenbrillouin-Zone von Bismuth ist in der Abbildung 3.3 dargestellt. Wie zu erkennen ist, sind diese Taschen sehr schmal und nehmen nur einen sehr kleinen Teil des Brillouin-Zonenvolumens ein. Die Fermi-Energien betragen $27,2 \text{ meV}$ für Elektronen und $10,8 \text{ meV}$ für Löcher, was zu einer sehr geringen Ladungsträgerkonzentration $3 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ und sehr geringen effektiven Massen $m^* = 0,003 \cdot m_e$ führt [1].

1 Die Vektoren $d_{1/2}$ bezeichnen die nächsten bzw. übernächsten Nachbarabstände (siehe Abbildung 3.2 (a))

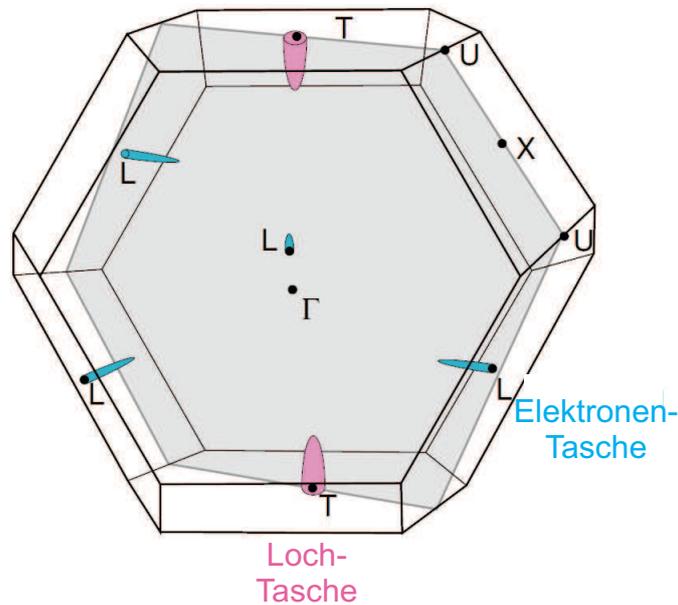


Abbildung 3.3: Volumenbrillouin-Zone von Bismuth. Die Abbildung wurde aus Referenz [1] übernommen.

3.2.1 Dünne $\text{Bi}(111)$ -Filme

Aufgrund der interessanten elektronischen Eigenschaften ist Bismuth schon sehr lange im Fokus der Wissenschaft. Das Erzeugen von dünnen Schichten führt bei Bismuth zu einer Aufspaltung und energetischen Verschiebung der Zustände, sodass eine Bandlücke entstehen kann. Dieser Halbmetall-Halbleiter Übergang wurde bereits 1967 von Sandomirskii vorhergesagt [2] und ist bis heute ein Thema der Forschung. Der Grund dafür ist die Bildung eines Oberflächenzustandes durch Verlust der Inversionssymmetrie in dünnen Filmen. Der Oberflächenzustand liegt innerhalb der Bandlücke und bildet leitende Kanäle an verschiedenen Symmetriepunkten der Brillouin-Zone. In der Abbildung 3.4 (a) ist eine Skizze der Fermi-Fläche eines dünnen Bismuthfilms sowie in (b) eine ARPES-Messung [13] und in (c) ein energieabhängiger Plot der $\bar{\Gamma} - \bar{M}$ -Richtung dargestellt [4]. Die Fermi-Fläche zeichnet sich durch eine Elektronentasche am $\bar{\Gamma}$ -Punkt (S_1) sowie sechs hexagonal angeordneten länglichen Löchertaschen (S_2) in $\bar{\Gamma} - \bar{M}$ -Richtung aus. In der gleichen Richtung befinden sich weitere Elektronentaschen (S_1) am Brillouinzonrand. Da die beiden Oberflächenbänder S_1 und S_2 die Fermikante viermal durchstoßen, zeichnet dieser sich durch eine hohe Leitfähigkeit aus. Ast et al. bestimmen aus ihren ARPES-Messungen Ladungsträgerdichten von $n = 5,5 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ und $n = 1,1 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ [4], die in guter

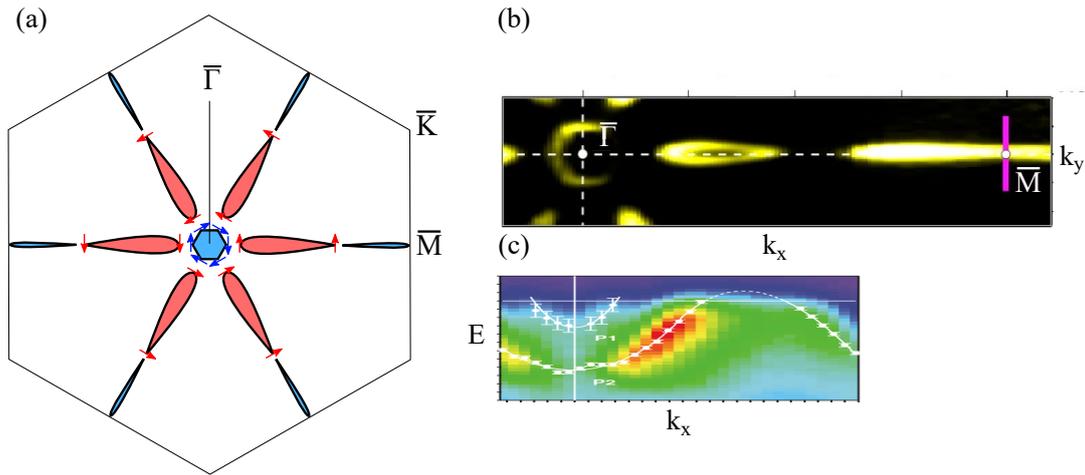


Abbildung 3.4: (a) Schematische Darstellung der Fermi-Fläche. Elektronentaschen in blau, bzw. Löchertaschen in rot. (b) ARPES-Messung der Fermi-Fläche eines dünnen Bismuthfilms auf Si(111). (c) Energieabhängiger Plot in $\bar{\Gamma} - \bar{M}$ -Richtung, der die Dispersion der Elektronen- und Lochtaschen zeigt. Abbildung (b) stammt aus Referenz [13] sowie (c) aus Referenz [4].

Übereinstimmung mit den über Magnetotransportmessungen von Komnik et al. bzw. Hofmann et al. gefundenen Werte $n = 2,75 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ und $p = 8 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ ist [1, 84]. Die Bänder des Oberflächenzustandes zeichnen sich weiterhin durch, im Vergleich zum Bismuthvolumenkristall, deutlich größere effektive Massen aus. Die Elektronentasche bei $\bar{\Gamma}$ hat eine Masse von $m_e^* = 0,22 \cdot m_e$ und die Lochtaschen $m_h^* = 0,5 \cdot m_e$ [4]. Dies hat zur Folge, dass auch die Ladungsträgerbeweglichkeiten drastisch reduziert werden.

Eine weitere interessante Eigenschaft des Oberflächenzustandes ist die Spinpolarisation. Diese wird durch den Rashba-Effekt hervorgerufen (in der Abbildung 3.4 (a) durch die Pfeile angedeutet). Dabei führt das Zusammenspiel aus gebrochener Inversionssymmetrie und der starken Spin-Bahn-Wechselwirkung in Bismuth zu einer Aufspaltung der Spinzustände in k_{\parallel} -Richtung. Auch diese Tatsache konnte durch Photoemissionsmessungen [85–88] sowie spinaufgelöster Photoemission (SRARPES) [89, 90] verifiziert werden. Die Spinpolarisation führt aufgrund der Zeitinversionssymmetrie ($E(\mathbf{k}, \uparrow) = E(-\mathbf{k}, \downarrow)$) zu einer stark unterdrückten Rückstreuung zwischen \mathbf{k} und $-\mathbf{k}$ Zuständen und sorgt für eine große Leitfähigkeit des Oberflächenzustandes. Zudem zeigt die Arbeit von Kimura et al., dass nicht nur der Oberflächenzustand, sondern auch die Valenzbänder spinpolarisiert sind [91].

Neueste Untersuchungen deuten weiterhin auf die Existenz eines Grenzflächenzustandes hin [13]. Takayama et al. folgern aus der Abnahme der Spinpolarisation des Oberflächenzustandes mit abnehmender Bismuthfilmdicke eine Hybridisierung aus Oberflächen- und Grenzflächenzustand, wobei der Grenzflächenzustand aus Symmetriegründen eine dem Oberflächenzustand entgegengesetzte Spinpolarisation aufweist. In der vorliegenden Arbeit werden weitere Hinweise auf diesen Zustand gefun-

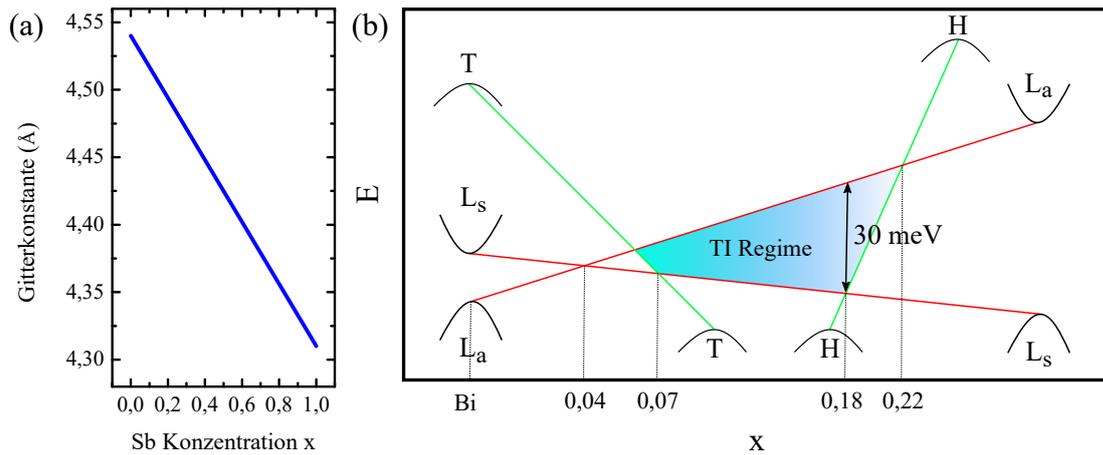


Abbildung 3.5: (a) Gitterkonstante als Funktion der Antimonkonzentration x [83]. (b) Phasendiagramm von $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ nach [27].

den und einige Effekte können sogar nur mithilfe seiner Eigenschaften verstanden werden.

Die Aufspaltung der Zustände durch den QSE wurde ebenfalls intensiv untersucht. Photoemissionsmessungen an den entsprechenden Symmetriepunkten zeigen nicht nur die Dispersionen des Oberflächenzustandes, sondern auch eindrucksvoll die aufgespaltenen Valenzbänder [13, 90].

3.2.2 $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ -Filme

Während sich die Kristallstruktur unter Beimischung von Antimon nur geringfügig ändert, gibt es drastische Änderungen der elektronischen Struktur. In der Abbildung 3.5 (b) ist ein Phasendiagramm von $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ dargestellt [27], welches diese Änderungen illustriert.

Die energetische Lage der Bänder ist gegen die Sb-Konzentration x aufgetragen. Für $x=0$ ist die Situation äquivalent zu der in Abbildung 3.3 dargestellten. Das T-Valenzband und das L_s -Leitungsband bilden eine negative, indirekte Bandlücke. Bei $x=1$ ist die negative Bandlücke von Antimon zu erkennen, mit dem Unterschied, dass sich das Valenzbandmaximum am H-Punkt befindet. Bei der Mischung beider Materialien nähern sich die Bänder L_a und L_s energetisch an und schließen die Bandlücke bei $x=0,04$. Für größere Konzentrationen öffnet sich die Bandlücke erneut unter Invertierung beider Bänder. Diese invertierte Bandlücke ist eine Voraussetzung für topologische Isolatoren. Das T-Band sinkt energetisch ab und kreuzt das Leitungsbandminimum bei $x=0,07$. An diesem Punkt wird die indirekte Bandlücke positiv. Bei $x=0,09$ sinkt das T-Band unter das L_s -Band, sodass der Mischfilm einen Halbleiter mit direkter Bandlücke am L-Punkt darstellt. Mit zunehmendem x wird die Bandlücke größer und erreicht ihr Maximum bei 18 %. Bei $x=0,22$ kreuzt das H-Band das L_a -Band, so dass das Material ab dieser Konzentration erneut ein Halbmetall darstellt. Für den

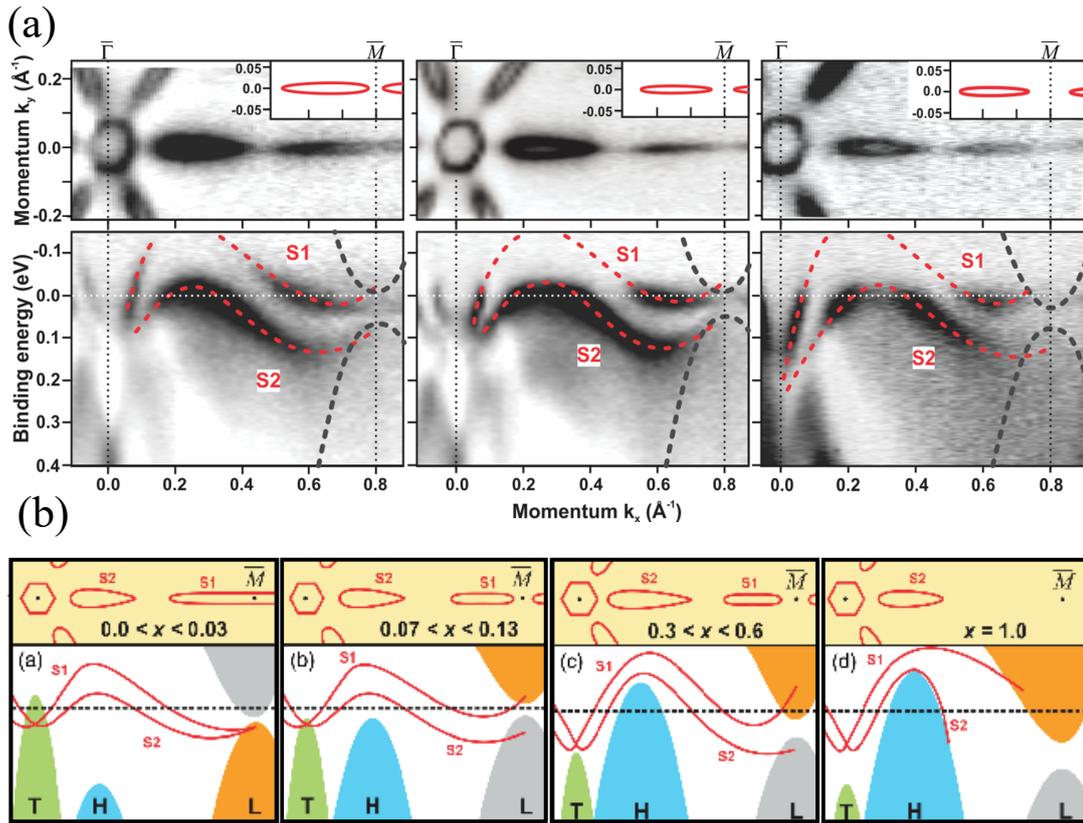


Abbildung 3.6: (a) ARPES-Messungen dünner $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ -Filme mit $x=0,09$, $x=0,11$ und $x=0,30$ (von links nach rechts). Oben sind die Fermi-Flächen dargestellt und unten die energieabhängigen Messungen entlang der $\bar{\Gamma}$ - \bar{M} -Richtung. (b) Modell des experimentellen Befundes. Beide Abbildungen stammen aus der Referenz [34].

Konzentrationsbereich $0,07 < x < 0,22$ liegt also ein topologisch nicht triviales Material vor.

ARPES-Messungen an $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ -Volumenkristallen innerhalb dieses Konzentrationsbereiches konnten die topologische Struktur belegen [26, 92]. Der topologische Charakter wird dabei anhand der Anzahl von Kreuzungspunkten der Oberflächenbänder mit dem Fermi-Level beurteilt. Für eine gerade Anzahl liegt ein topologisch triviales Material vor, während bei ungerader Anzahl ein topologischer Isolator vorliegt.

Während der topologische Charakter in frühen Arbeiten durch die Existenz eines dritten Oberflächenbandes S_3 am M-Punkt beschrieben wurde [26, 44, 93, 94], gelang es Benia et al. durch das Wachstum qualitativ hochwertiger Schichten diese Behauptung zu widerlegen [34]. In der Abbildung 3.6 sind entsprechende ARPES-Messungen in (a) und das von Benia et al. postulierte Modell in (b) dargestellt. Für reines Bismuth ist das Band S_1 bei M mit dem Valenzband verbunden, sodass eine gerade Anzahl an Kreuzungspunkten existiert. Im topologischen Bereich ändert sich der Verbindungspunkt zum Leitungsband, sodass eine ungerade Anzahl an Kreuzungspunkten resultiert. Für höhere Konzentrationen gibt es einen fließenden Über-

gang durch weitere Verschiebung der beteiligten Bänder und bei $x=1$ ist die Bandstruktur von Antimon erreicht. Zhang et al. konnten zeigen, dass das dritte Band S_3 ein Störstellenband darstellt [95].

EXPERIMENTELLER AUFBAU

In diesem Kapitel werden die wichtigsten Komponenten der UH-Vakuumkammer vorgestellt. Dabei wird zunächst ein Überblick über die Kammer selbst gegeben. Da sich diese Arbeit im Schwerpunkt mit dem Wachstum und der Manipulation ultradünner Filme auf Si-Substraten befasst, wird im Folgenden außerdem auf die Metallverdampfer sowie die Geometrie des Substrates eingegangen. Anschließend werden technische Details zu den 4- und 8-Punkt Messungen sowie der experimentelle Aufbau für die XMCD-Messungen, die an der XTREME-Beamline der Swiss Light Source (SLS) durchgeführt wurden, wiedergegeben.

4.1 DIE VAKUUMKAMMER

In der Abbildung 4.1 ist eine schematische Darstellung des verwendeten Versuchsaufbaus dargestellt. Es handelt sich dabei um eine Kammer, die dazu dient, Messungen des elektrischen Transports von insitu präparierten und nachbedampften Substraten unter Ultrahochvakuum (UHV) Bedingungen durchzuführen.

Der Manipulator ist an einem z-Hub befestigt, der ein stufenloses Verfahren in der z-Richtung der Kammer erlaubt. Durch einen xy-Tisch kann der Manipulator zusätzlich um ± 25 mm relativ zur Kammermitte in die anderen beiden Raumrichtungen bewegt werden. Der Manipulator ist zusätzlich drehbar gelagert, was eine Rotation um einen beliebigen Winkel um die Längsachse ermöglicht. Die Kühlung des Manipulators mit flüssigem Stickstoff oder Helium (LN_2 , IHe) wird mit einem Durchflusskryostat realisiert, an dessen Ende eine Siliziumdiode zur Temperaturmessung befestigt ist. Ein Widerstandsdraht an derselben Position ermöglicht die Erwärmung des Probenhalters in kontrollierter Weise. Beide Elemente werden mit einem *Lakeshore 331 Temperaturkontroller* gesteuert. Zuletzt gibt es zwei elektrische Vakuumdurchführungen. Eine ist mit dem *Lakeshore 331* verbunden, die andere führt insgesamt zehn Kontakte, wovon acht für die elektrischen Messungen und zwei für die Direktstromheizung der Probe verwendet werden.

Zur Präparation des Substrates und der Filme stehen zwei Ebenen zur Verfügung. In der SPA-LEED- und Heizebene ist ein IR-Pyrometer (*Impac IGA 140*) angebracht, welches die Proben temperatur während der Heizprozesse durch ein Sichtfenster überwacht. Zur Kontrolle der Oberflächenqualität wird ein SPA-LEED verwendet. In der Aufdampf-Ebene befinden sich insgesamt acht Flansche, die nach Bedarf mit verschiedensten Metallverdampfern bestückt werden können. Diese sind kreisförmig um den

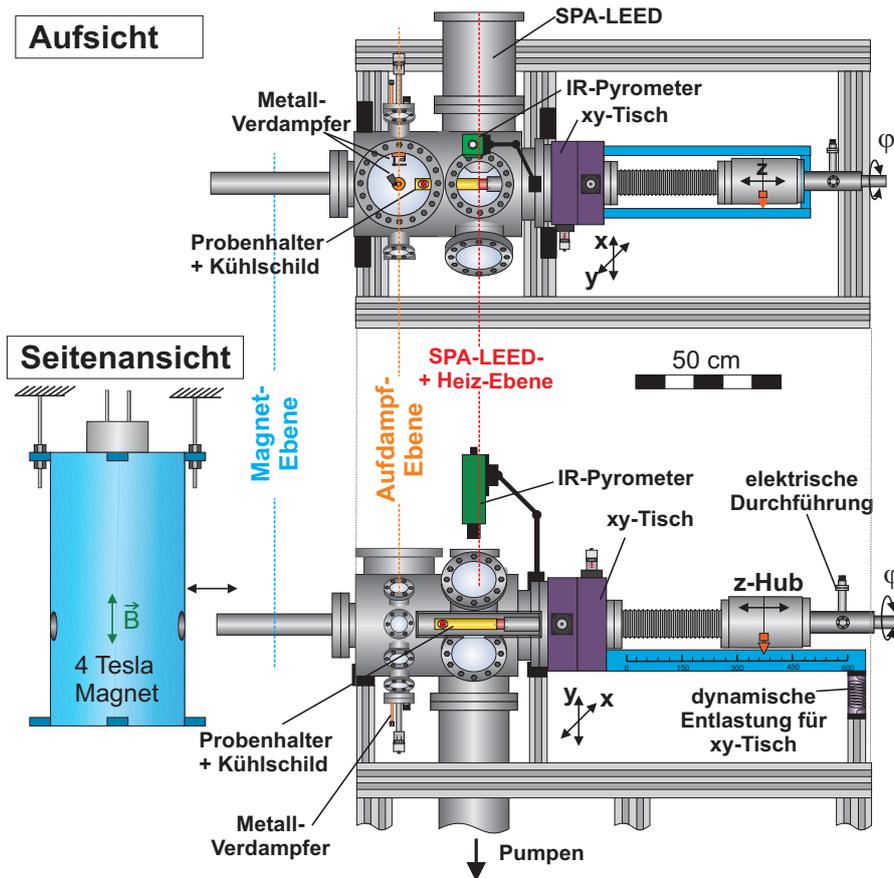


Abbildung 4.1: Schematische Darstellung der UHV-Kammer. Die Abbildung wurde aus Referenz [51] übernommen.

Kammernmittelpunkt angeordnet und der drehbare Manipulator kann die Substratoberfläche vor dem benötigten Material platzieren.

Eine zylinderförmige Fortsetzung der Kammer bildet die Magnet-Ebene. Über den Zylinder kann ein Magnet (*Spectromag SM 4000, Oxford*) geschoben werden, dessen zwei supraleitende Spulen ein homogenes Magnetfeld von bis zu 4 T in y-Richtung erzeugen können.

Zur Erzeugung des Vakuums sind eine Turbomolekularpumpe mit vorgeschalteter Drehschieberpumpe, eine Ionengetterpumpe und eine Titansublimationspumpe im unteren Bereich der Kammer angebracht. Durch diese Kombination wird ein Basisdruck von $< 1 \cdot 10^{-10}$ mbar erreicht. Zusätzlich wird der Manipulator durch eine kleine Ionengetterpumpe differenziell gepumpt, um beim Verfahren in z-Richtung einen stabilen Druck in der Hauptkammer zu gewährleisten.

4.1.1 Metallverdampfer

Sämtliche Beschichtungsverfahren, die in dieser Arbeit genutzt werden, funktionieren nach dem Prinzip der Molekularstrahlepitaxie (MBE, engl. molecular beam epitaxy).

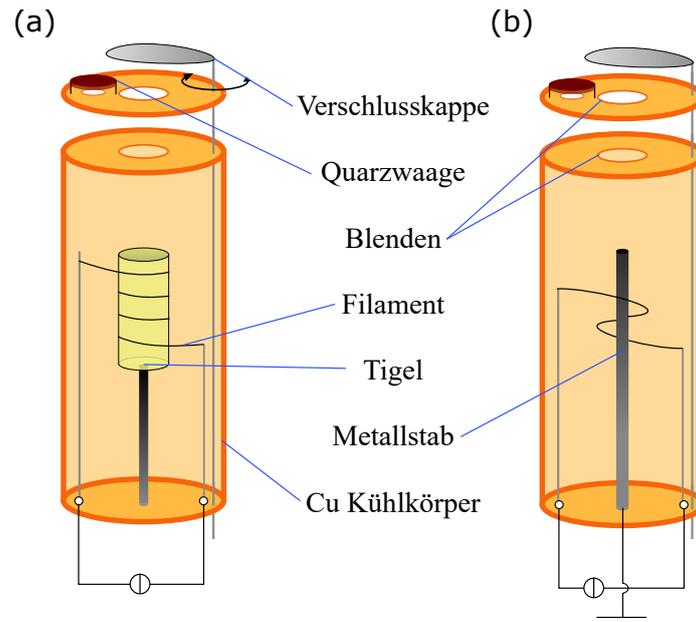


Abbildung 4.2: (a) Schematische Darstellung eines Metallverdampfers mit einem Keramiktiegel. (b) Schematische Darstellung eines Metallverdampfers nach dem Elektronenstoßprinzip.

xy). In der Abbildung 4.2 ist eine schematische Darstellung der benutzten Verdampfer gezeigt.

Für Bi und Sb befindet sich das Material in Pulverform in einem Keramiktiegel (Al_2O_3), der mit einem Wolframfilament solange erhitzt wird, bis die Gasphase erreicht ist (a). Die Wahl des Tiegelmateriale ist dabei entscheidend um chemische Reaktionen zwischen Tiegel und dem Füllmaterial zu vermeiden.

Für die verwendeten 3d-Übergangsmetalle liegt das Material in Stabform vor und wird mittels Elektronenstoß verdampft. Hierbei wird der Stab auf Hochspannung gelegt und ein um den Stab gewickeltes Wolframfilament emittiert Elektronen, die in Richtung des Stabes beschleunigt werden (b). Durch die Stöße der Elektronen mit dem Stab wird dieser erhitzt. Beide Quellen werden von einem wassergekühlten Cu-Zylinder mit einer kreisrunden Blende an seiner Oberseite umgeben. Die Wasserkühlung verhindert eine übermäßige Erhitzung der Verdampferumgebung, sodass der Basisdruck bei eingeschaltetem Verdampfer kaum beeinflusst wird. Über dem Zylinder befindet sich eine Cu-Scheibe mit einer weiteren Blende, die mit einer Verschlusskappe geöffnet oder geschlossen werden kann. Diese Anordnung gewährleistet eine Führung des gasförmigen Materials in die Richtung des Substrats auf dem es kondensieren kann.

Zur Überwachung der aufgedampften Mengen ist eine Quarzwaage über der zweiten Blende angebracht. Die Quarzwaage wird durch einen Schwingkreis zu transversalen Scherschwingungen angeregt. Die Masseänderung des Quarzes führt zu einer dazu proportionalen Änderung der Schwingfrequenz [96]. Eine weitere Quarzwaage

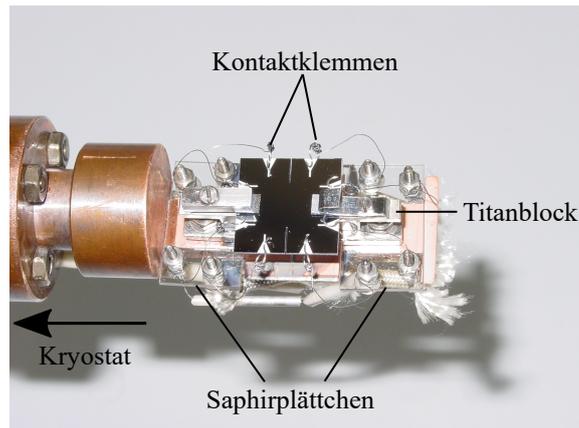


Abbildung 4.3: Fotografie des Probenhalters.

ge ist an einem z-Hub in der Verdampferebene der Kammer angebracht und kann für eine Ratenbestimmung in die Probenposition gebracht werden. Um jeweils beide Quarze, d. h. deren materialspezifische Frequenzänderung zu kalibrieren wird die Rate jeweils gemäß

$$\Delta f = -\frac{C_f \cdot \Delta m}{F} \quad (4.1)$$

abgeschätzt [96]. Dabei ist C_f die materialspezifische Schichtwägemempfindlichkeit, Δm die Änderung der Masse und F die bedampfte Fläche. Dies stellt allerdings nur eine grobe Abschätzung dar. Daher werden für eine genauere Bestimmung der Schichtdicke die Schichtdickenoszillationen des Leitwerts bei der Homoepitaxie von Bi(111) genutzt [97]. Dazu wird ein dünner Bismuthfilm gewachsen und ausgeheilt. Anschließend werden bei niedriger Temperatur weitere Bismuthlagen aufgedampft (vgl. Kapitel 5). Durch die parallele Aufnahme der dabei auftretenden Leitwertoszillationen und der Frequenzänderung erfolgt also eine sehr genaue Kalibrierung der Quarzwaagen.

4.1.2 Der Probenhalter

In der Abbildung 4.3 ist eine Fotografie des Probenhalters dargestellt. Der Aufbau ist auf einem thermisch an den Kryostaten gekoppelten Kupferblock angebracht.

Er besteht aus einem Probenstisch, gefertigt aus Titanblöcken. Einer der Blöcke ist mit einem elektrischen Kontakt versehen, der andere liegt auf Masse. Auf den Blöcken wird das Substrat mit jeweils zwei Molybdänklemmen eingespannt und kann so durch Direktstrom geheizt werden. Der Probenstisch ist durch Saphirplättchen vom Kupferblock elektrisch entkoppelt. Dies gewährleistet den bestmöglichen Wärmeübertrag zwischen Substrat und Kupferblock. Der Aufbau ist außerdem von einem goldbeschichteten Cu-Kühlschild umgeben, der an Probenposition eine Öffnung aufweist. Am Ende des Kühlschildes ist ein drehbarer gelagerter Innenzylinder

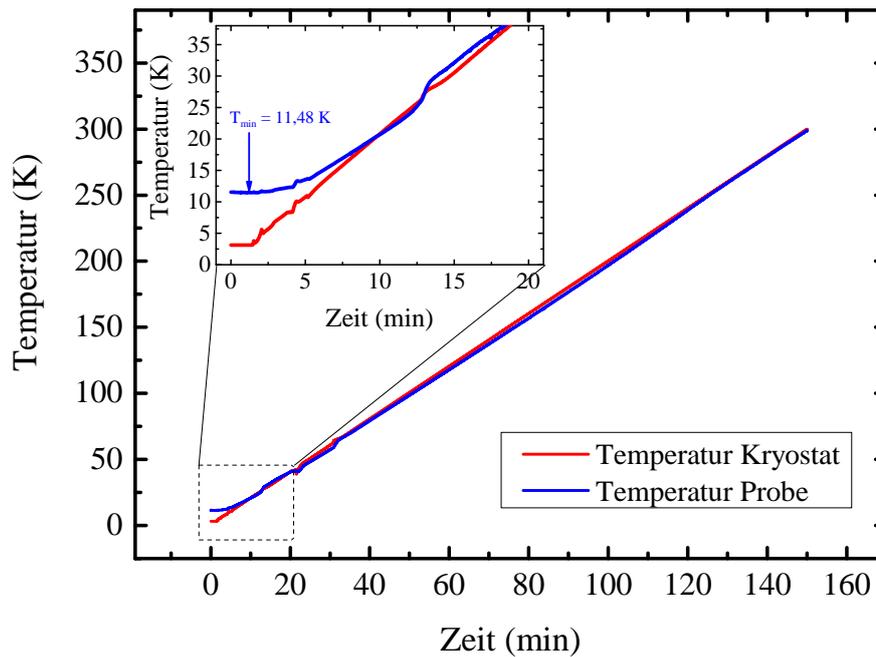


Abbildung 4.4: Vergleich der Kryostat- und Proben-temperatur bei einer Temperaturrampe von 2 K/min. Inset: Vergrößerte Darstellung des Bereichs kleiner Temperaturen, in denen die größte Abweichung auftritt.

angebracht, der die Öffnung verschließen kann. Ist der Schild geschlossen, wird zusätzliche Wärmestrahlung abgeschirmt. Somit wird bei Kühlung des Probenhalters mit IN_2 oder IHe eine möglichst tiefe Temperatur erreicht.

Zur Durchführung von temperaturabhängigen Messungen wird der Probenhalter nach dem Abkühlen mit dem Widerstandsdraht erwärmt. Zur Kalibrierung der Temperatur wurde eine zusätzliche Siliziumdiode in der Mitte eines Siliziumsubstrats mit temperaturbeständigem Epoxidharz aufgeklebt und die Ergebnisse beider Dioden während des Erwärmens abgeglichen. In der Abbildung 4.4 ist diese Messung nach dem Kühlen mit IHe dargestellt. Die Temperatur wurde dabei mit einer Rate von 2 K/min erhöht.

Zum einen ist zu erkennen, dass die minimale Proben-temperatur etwa 11,4 K beträgt, zum anderen gibt es bei kleinen Temperaturen eine Verzögerung zwischen Proben- und Kryostattemperatur. Ab einer Temperatur von 20 K stimmen beide Temperaturen sehr gut überein. Der Abgleich beider Datensätze ergibt eine temperaturabhängige Korrektur von $T_{\text{Probe}} = T_{\text{Kryo}} + 13,47 \cdot \exp(-T_{\text{Kryo}}/6,74)$, welche auf allen im Folgenden dargestellten Datensätze angewendet wurde.

Für die elektrischen Transportmessungen sind acht 0,25 mm dicke Molybdändrähne mit der Probe kontaktiert, die ebenfalls durch die Saphirplättchen vom Rest des Probenhalters isoliert sind.

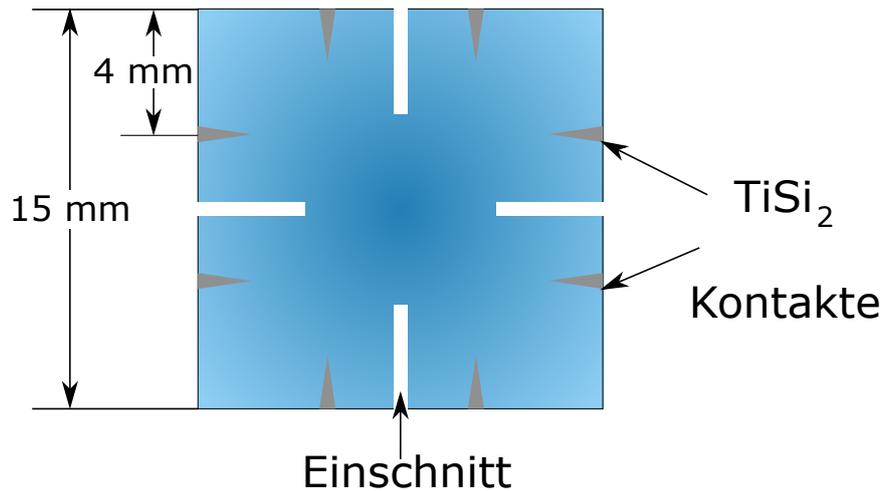


Abbildung 4.5: Schematische Darstellung der Probengeometrie

4.2 DIE PROBE - PRÄPARATION UND GEOMETRIE

Als Substrat werden quadratische Siliziumproben mit einer Kantenlänge von 15 mm verwendet. Für die elektrischen Transportmessungen werden diese durch Laserstrahlschneiden aus einem Wafer angefertigt und weiterhin in der Mitte jeder Kante drei mm tief eingeschnitten. Diese Kleeblattform sorgt zum einen dafür, dass der Messbereich auf die Mitte der Probe begrenzt ist und zum anderen wird eine Widerstandsmessung im Sinne der Van-der-Pauw-Methode ermöglicht.

Im nächsten Schritt werden grobe Schmutzpartikel sowie Fette oder Öle auf der Probenoberfläche durch eine Reihe von Lösungsmitteln (Petroliumbenzin, Isopropanol und Aceton) für jeweils etwa 15 min in einem Ultraschallbad entfernt. Anschließend folgt ein nasschemisches Ätzen in 1-prozentiger Flusssäure für etwa 40 s, wodurch die native Oxidschicht des Siliziums sowie verbleibende organische und anorganische Verunreinigungen entfernt werden. Um die Oberfläche für die weiteren Prozessschritte vor Verunreinigungen zu schützen, wird diese mit 30-prozentigem Wasserstoffperoxid (H_2O_2) erneut oxidiert.

An den Rändern der Probe werden anschließend jeweils zwei Kontakte aus Titantisilizid TiSi_2 mittels Schattenmaskentechnik in einer Hochvakuumkammer ($p \sim 1 \cdot 10^{-7}$ mbar) bei einer Temperatur von etwa 800 K aufgedampft. Dieses Verfahren hat den Vorteil, dass die Kontakte durch die chemische Reaktion zwischen dem aufgedampften Ti und der Si-Probe mehrere Mikrometer in die Probe hineinreichen, sodass diese mechanisch und thermisch sehr stabil sind. Die thermische Stabilität ist vor allem bei dem sogenannten flashen (mehrfaches kurzeitiges Aufheizen auf etwa 1370 K) eine Notwendigkeit. In der Abbildung 4.5 ist die Probengeometrie schematisch dargestellt.

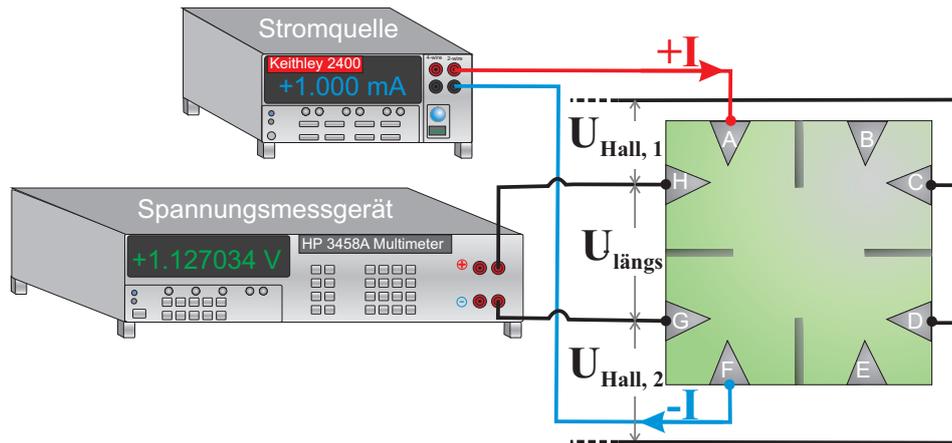


Abbildung 4.6: Messanordnung bei der 4-Punkt-Methode. Durch Tauschen der Kontaktpaare sind insgesamt vier Messungen des Leitwerts möglich, wovon jeweils zwei in vertikaler bzw. horizontaler Richtung möglich sind. Die Abbildung wurde aus [51] übernommen.

Durch die acht Kontakte auf der Probenoberfläche wird außerdem eine Messung von Anisotropien des elektrischen Widerstands ermöglicht, da der Strom durch ein beliebiges Kontaktpaar eingepreßt werden kann.

4.3 TRANSPORTMESSUNGEN

Aufgrund der verwendeten Proben- und Kontaktgeometrie sind eine Vielzahl verschiedener Transportmessungen möglich. Die einfachste Methode ist die 2-Punkt-Messung, bei der Widerstand durch Anlegen einer Testspannung über zwei Kontakte bestimmt wird. Diese Methode wird beim Einbau neuer Substrate verwendet, um die Funktionalität der Titandisilizidkontakte zu prüfen. Die nächste Variante ist die 4-Punkt-Methode. Diese hat den Vorteil, dass die Potentialdifferenz stromfrei gemessen wird und somit der Einfluss von Kontaktwiderständen vernachlässigt werden kann. Es wird ein Strom zwischen gegenüberliegenden Kontakten, z. B. A und F, eingepreßt und der Spannungsabfall zwischen den Kontakten H und G gemessen. Auf diese Weise werden insgesamt vier Konfigurationen von Kontakten zur Bestimmung des Widerstandes gemessen. Davon sind zwei in vertikaler Richtung und zwei in horizontaler Richtung in der verwendeten Labview-Software vorgesehen. In der Abbildung 4.6 ist die Messanordnung schematisch dargestellt.

Diese Methode wird zur Überwachung des Schichtwachstums verwendet und gibt dabei Aufschluss über die Homogenität der aufgewachsenen Schicht. Wird beispielsweise ein Teil der Probe aufgrund von Abschattung des Teilchenstrahls nicht bedampft, gibt es Unterschiede zwischen den erhaltenen Widerständen. Ein Nachteil

dieser Methode wird ersichtlich, wenn die Bestimmung der Leitfähigkeit gemäß der Gleichung

$$\sigma = \frac{1}{\rho} = \frac{1}{2\pi} \cdot \left[\ln \left(\frac{6 \text{ mm}}{1,35 \text{ mm}} \right) + \ln \left(\frac{6 \text{ mm}}{1,35 \text{ mm}} \right) \right] \cdot G \approx 2,15 \cdot \frac{\ln 2}{\pi} \cdot G \quad (4.2)$$

erfolgt. Die Leitfähigkeit wird also im Vergleich mit einer mittels Van-der-Pauw-Geometrie gemessenen Leitfähigkeit um einen Faktor 2,15 unterschätzt. Ein weiterer entscheidender Nachteil ist ein unsymmetrischer Stromfluss aufgrund der Probengeometrie. Hierbei entstehen Komponenten senkrecht zur Stromrichtung, die eine Hall-Spannung verursachen. Aus diesem Grund wird diese Methode nur für charakterisierende Messungen verwendet, während für bedeckungs-, temperatur- und magnetfeldabhängige Messungen auf die 8-Punkt Methode zurückgegriffen wird. Diese erzeugt einen symmetrischen Stromfluss durch die Probe und ist damit die genaueste aller Messmethoden. Als Stromquelle wird ein *Keithley 2400 Sourcemeter* verwendet, während ein *HP3458A Multimeter* die Spannungsabfälle misst.

4.3.1 8-Punkt-Messung

Die 8-Punkt-Messung wird genutzt, um einen möglichst symmetrischen Stromfluss in der Probe zu erzielen. Dazu wird ein konstanter Strom I_{fix} z.B. zwischen den Kontakten A und F eingepreßt. Über den parallelen Kanal zwischen den Kontakten B und E wird ein variabler Strom eingepreßt. Dieser wird über die Labview-Software derart geregelt, dass die Querspannungen (Hall-Spannungen) zwischen den Kontakten G und D bzw. H und C minimal sind und sich lediglich um weniger als 1 % unterscheiden. Damit liegen diese Kontakte auf dem gleichen Potential und ein symmetrischer Stromfluss entlang der Probe entsteht. Die Messanordnung ist in der Abbildung 4.7 schematisch dargestellt. Die Regelung findet dabei stets bei konstanter Proben temperatur und ausgeschaltetem Magnetfeld statt, damit eine Änderung der Querkomponenten während dieses Prozesses ausgeschlossen ist. Ist die Regelung abgeschlossen, werden die gefundenen Parameter konstant gehalten und die Messung kann beginnen. Der Leitwert und Hall-Widerstand ergeben sich dann zu:

$$G = \frac{I_{\text{fix}} + I_{\text{var}}}{0,5 \cdot (U_{\text{HG}} + U_{\text{CD}})} \quad R_{\text{HALL}} = \frac{0,5 \cdot (U_{\text{GD}} + U_{\text{HC}})}{I_{\text{fix}} + I_{\text{var}}} \quad (4.3)$$

Aufgrund der Kontaktsymmetrie wird diese Messung ebenfalls in beiden Richtungen durchgeführt. Dadurch wird die Messung von Anisotropien ermöglicht. Bei den Untersuchungen von Schichtwiderständen eines metallischen Films ist die Homogenität der Schicht eine Grundvoraussetzung für diese Messmethode. Alle acht Kontakte müssen funktionsfähig, sowie durch eine homogene Schicht miteinander verbunden sein. Ist die Schicht nicht geschlossen oder sehr inhomogen, ist die Regelung der Querspannungen bzw. das Erreichen von Konvergenz beider Querspannungen nicht möglich. Die Anwendbarkeit der 8-Punkt-Methode gibt demnach indirekten

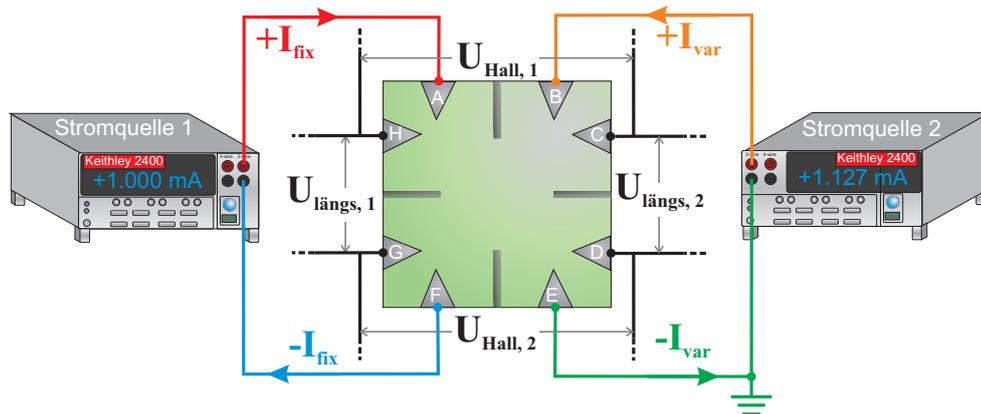


Abbildung 4.7: Messanordnung bei der 8-Punkt-Methode. Das Einprägen zweier Ströme unter Regelung der Hall-Spannungen gewährleistet einen symmetrischen Stromfluss durch die Probe. Hierbei ist sowohl die Messung in vertikaler als auch in horizontaler Richtung möglich. Die Abbildung wurde aus [51] übernommen.

Aufschluss über die Homogenität der untersuchten Schichten. Die Symmetrisierung des Stromes führt außerdem dazu, dass der gemessene Leitwert etwa dem einer Van-der-Pauw-Geometrie und damit dem wahren Leitwert der Schicht entspricht.

4.4 XMCD

Die *X-Ray Magnetic Circular Dichroism* (XMCD) Messungen wurden an der X-Treme Beamline [98] (Swiss Light Source, Paul Scherrer Institut) durchgeführt. Die Quelle der verwendeten Röntgenstrahlen ist ein elliptisch polarisierter Undulator, der es ermöglicht, linear polarisierte Röntgenstrahlen zwischen 0° und 90° , sowie rechts- und links-zirkular polarisierte Röntgenstrahlen zu erzeugen. Über einen Gittermonochromator und verschiedene Linsen wird das Röntgenlicht in einer UH-Vakuumkammer (*Endstation*) fokussiert. Dabei kann ein Energiebereich von 150- 1800 eV mit einer Auflösung von etwa 90 meV abgedeckt werden. Innerhalb der *Endstation* befindet sich ein in der z-Achse drehbar gelagerter Manipulator, der Messungen in einem Temperaturbereich von 2- 370 K erlaubt. Durch einen elektrischen Kontakt kann die Röntgenabsorption über den *Total Electron Yield* (Gesamtelektronenausbeute Abk. TEY) gemessen werden. Ein supraleitender Magnet ermöglicht Felder von bis zu 7 T in der Achse des Röntgenlichts. Dieser ist von einem IHe Kryostaten umgeben. Bei gekühltem Magneten können Basisdrücke von $1 \cdot 10^{-11}$ mbar in der Kammer erreicht werden.

Die Präparation der Bismuthfilme erfolgte in einem externen Labor des PSI. Nach der Herstellung der Filme wurde die Qualität der Oberflächen mittels konventionellem LEED und XPS überprüft. Danach wurden die Proben in einem Vakuumkoffer ($p < 1 \cdot 10^{-9}$ mbar) zur *Endstation* transportiert. Da als Probenhalter *Omicron-plates*

verwendet wurden, beträgt die minimal erreichbare Temperatur der Probe im Manipulator der Endstation aufgrund der schlechteren thermischen Kopplung etwa 7 K.

Teil II

EXPERIMENTE

WACHSTUM ULTRA-DÜNNER BI(111)- UND TI-FILME AUF SI(111)

In diesem Kapitel wird das Kristallwachstum der Bismuth- und Bismuthantimonidfilme beschrieben. Während des Wachstums dienen 4-Punkt-Messungen des Leitwerts zur Kontrolle des Wachstums- sowie Ausheilprozesses der Filme. Zur Analyse der Oberflächenqualität werden exemplarische SPA-LEED-Beugungsbilder gezeigt. Weiterhin wird der Einfluss der Substratqualität auf die elektronischen- und kristallinen Eigenschaften überprüft.

5.1 WACHSTUM VON BI(111) UND BI_{1-x}Sb_x(111)

Die Bismuth- und Bismuthantimonidfilme wurden mittels MBE (Molekularstrahlepitaxie) auf Si(111)-Proben bei einer Temperatur von 200 K aufgewachsen. Die Wachstumsrate beträgt dabei zwischen 0,3 und 0,7 BL/min. Nach Abschluss des Wachstums ist die kristalline Qualität beider Filme noch sehr schlecht. In SPA-LEED-Beugungsbildern werden neben schwachen Bi(111)-Reflexen Ringstrukturen beobachtet, sodass der Film nach diesem Wachstumsschritt einen weitgehend polykristallinen Charakter aufweist. Aus diesem Grund werden die Filme bei einer Temperatur von 450 K für etwa eine Stunde ausgeheilt. Die thermische Energie dient dabei zur Umordnung der Atome und eine einkristalline Schicht kann entstehen.

Aufgrund der großen Diskrepanz der Gitterkonstanten ist das Wachstum von Bismuthfilmen auf Si(111)-Substraten problematisch. Die Gitterfehlpassung ist sehr hoch (~ 18%), sodass zunächst einzelne Inseln mit pseudokubischer Bi(110)-Struktur, sowie vereinzelte Kristallite mit (111)-Struktur anwachsen ($d < 5$ BL). Ab einer Dicke von etwa 5 BL findet eine allotropische Phasentransformation zugunsten einer Bi(111)-Struktur statt [51, 99] und ein geschlossener Film entsteht. SPA-LEED Analysen haben gezeigt, dass ein Bi-Beugungsreflex erster Ordnung dabei mit dem 6/7 Reflex der Silizium (7×7)-Rekonstruktion zusammenfällt [99–101], sodass $6a_{\text{Bi}(111)} = 7a_{\text{Si}(111)}$. Die Gitterkonstante des Films beträgt daher $a_{\text{Bi}(111)} = 4,480 \text{ \AA}$, was einer Druckverspannung von 1,8% entspricht. TEM- und XRD-Messungen zeigen, dass Bismuthfilme mit sehr guter kristalliner Qualität auf Si(111) entstehen und nach der Phasentransformation keine Anzeichen für (110)-Kristallite verbleiben [100, 102, 103]. STM- und AFM-Untersuchungen belegen die gute Oberflächenqualität mit geringer Rauigkeit und Korngrößen von bis zu 20 nm [47, 104, 105].

In der Abbildung 5.1 ist die Entwicklung des Leitwerts beim Wachstum und beim Ausheilen für einen 40 BL dicken Bismuth(111)- bzw. einen Bi_{0,85}Sb_{0,15}-Film darge-

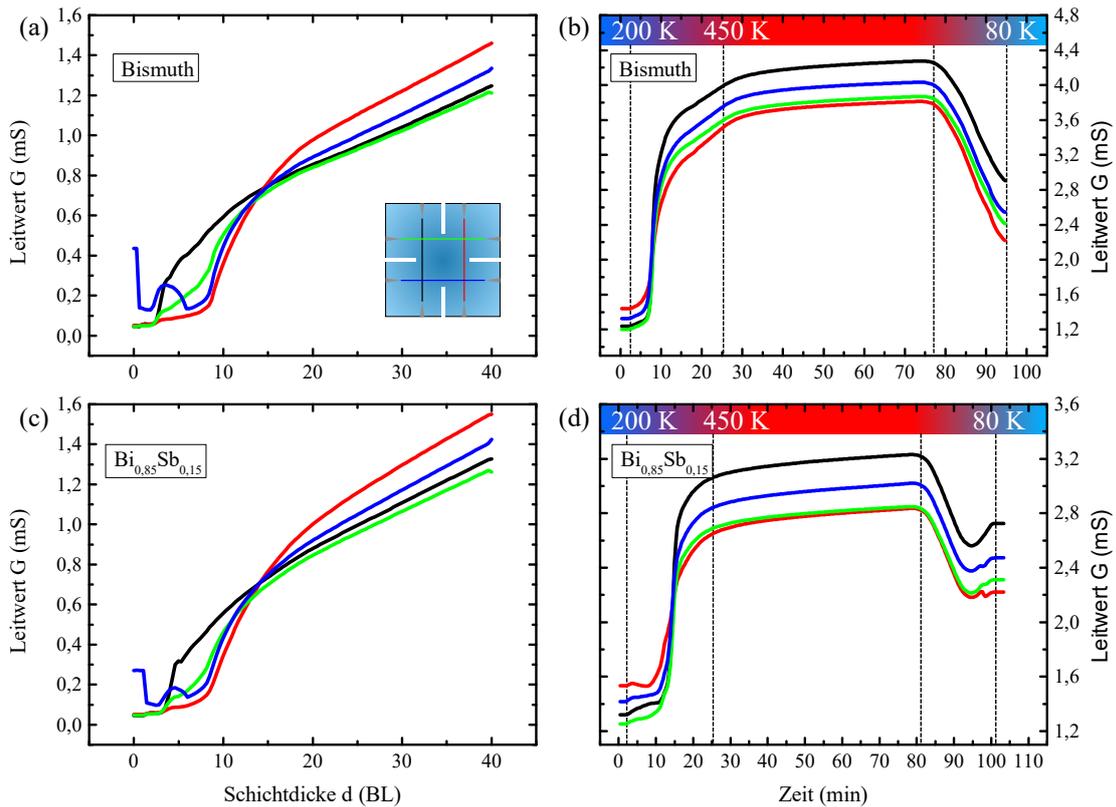


Abbildung 5.1: (a) und (c): Entwicklung des Leitwerts G bei dem Wachstum von $\text{Bi}(111)$ - und $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x(111)$ -Films ($T_{\text{dep}}=200\text{ K}$ und $d=40\text{ BL}$). Die unterschiedlichen Messkurven entsprechen den im Inset von gezeigten Kontaktpaarungen bei der 4-Punkt Messung. (b) und (d): Entwicklung des Leitwerts beim Ausheilen beider Filme bei $T_{\text{Ausheil}}=450\text{ K}$.

stellt. In (a) ist zu erkennen, dass das Wachstum während der ersten 6 BL keinen Anstieg des Leitwerts aufweist. In diesem Schichtdickenbereich wachsen also die $\text{Bi}(110)$ -Kristallite und der Film ist noch nicht geschlossen. Für Schichtdicken $>6\text{ BL}$ beginnt der Leitwert kontinuierlich zu steigen. Ein geschlossener Film entsteht.

Anschließend wird der Film ausgeheilt. In (b) ist die Entwicklung des Leitwerts bei dieser Prozedur dargestellt. Bis zu einer Temperatur von ca. 290 K steigt der Leitwert entsprechend eines aktivierten Transports über Defektzustände leicht an. Danach folgt ein sprunghafter Anstieg des Leitwerts bis zu einer Temperatur von etwa 340 K . Die weitere Temperaturerhöhung lässt den Leitwert nur noch gering zunehmen. Nach anschließender Abkühlung der Probe auf 80 K hat sich der Leitwert um etwa 130% erhöht. Daher lässt sich schlussfolgern, dass bei einer Temperatur von 290 K die thermische Energie ausreicht, um eine Umstrukturierung des gesamten Films zugunsten der (111) -Richtung durchzuführen.

Die Messungen dieses Prozesses sind für einen Mischfilm gleicher Dicke in der Abbildung 5.1 (c) und (d) dargestellt. Der Verlauf des Leitwerts beim Wachstum sowie beim Ausheilen sind qualitativ identisch. Aufgrund dieser Beobachtungen ist davon auszugehen, dass auch beim Wachstum des Mischfilms die beim Bismuth beobachte-

te allotropische Phasentransformation zwischen (110)- und (111)-Richtung stattfindet, obwohl die Beimischung von Antimon eine beträchtliche Störung des Systems darstellt. Bei gleicher Schichtdicke zeichnet sich der Bismuthfilm durch einen insgesamt größeren Leitwert aus.

In der Abbildung 5.2 sind exemplarische SPA-LEED Aufnahmen von drei Bismuthfilmen mit den Schichtdicken 20-, 40- und 80 BL sowie von vier $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ -Filmen der Schichtdicken 10-, 20-, 40- und 60 BL dargestellt. Alle Messungen, ausgenommen die des 80 BL Films im Inset von (b), wurden bei einer Elektronenenergie von 87 eV durchgeführt. Die Bismuthfilme zeichnen sich durch eine hexagonale Oberflächenstruktur aus. Zusätzlich lässt sich der Ansatz eines Beugungsringes erkennen, der durch eine Rotationsfehlordnung einzelner $\text{Bi}(111)$ -Körner hervorgerufen wird. Mit zunehmender Schichtdicke nimmt die Intensität des Rings jedoch ab, was für eine verbesserte Schichtqualität spricht. Im Fall des 80 BL Films ist dieser sogar komplett verschwunden.

Für die Mischfilme (c)-(f) ist der Beugungsring deutlich stärker ausgebildet als bei den reinen Filmen. Zudem ist die hexagonale Oberflächenstruktur zu erkennen. Als Funktion der Schichtdicke wird der Beugungsring immer stärker und die Reflexe erster Ordnung verlieren an Intensität. Dies deutet darauf hin, dass die Beimischung von Antimon den Film sehr stark stört und sich diese Unordnung mit der Schichtdicke fortpflanzt. Der hier untersuchte dickste Film mit 60 BL hat zudem die höchste Sb-Konzentration mit $x=19\%$. Wie im Kapitel 8 gezeigt wird, nehmen die Beweglichkeiten der Ladungsträger mit der Sb-Konzentration ebenfalls ab. Hier besteht also ein Zusammenhang zwischen kristalliner Ordnung und Beweglichkeiten, die mit zunehmender Konzentration schlechter werden.

In der Abbildung 5.3 ist der Einfluss des Ausheilens auf verschiedene Eigenschaften des Bismuthfilms dargestellt. In (a) sind SPA-LEED Aufnahmen direkt nach dem Wachstum und nach dem Ausheilen gezeigt. Nach dem Wachstum zeigt sich neben schwachen $\text{Bi}(111)$ -Reflexen ein Beugungsring bei etwa $117\% \text{BZ}_{\text{Bi}(111)}$. Dies entspricht einem Reihenabstand von $3,34 \text{ \AA}$, was vergleichbar mit dem Reihenabstand der pseudokubischen (110)-Struktur von $3,28 \text{ \AA}$ ist. Nach dem Ausheilen ist der (110)-Beugungsring verschwunden und die (111)-Reflexe haben an Intensität gewonnen. In (b) werden temperaturabhängige Messungen vorgestellt. Der nicht ausgeheilte Film zeichnet sich durch aktivierten Transport über den gesamten Temperaturbereich aus, während der ausgeheilte Film metallischen Charakter zeigt. Nach dem Ausheilen hat sich also ein langreichweitig geordneter Oberflächenzustand ausgebildet (vgl. Kapitel 6.1). Weiterhin wurden die Korngrößen im Sinne einer $H(S)$ -Analyse eines verschieden lange ausgeheilten 40 BL dicken Bismuthfilms abgeschätzt. Dazu wurden Linienscans des (00)-Reflexes für verschiedene Phasen S zwischen 6 und 7,5 erstellt. Die Korngröße nach einer Ausheilzeit von 30 Minuten beträgt etwa 30 nm und nach dem zweiten Ausheilschritt, in dem das Maximum des Leitwerts nach etwa drei Stunden

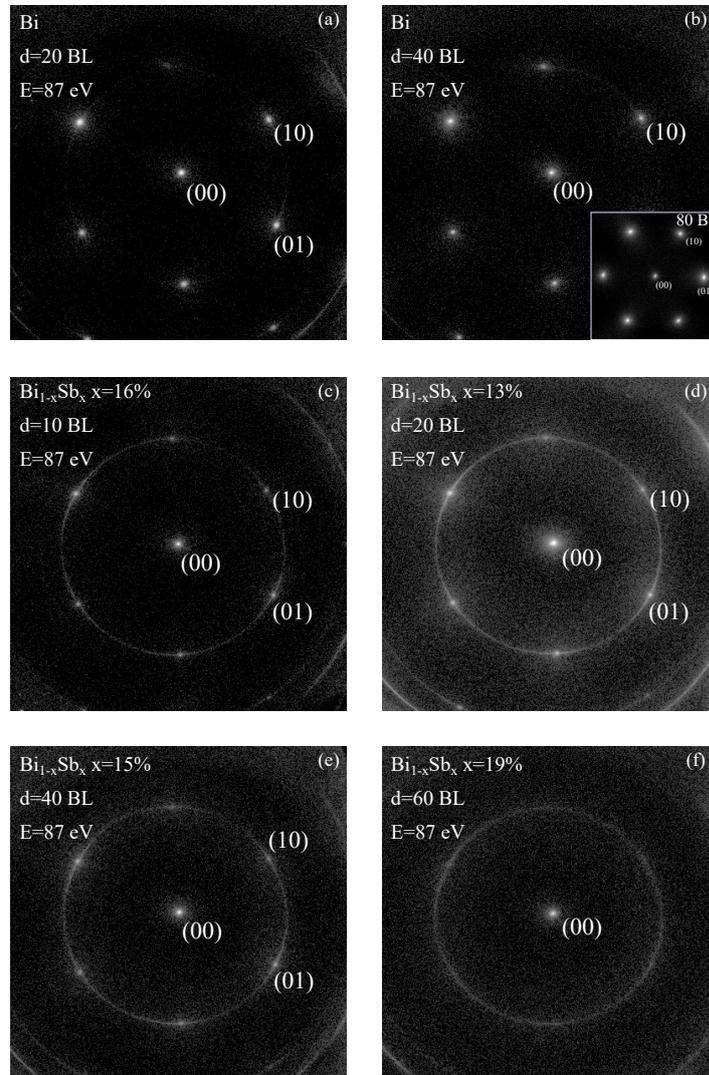


Abbildung 5.2: (a) und (b) SPA-LEED Aufnahme eines 20- und 40 BL dicken Bismuthfilms bei einer Elektronenenergie von 87 eV ($S=6$). Im Inset von (b) ist zudem eine Aufnahme eines 80 BL dicken Films gezeigt (andere Elektronenenergie und Substratausrichtung). Mit zunehmender Schichtdicke verschwindet der Beugungsring, der durch die Rotationsfehlordnung von Bi(111)-Körnern hervorgerufen wird. (c)-(f) SPA-LEED Aufnahme von $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ -Filmen mit den Schichtdicken 10-, 20-, 40- und 60 BL. Die Sb-Konzentration variiert zwischen 13- und 19%. Der Beugungsring ist deutlich intensiver und gewinnt mit der Schichtdicke an Gewicht.

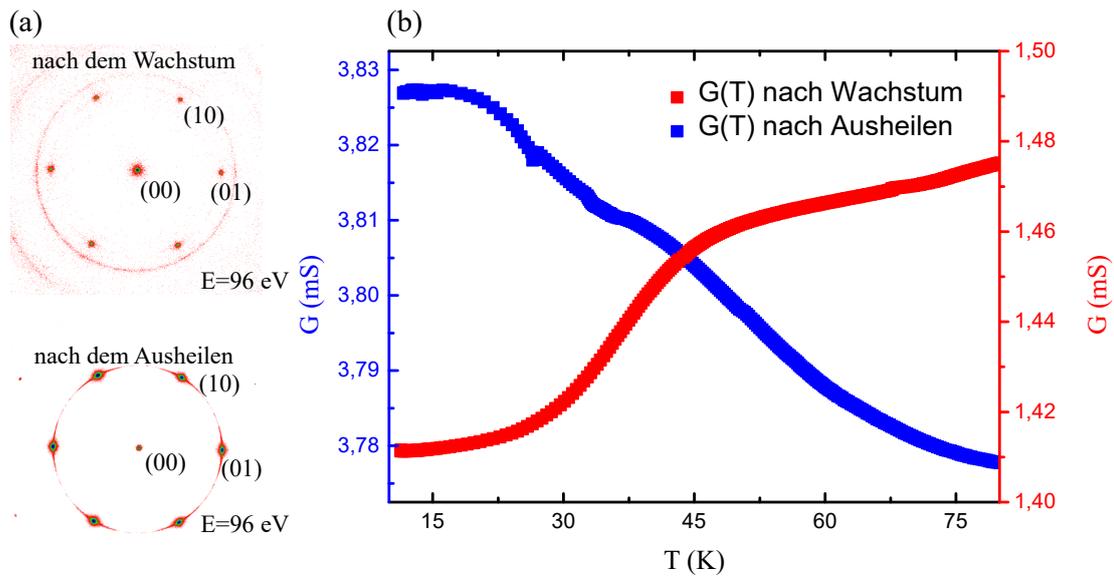


Abbildung 5.3: (a) SPA-LEED Aufnahmen nach dem Wachstum und nach dem Ausheilen eines 30 BL dicken Bismuthfilms. (b) Leitwert als Funktion der Temperatur nach dem Wachstum und nach dem Ausheilen desselben Bismuthfilms.

erreicht wurde, beträgt die Korngröße etwa 48 nm^1 . Die Bismuthfilme sind direkt nach dem Wachstum also noch von schlechter kristalliner Qualität. Erst durch den Ausheilschritt bei einer Temperatur von 450 K für mindestens eine Stunde steigt die kristalline Ordnung. An dieser Stelle sei erwähnt, dass der Ausheilprozess in den meisten Fällen bis zum Erreichen eines Maximums im Verlauf des Leitwerts durchgeführt wurde. Ab diesem Punkt sinkt der Leitwert wieder, da der Film beginnt aufzubrechen. Wird die Proben temperatur direkt nach dem Maximum verringert, ist die bestmögliche Filmqualität erreicht. Die Dauer dieser Prozedur variiert dabei mit der Schichtdicke. Je dicker der Film, desto länger braucht der Prozess. Für die Messungen an Filmen mit einer Schichtdicke $>50 \text{ BL}$, die im Verlauf dieser Arbeit vorgestellt werden, beträgt die Ausheilzeit mindestens eine Stunde. Um die Oberflächenqualität zu prüfen, wird nach jedem Wachstum ein SPA-LEED Beugungsbild aufgenommen.

5.1.1 Oszillationen des Leitwerts bei der Homoepitaxie

Die Bestimmung der Wachstumsrate erfolgt über die Oszillationen des Leitwerts bei der Homoepitaxie von Bismuth [97, 106]. Im Kapitel 4.1.1 wurde bereits erwähnt, dass die Messung der Rate auf dem Prinzip der Mikrowägung mit einem Schwingquarz beruht, wobei die Frequenzänderung $f_0 - f$ ein Maß der aufgedampften Menge ist. Durch die Korrelation der Frequenzänderung an der Quarzwaage mit den

¹ Durch den kleinen Bereich der Streuphase und die geringe Anzahl an Linienscans (S wurde jeweils um $0,25$ erhöht) sind die angegebenen Korngrößen eine grobe Näherung. Die entsprechenden Fits befinden sich im Anhang A.1 Abbildung A.1.

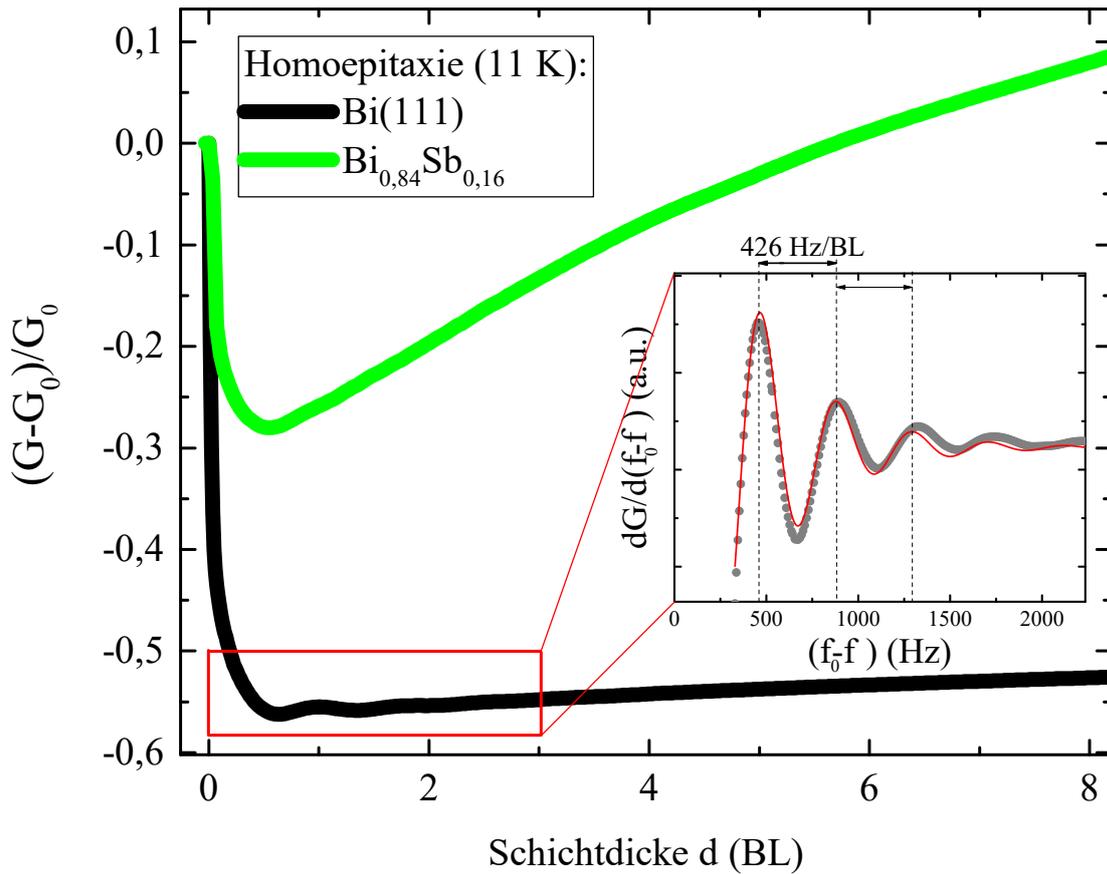


Abbildung 5.4: Entwicklung des Leitwerts bei der Homoepitaxie von Bismuth auf einem 20 BL dicken Film und $\text{Bi}_{0,84}\text{Sb}_{0,16}$ auf einem 10 BL dicken Film bei einer Substrattemperatur von 11 K. Inset: Ableitung des Leitwerts $dG/d(f_0-f)$ als Funktion der Frequenzänderung. Die Oszillationen der ersten vier BL wurden durch eine gedämpfte Sinus-Funktion beschrieben und zeigen eine Wachstumsrate von 426 Hz/BL.

Schichtdickenoszillationen des Leitwerts kann eine sehr genaue Kalibrierung der aufgedampften Menge vorgenommen werden. Dazu wird zunächst ein dünner Bismuthfilm gemäß der im vorherigen Abschnitt beschriebenen Vorgehensweise gewachsen und ausgeheilt. Anschließend wird das Wachstum bei einer Temperatur von 11 K unter Aufnahme des Leitwerts fortgesetzt. In der Abbildung 5.4 ist die Änderung des Leitwerts als Funktion der Schichtdicke bei dem Wachstum auf einem 20 BL dicken Film dargestellt. Bei einsetzender Adsorption nimmt der Leitwert um etwa 55 % ab. Die zusätzlichen Atome auf der Oberfläche stellen eine Störung des Oberflächenzustandes dar, da sie wie zusätzliche Streuzentren wirken. Interessanterweise nimmt der Leitwert nur um 55 % ab und nimmt bei weiterer Erhöhung der Schichtdicke wieder etwas zu. Bei einer solch starken Störung des Oberflächenzustandes, der den einzigen leitenden Kanal darstellt, scheint diese Änderung gering. Dieser Aspekt wird in den folgenden Kapiteln noch einmal aufgegriffen.

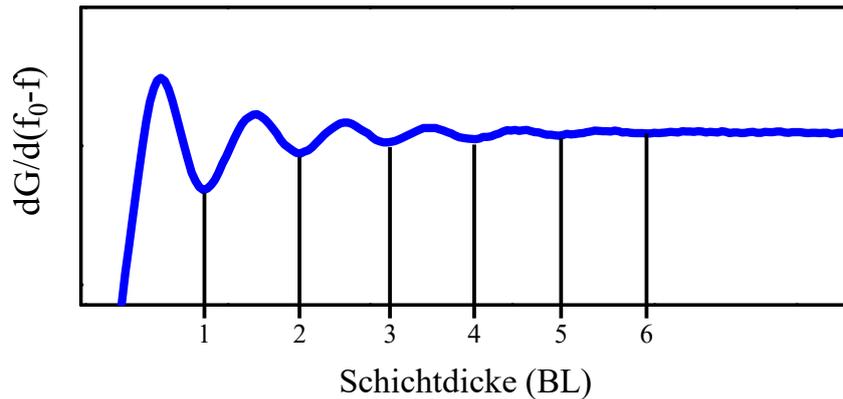


Abbildung 5.5: Schichtdickenoszillationen des Leitwertes bei einer Proben­temperatur von 80 K.

Mit zunehmender Schichtdicke werden die Oszillationen sichtbar. Diese werden besonders deutlich, wenn die Ableitung dG/df_0-f gebildet wird. Dies ist im eingefügten Ausschnitt dargestellt. Dabei entspricht die Position des Minimums einer halben Bilage, entsprechend einer maximalen Störung des Oberflächenzustandes. Ein Maximum des Leitwertes wird erreicht, wenn eine ganze Bilage aufgebracht ist, entsprechend einer minimalen Störung. Die Abstände der Extrema als Funktion der Frequenzänderung bestimmen also die Wachstumsrate zu 426 Hz/BL. Mit zunehmender Bedeckung nimmt die Amplitude der Oszillationen ab und sie verschwinden ab einer Schichtdicke von 4 BL. Ein perfektes Lage-für-Lage Wachstum ist bei dieser Substrattemperatur also nur bedingt möglich. In der Abbildung 5.5 die eine Messung der Schichtdickenoszillationen bei einer Temperatur von 80 K dargestellt. Entsprechend einer Erhöhung der Beweglichkeit der Bismuthatome auf der Oberfläche, sind in diesem Fall sechs volle Oszillationen zu erkennen. Aufgrund des Fehlens von SPA-LEED Beugungsreflexen nach beiden Experimenten, ist davon auszugehen, dass nach dem anfänglichen Lage-für-Lage Wachstum die Rauigkeit des Films stark zunimmt und eine amorphe Schicht entsteht.

Im Gegensatz dazu sind bei der Homoepitaxie von $\text{Bi}_{0,84}\text{Sb}_{0,16}$ (grüne Kurve in 5.4) keine Oszillationen sichtbar. Das Schichtwachstum läuft also in diesem Fall weniger geordnet ab. Zudem nimmt der Leitwert zwar anfänglich ab, steigt danach aber deutlich steiler an als es der Leitwert von Bismuth tut. Dieser Punkt wird bei der Analyse der Mischfilme in Kapitel 8 noch einmal aufgegriffen und als Anteil parasitärer Kanäle zum Gesamtleitwert interpretiert.

5.1.2 Einfluss der Substratalterung auf die Schichtqualität und sukzessives Filmwachstum

Im Laufe der durchgeführten Experimente hat sich herausgestellt, dass die Schichtqualität der Bismuthfilme mit dem Alter des Substrates bzw. den damit durchgeführ-

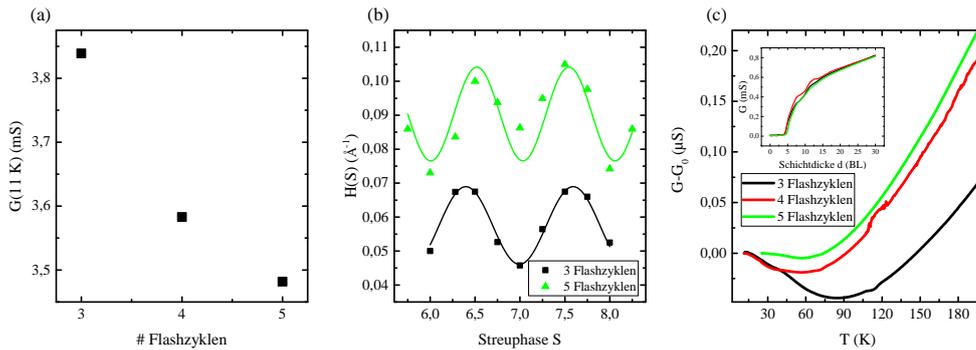


Abbildung 5.6: Einfluss der Substratalterung auf die Schichtqualität. (a) Änderung des Leitwerts $G(11\text{ K})$ als Funktion der durchgeführten Flashzyklen. (b) $H(S)$ Analyse nach 3 bzw. 5 Flashzyklen. (c) Leitwert als Funktion der Temperatur eines 30 BL dicken Bismuthfilms für ein verschieden oft geflashtes Substrat. Im Inset ist die Entwicklung des Leitwerts beim Wachstum dargestellt.

ten Flashzyklen abnimmt. Dies äußert sich durch die Abnahme des Leitwerts bei einer Temperatur von 11 K, sowie in der SPA-LEED Analyse der Oberfläche.

In der Abbildung 5.6 (a) ist die Entwicklung des Leitwerts $G(11\text{ K})$ als Funktion der mit dem Substrat durchgeführten Präparationen dargestellt. Es wird deutlich, dass dieser immer geringer wird. Weiterhin sind in der Abbildung 5.6 (b) $H(S)$ -Analysen je eines 30 BL dicken Bismuthfilms nach drei und nach fünf Flashzyklen dargestellt. Beide Filme zeigen einen identischen Verlauf des Leitwerts während des Wachstums (Inset in Abbildung 5.6 (c)) aber unterschiedliche Korngrößen von 35 nm und 31 nm². Diese Änderungen schlagen sich auch auf den $G(T)$ -Verlauf der Filme (Abbildung 5.6 (c)). Das Minimum des Leitwerts verschiebt sich zu tieferen Temperaturen und der Anstieg des aktivierten Transports (vgl. Kapitel 6.1) wird steiler. Daher ist davon auszugehen, dass die Qualität des Substrates und damit auch die Schichtqualität der aufgewachsenen Filme mit der Zeit abnimmt.

Um dieses Problem zu umgehen und quantitativ vergleichbare Resultate während den in dieser Arbeit vorgestellten schichtdickenabhängigen Studien zu erzielen, wurden die unterschiedlichen Schichtdicken durch sukzessives Aufdampfen und Ausheilen hergestellt. Als Präparationsparameter wurden jeweils die zuvor vorgestellten verwendet. In der Abbildung 5.7 sind LEED Aufnahmen der Schichten nach dem Nachbedampfen für Schichtdicken von 20-, 27- und 55 BL dargestellt. Für alle Filme wird die hexagonale Bi(111)-Struktur beobachtet.

² Für beide Filme wurden identische Präparationsparameter verwendet.

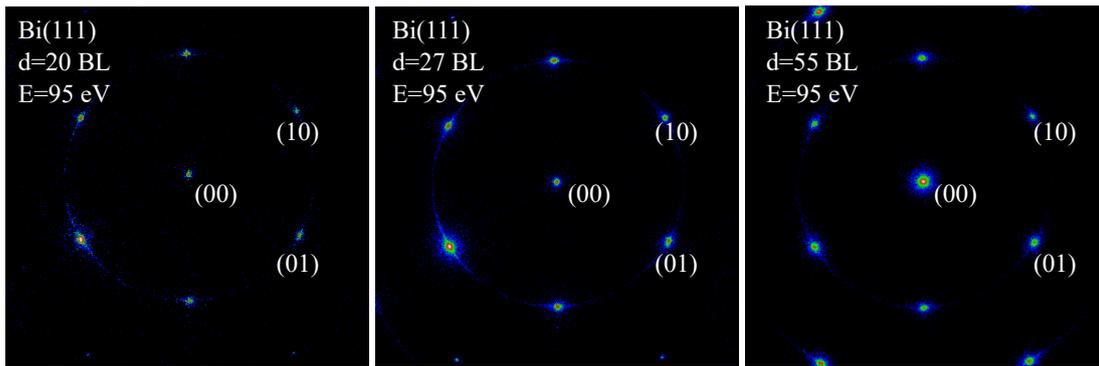


Abbildung 5.7: SPA-LEED Aufnahmen von Bismuthfilmen unterschiedlicher Schichtdicke, die durch sukzessives Bedampfen hergestellt wurden.

5.1.3 Vertikale Verteilung des Antimons in der Bismuthmatrix

Zur Analyse der vertikalen Verteilung des Antimons in der Bismuthmatrix wurden Sputter-XPS Messungen durchgeführt. Das Tiefenprofil entsteht bei dem Abtragen der Schicht durch Ionenbombardement und gleichzeitiger XPS-Messung. Somit wird die chemische Zusammensetzung der Schicht bestimmt. Diese Messungen wurden von Ioan Costina am Leibniz Institut für innovative Mikroelektronik durchgeführt. Als Sputtergas wurden Ar^+ -Ionen mit einer Energie von 500 eV verwendet. Zur Vermessung wurde ein 50 BL dicker $\text{Bi}_{0,8}\text{Sb}_{0,2}$ -Film, gewachsen auf einer 10 BL dicken $\text{Bi}(111)$ -Pufferschicht. Die Probe wurde zum Transport aus der UHV-Umgebung transferiert, sodass eine Oxidation des Materials sehr wahrscheinlich ist. In der Abbildung 5.8 sind die atomaren Konzentrationen von Bismuth, Antimon, Kohlenstoff, Silizium und Sauerstoff gegen die Sputterzeit aufgetragen. Hierbei lassen sich drei Bereiche voneinander unterscheiden. Im ersten Bereich wird das XPS vom $\text{O}1s$ dominiert, entsprechend der erwarteten Oxidation der Probe. Der zweite Bereich zeigt das Signal des Mischfilms und der Pufferschicht. Hierbei ist eine homogene Verteilung des Antimons in der Bismuthmatrix zu erkennen. Im dritten Bereich wird das Silizium Substrat anhand des $\text{Si}2p$ Peaks beobachtet. Der aufgedampfte Film ist an dieser Stelle komplett abgetragen.

Zusammen mit den Oberflächenanalysen durch SPA-LEED lässt sich der Film als homogene Durchmischung beider Komponenten mit einer relative guten kristallinen Ordnung charakterisieren.

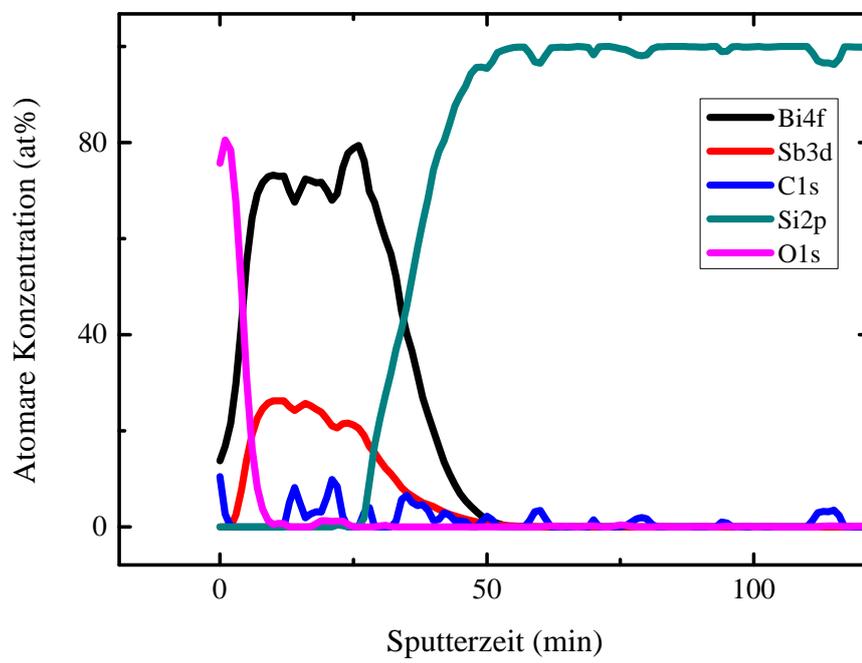


Abbildung 5.8: Atomare Konzentration von Bismuth und Antimon als Funktion der Sputterzeit.

ELEKTRONISCHER TRANSPORT IN ULTRA-DÜNNEN BISMUTHFILMEN

Bismuthfilme sind bereits seit den 60er Jahren ein Thema wissenschaftlicher Debatten. Untersuchungen bezüglich des Quanten-Size-Effekts (QSE) wurden aufgrund der langen Fermi Wellenlänge des Volumens ($\lambda_F \approx 30 \text{ nm}$) durchgeführt. Durch Erniedrigung der Bismuthfilmdicke werden dabei die Ladungsträger in z -Richtung eingeschränkt. Die Einschränkung führt zu einer Aufspaltung der Zustände in Subbänder, die sich energetisch derart verschieben, dass eine Bandlücke entsteht. Dieser Halbmetall-Halbleiter- (SM-SC) Übergang, schematisch dargestellt in Abbildung 6.1, wurde bereits 1967 vorhergesagt [2]. Erst etwa 40 Jahre später, als ARPES-Messungen die Existenz eines metallischen Oberflächenzustands von dünnen Bismuthfilmen zeigten, konnten Messungen elektrischen Transports, die eine Überlagerung aus Oberflächen- und Volumenanteil darstellen, richtig interpretiert und der SMSC-Übergang nachgewiesen werden [3, 4] (vgl. 3.2).

Die durch den Rashba-Effekt spinpolarisierten Oberflächenbänder weckten großes Interesse an der Charakterisierung der Oberflächenleitfähigkeit [9, 10], wobei das System idealerweise ein voneinander entkoppeltes halbleitendes Volumen und eine leitende Oberfläche besitzt. Im folgenden Kapitel wird anhand temperaturabhängiger Messungen von ultra-dünnen Bismuthfilmen die Existenz des QSE gezeigt sowie die Bedingungen für dessen Beobachtung vorgestellt. Außerdem wird die Frage der Trennung von Oberflächen- und Volumenbeitrag zum elektrischen Transport diskutiert. Dazu werden $G(T)$ -Messungen des Leitwerts für verschieden dicke Bismuthfilme vorgestellt.

Alle im Folgenden gezeigten Messungen sind an Bismuthfilmen sehr kleiner Schichtdicke durchgeführt worden. Im klassischen Sinne ist die Bezeichnung Volumen in diesem Fall nicht mehr richtig, da es keine langreichweitig ausgedehnte Schicht in z -Richtung mehr gibt. Es handelt sich vielmehr um je nach Schichtdicke aufgespaltene diskrete Bänder. Um diese Unterscheidung deutlich zu machen wird im Folgenden von Valenzbändern gesprochen, wobei die untersuchten Eigenschaften dieser Zustände aus dem energetisch niedrigsten Subband ($n=1$) stammen.

Zusätzlich werden Magnetotransportmessungen für ultra-dünne Bismuthfilme unterschiedlicher Schichtdicke vorgestellt, um einen Einblick in die zugrunde liegenden Streumechanismen für unterschiedlich starke Ausprägung des QSE zu erhalten. Dazu werden Messungen mit einem Magnetfeld senkrecht und parallel zur Probenoberfläche analysiert.

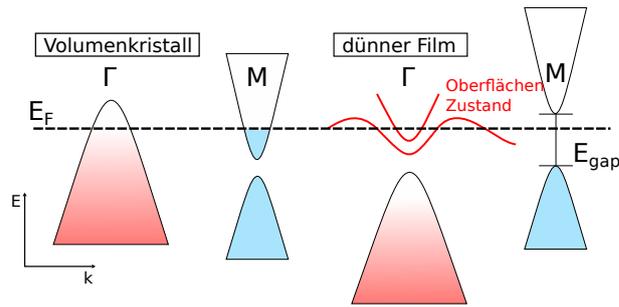


Abbildung 6.1: Schematische Darstellung der Bandstruktur von Bismuthvolumenkristallen und dünnen Filmen.

6.1 TEMPERATURABHÄNGIGKEIT ULTRA-DÜNNER BISMUTHFILME

Die in diesem Abschnitt vorgestellten Messungen stammen aus drei unterschiedlichen Messreihen. In den Messreihen 1- und 2 wurden jeweils neue Siliziumsubstrate verwendet und die verschiedenen Schichtdicken wurden durch sukzessives Bedampfen und Ausheilen hergestellt. Die Messreihe 3 besteht aus auf mehreren Substraten hergestellten Schichten, wobei zwischen jeder Präparation der alte Bismuthfilm desorbiert und eine frische (7×7)-Überstruktur des Siliziumsubstrats hergestellt wurde. Alle Messungen wurden mit einer Temperaturrampe von 2 K/min durchgeführt.

In der Abbildung 6.2 (a) und (b) ist die Temperaturabhängigkeit für verschieden dicke Bismuthfilme zwischen 20 und 75 BL dargestellt.¹ Für eine bessere Sichtbarkeit ist im Inset von (a) eine vergrößerte Ansicht des Bereichs tiefer Temperaturen (10-95 K) dargestellt. Bei der Abbildung 6.2 (a) handelt es sich um die Messreihe 1 und (b) um Messreihe 2. Für Schichtdicken ab $d=40$ BL durchläuft der Leitwert nach einem anfänglichen Abfall ein Minimum und steigt mit zunehmender Temperatur über den gesamten untersuchten Bereich an. Die $G(T)$ -Verläufe für Schichtdicken < 40 BL sind hingegen durch ein über den gesamten Temperaturbereich metallischen Charakter ausgezeichnet. Bei genauerer Analyse wird sich jedoch ein steigender Anteil der Messkurven bei Temperaturen > 250 K zeigen (vgl. Abbildung 6.3). Weiterhin nimmt der steigende Anteil des Leitwerts für hohe Temperaturen mit zunehmender Schichtdicke deutlich zu und es ist eine Verschiebung des Minimums zu größeren Temperaturen mit kleiner werdender Schichtdicke zu erkennen.

Bei der Messreihe 2 (20 - 50 BL) ist zusätzlich eine Signatur bei etwa 200 K erkennbar. Nach Abzug des metallischen Oberflächenanteils, wie später im Text erläutert, zeigt sich, dass diese für alle Schichtdicken die gleiche Amplitude und Temperatur aufweist. Es handelt sich dabei höchstwahrscheinlich um einen Beitrag des Silizium-

¹ Aus Gründen der Übersicht sind in den Abbildungen 6.2 (a) und (b) nicht alle untersuchten Schichtdicken gezeigt. Zur weiteren Auswertung wurden alle vorhandenen Daten verwendet.

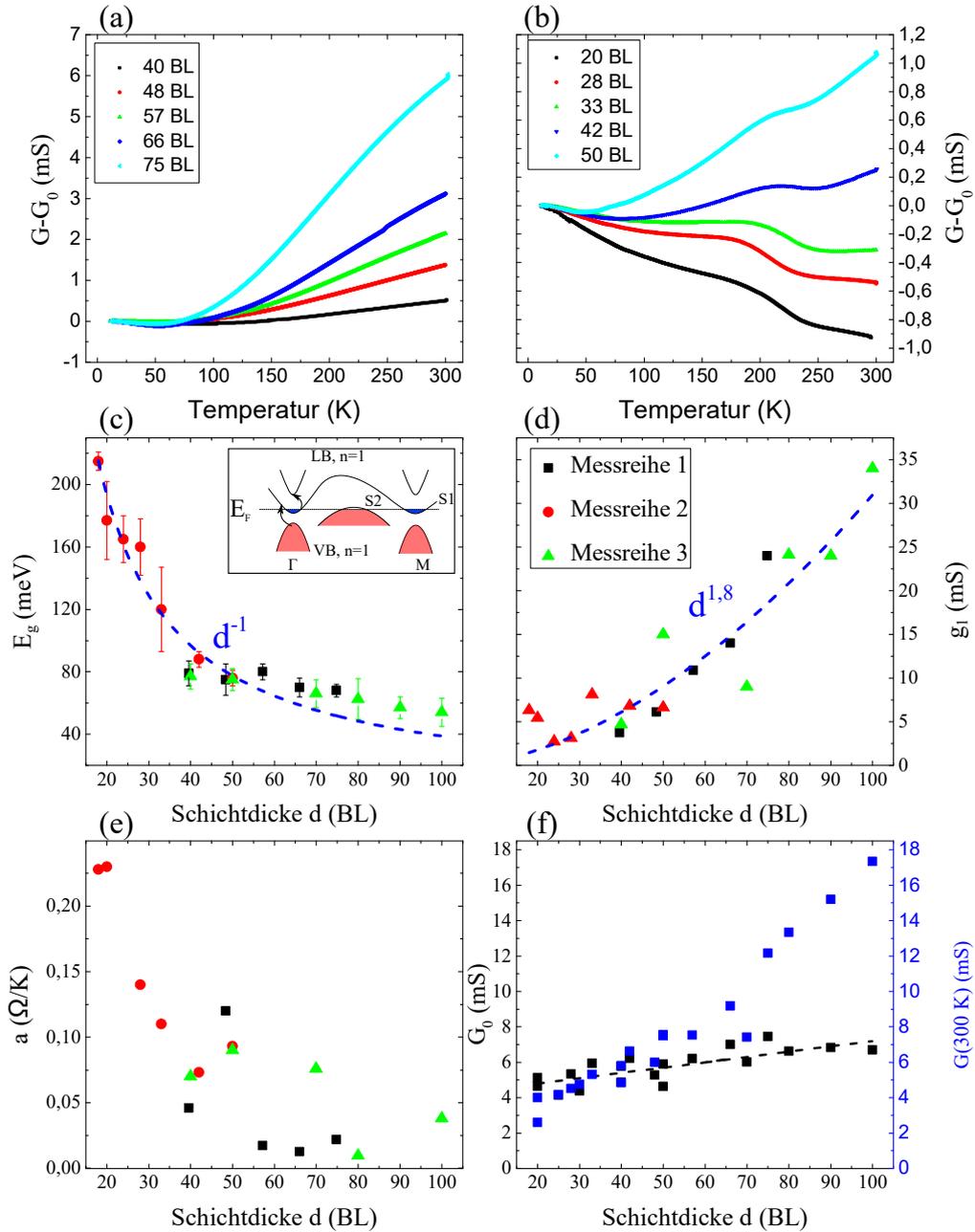


Abbildung 6.2: (a) Messreihe 1: Leitwert G als Funktion der Temperatur T für Bi-Schichtdicken zwischen 40 und 75 BL. Im Inset ist ein Ausschnitt für kleine Temperaturen (10-95 K) für eine bessere Sichtbarkeit dargestellt. (b) Messreihe 2: G gegen T für Bi-Schichtdicken zwischen 20 und 50 BL. (c)-(e) Aktivierungsenergie E_g , g_1 und a erhalten durch Analyse der Messkurven in (a), (b) mithilfe von Gleichung 6.1. (f) Absolutwerte des Leitwerts für 11 K (linke Ordinate) und 300 K (rechte Ordinate). Im Inset von (c) ist eine schematische Darstellung der Bandstruktur mit möglichen Übergängen durch Temperaturaktivierung dargestellt.

substrats. Hierbei kann sich durch Segregation von Dotieratomen in oberflächennahe Bereiche beim Flashen des Siliziumsubstrats eine Raumladungszone entstehen. Dies

erklärt, warum in der betroffenen Messreihe ein konstanter Beitrag beobachtet wird, in allen anderen Messungen jedoch nicht. Im wesentlichen sind die verwendeten Substrate isolierend, können aber in einigen Fällen für Temperaturen nahe RT einen geringen Beitrag liefern. Für die weitere Auswertung wird dieser Teil der Messkurven demnach nicht berücksichtigt, führt aber dazu, dass die Fehlergrenzen bei der Auswertung der Bandlücken in (c) für Messreihe 2 sehr groß sind.

Die Beobachtung eines metallischen und halbleitenden Anteils des Leitwerts als Funktion der Temperatur legt die Interpretation der vorliegenden Messdaten als Summe aus zwei separaten Transportkanälen nahe: Die Abnahme des Leitwerts für tiefe Temperaturen wird dem metallischen Oberflächenzustand zugeordnet, der exponentielle Anstieg für hohe Temperaturen wird von den Valenzbändern des Bismuthfilms hervorgerufen. Diese strikte Trennung, ebenfalls zahlreich in der Literatur vertreten [90], trifft jedoch, wie später erläutert, nicht vollständig zu. Klar ist jedoch, dass der vorliegende Temperaturverlauf eine Überlagerung zwischen einem metallischen und einem halbleitenden Kanal ist. Zur Beschreibung der Messkurven wird das von Xiao et al. vorgeschlagene Modell verwendet [7]:

$$G(T) = G_{\text{OF}}(T) + G_{\text{Vol}}(T) = \frac{1}{1/g_0 + aT} + g_1 \cdot \exp\left(-\frac{E_g}{2k_B T}\right) \quad (6.1)$$

Der erste Term beschreibt den metallischen Oberflächenanteil des Leitwerts. g_0 bezeichnet den Leitwert bei $T=0\text{ K}$. Die Temperatur T taucht hierbei in erster Potenz mit Proportionalitätskonstante a auf. Wie im Abschnitt 2.2.1 beschrieben, ist der temperaturabhängige Leitwert von Metallen für $T \ll \Theta_D$ durch eine T^{-5} -Abhängigkeit gekennzeichnet, hingegen proportional zu T^{-1} für $T > \Theta_D$. Für sehr kleine Temperaturen ist dieser Term daher kritisch zu betrachten, für größere Temperaturen aber sicherlich angemessen.

Der zweite Term beschreibt den aktivierten Anteil des Leitwerts. Dabei ist g_1 eine Fitkonstante, die das Produkt aus effektiver Ladungsträgerkonzentration und Ladungsträgerbeweglichkeiten beinhaltet. E_g ist die schichtdickenabhängige Bandlücke, die Anregungsprozesse von vollbesetzten Valenzbändern in unbesetzte Zustände an der Fermi-Kante beschreibt. Dieser mögliche Mechanismus ist im Inset der Abbildung 6.2 (c) dargestellt. Weiterhin ist k_B die Boltzmann-Konstante. In der Abbildung 6.3 sind zwei exemplarische Fits des Modells an den $G(T)$ -Verlauf eines 28 BL (a) und 75 BL (b) dicken Bi-Films dargestellt². Für die Anpassung des 28 BL Films wurde der Mittelteil der Messkurve (ca. 80-230 K), wie zuvor erwähnt, nicht berücksichtigt. Allgemein ist zu erkennen, dass das Modell die Messdaten in befriedigender Weise beschreiben kann. In der Abbildung 6.2 (c) und (d) sind die durch Anpassung von Gleichung 6.1 an die Messdaten erhaltenen Energielücken bzw. der Parameter g_1 dargestellt.

² Im Anhang A.2 befinden sich weitere Fits eines 45 BL und 85 BL dicken Bi-Films, wobei diesmal beide Komponenten separat dargestellt sind (Abbildung A.2 und A.3).

Die Bandlücke E_g steigt mit abnehmender Schichtdicke $\propto d^{-1}$ an. In einem idealen Kastenpotential mit unendlich hohen Wänden wird theoretisch ein Zusammenhang von $1/d^2$ erwartet, wohingegen ein $1/d$ -Zusammenhang für ein parabolisches Potential erwartet wird. Auf der Vakuumseite des Bismuthfilms hängt die Form des Potentials von der Ausdehnung der Bi-Wellenfunktion ab, sodass die Potentialform sicherlich nicht kastenförmig ist. An der Grenzfläche zum Siliziumsubstrat kann dieses sogar noch weiter durch Wechselwirkungen zwischen den Grenzflächen verändert sein, sodass $E_g \propto 1/d^n$ mit $1 < n < 2$ gilt. In anderen Studien werden ebenfalls variierende Exponenten $\neq 2$ gefunden. Ke et al. finden für Sb-dotierte SbO_2 -Filme einen Zusammenhang $\propto d^{-1.56}$, während Berchtold et al. für Indium-Antimonid-Filme $\propto d^{-1.4}$ beobachten [107, 108]. Der Grund für diese Abweichungen sind also die vom idealisierten Kastenpotential abweichenden Potentiale an den Grenzflächen.

Die Interpretation im Sinne des QSE wird durch die Analyse des Fit-Parameters g_1 , der als Beitrag des Bi-Valenzbandes zum Gesamtleitwert interpretiert werden kann, unterstützt. Da die mittlere freie Weglänge l_e in den untersuchten Filmen größer als die Schichtdicke ist - für einen 20 BL Film beträgt sie etwa 40 nm - findet hauptsächlich Streuung an den Grenzflächen statt. Damit ist die Ladungsträgerbeweglichkeit μ proportional zur Schichtdicke und sorgt für einen Anstieg von g_1 mit d . In g_1 wird jedoch kein linearer Zusammenhang beobachtet. Die Anpassung dieser Daten zeigt vielmehr $g_1 \propto d^{1.8 \pm 0.2}$, also eine quadratische Abhängigkeit. Hier spielt also ein weiterer Faktor eine Rolle. Dies sind die Ladungsträgerkonzentrationen, die ebenfalls mit der Schichtdicke variieren [109, 110]. Die Krümmung der quantisierten Bänder wird mit der Schichtdicke kleiner, sodass bei gleicher Temperatur und höheren Schichtdicken mehr Ladungsträger angeregt werden können (vgl. Abbildung 6.17 (b)). Diese Abhängigkeit wird in Abschnitt 6.2 Anhand von MLW-Messungen bestätigt.

In der Abbildung 6.2 (f) sind die Leitwerte der Filme unterschiedlicher Schichtdicke d bei einer Probertemperatur von 11 K (linke Ordinate) und 300 K (rechte Ordinate) dargestellt. Die Werte wurden aus den jeweiligen $G(T)$ -Verläufen entnommen. Bei tiefer Temperatur dominiert der Oberflächenkanal und eine Erhöhung der Schichtdicke sollte nicht zu einer Erhöhung des Leitwerts führen. Ein Beitrag der Valenzbänder ist außerdem aufgrund der großen Bandlücke bei diesen Temperaturen nicht zu erwarten. Dennoch lässt sich trotz der starken Streuung³ der Messwerte eine steigende Tendenz des Leitwerts mit zunehmender Schichtdicke erkennen. Eine lineare Approximation der Datenpunkte⁴, dargestellt durch die gestrichelte Linie, quantifiziert die Zunahme des Leitwerts zu: $\Delta G = 30 (\pm 6) \mu\text{S}/\text{BL}$.

Durch die Oszillationen des Leitwerts zur Kalibrierung der Schichtdicke aus Kapitel 5 (vgl. Abbildung 5.4) kann eine ähnliche Abschätzung getroffen werden. Hierbei wird ein homoepitaktischer Bismuthfilm bei tiefen Temperaturen auf einen qualita-

³ Der Leitwert der Schicht ist präparationsbedingt. Beispiel 50 BL Film: Es gibt eine Streuung des Leitwerts von ca. 1 mS.

⁴ An dieser Stelle wird eine lineare Proportionalität des Leitwerts G zur Schichtdicke d impliziert. Diese wird in Kapitel 6.2 gerechtfertigt.

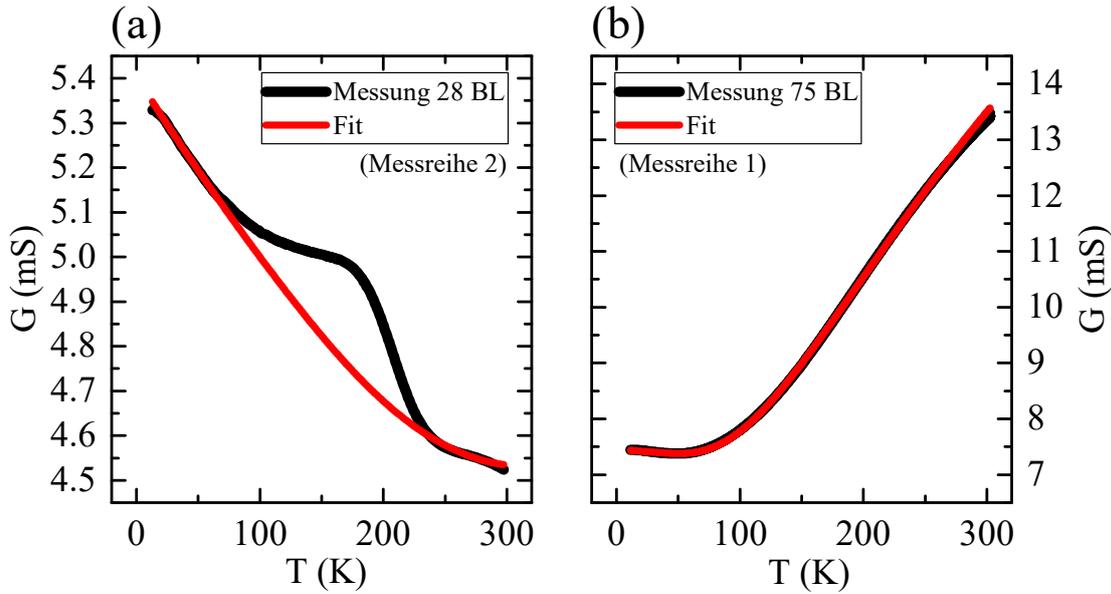


Abbildung 6.3: Leitwert G als Funktion der Temperatur T eines 28-(a) und 75 BL(b) dicken Bismuthfilms in schwarz und der jeweilige Fit des vorgestellten Modells in rot. Für den 28 BL fit wurde der durch den SCL verursachte Anstieg im mittleren Teil der Messkurve nicht berücksichtigt.

tiv guten Bi(111)-Film gewachsen. Aufgrund der beobachteten Oszillationen ist von einem Lage-für-Lage Wachstum bei kleinen Zusatzbedeckungen auszugehen. Die Oszillationen verschwinden nach einigen Bilagen, sodass bei einer hinreichend dicken Schicht kein langreichweitig ausgeprägter Oberflächenzustand mehr besteht⁵.

In beiden Messungen stammt der Zuwachs von G von einer Änderung der Oberflächenbänder. Sowohl die Position als auch die Krümmung der Elektronen- und Lochtaschen ändern sich mit der Schichtdicke, was zu erhöhten Ladungsträgerkonzentrationen führt. Dies wurde unabhängig durch ARPES-Messungen und DFT-Rechnungen gezeigt [3, 110]. Diese Ergebnisse sind außerdem konsistent mit den in Abschnitt 6.2 vorgestellten Magnetotransportmessungen.

Bei der Zunahme des Leitwerts bei der Homoepitaxie ist die Situation etwas anders. Der Oberflächenzustand wird nach Adsorption einiger Bilagen zerstört. Dadurch bleibt lediglich der Grenzflächenzustand als leitender Kanal übrig⁶. Die Bänder dieses Zustandes werden durch die zusätzliche Schichtdicke in äquivalenter Weise beeinflusst wie die des Oberflächenzustandes bei unterschiedlicher Schichtdicke, was zu einem Anstieg des Leitwerts mit der Zusatzbedeckung führt. Der Anstieg der Leitfähigkeit von $\Delta G = 38 \mu\text{S}/\text{BL}$ stimmt sehr gut mit der linearen Approximation der $G(11\text{ K})$ Werte überein. Der Leitwert des Oberflächenzustandes für einen 20 BL dicken Bismuthfilm von $G_{\text{OF}} = 4,4 \text{ mS}$ ist vergleichbar mit Werten aus anderen Studien [8, 9].

⁵ Dies wird aufgrund des Ausbleibens von LEED-Beugungsreflexen nach dem Wachstum beurteilt.

⁶ Weitere Details über die Existenz dieses Zustandes werden im Verlauf dieses Kapitels erläutert.

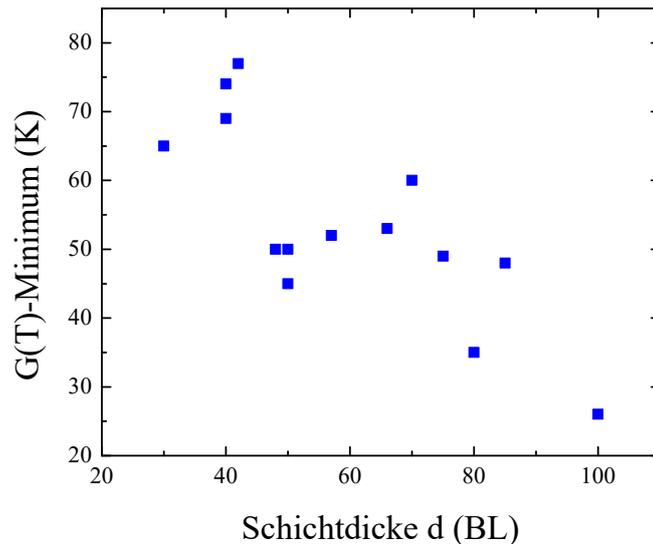


Abbildung 6.4: Die Position des Leitwertminimums verschiebt sich als Funktion der Schichtdicke zu kleineren Temperaturen.

Die Interpretation der Leitwerte bei 300 K als Funktion der Schichtdicke ist analog zu den gefundenen Werten für g_1 , wobei in diesem Fall der Oberflächenbeitrag überlagert ist. Auch hier nimmt der Leitwert deutlich als Funktion der Schichtdicke zu. Abgerundet kann dies den Zusammenhang der Position des Leitwertminimums als Funktion der Schichtdicke, dargestellt in der Abbildung 6.4, erklären. Je größer die Schichtdicke ist, desto kleiner werden die Abstände der quantisierten Zustände und damit die Bandlücke. Der aktivierte Transport setzt also für dickere Filme bereits bei kleineren Temperaturen ein, wodurch die Position des Minimums mit steigender Schichtdicke zu kleinen Temperaturen verschoben wird.

Zusätzlich zu den nun vorgestellten Messreihen wurden einige temperaturabhängige Messungen von dünnen Bismuthfilmen <30 BL durchgeführt, in denen keine metallische Leitfähigkeit über den gesamten Temperaturbereich beobachtet wurde. Ein exemplarischer Vergleich für zwei 20 BL Filme mit unterschiedlichen elektronischen Eigenschaften ist in der Abbildung 6.5 (a) und (b) dargestellt. Die Filme geringer Qualität kennzeichnen sich durch einen vergleichsweise kleinen Leitwert, der sich im vorliegenden Beispiel um mehr als einen Faktor 2 unterscheidet. Die Oberflächenanalyse mittels SPA-LEED zeigt außerdem eine größere Rotationsfehlordnung im Vergleich mit dem metallischen Film. Die Bandlücke für den schlecht geordneten Film beträgt 50 ± 12 meV. Dies kann nicht mit dem Modell des QSE in Einklang gebracht werden. Folglich besteht ein enger Zusammenhang zwischen der Schichtqualität und der Beobachtung des *Quanten-Size-Effekts* in dünnen Bismuthfilmen. D. h. wird die Streuung an den Grenzflächen durch Streuung an den Korngrenzen überlagert, sodass $l_e > d$ nicht mehr erfüllt ist, können in temperaturabhängigen Messungen des Leitwerts keine Rückschlüsse auf die tatsächliche Bandlücke der vorliegenden Schicht gemacht werden.

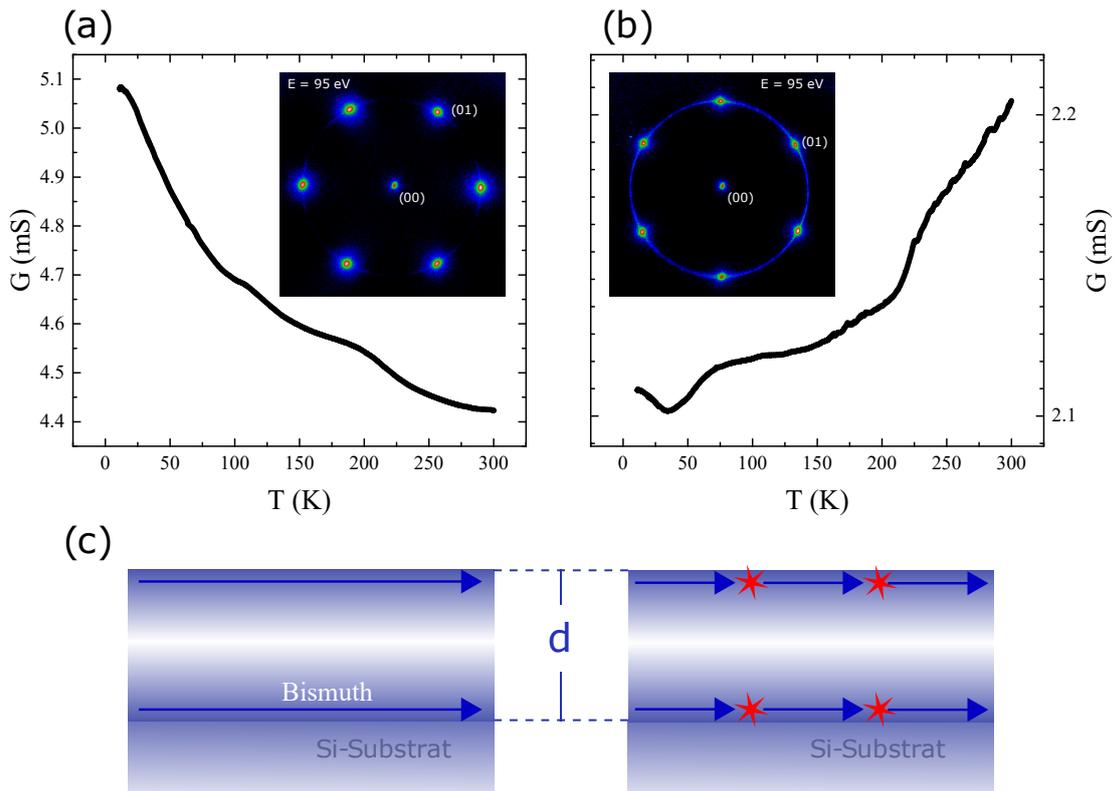


Abbildung 6.5: (a) und (b) Vergleich des Leitwertverhaltens G als Funktion der Temperatur T eines metallischen 20 BL Bi-Films mit einem Film gleicher Schichtdicke, aber schlechterer kristalliner Qualität. Die Insets zeigen das jeweilige Beugungsbild der Oberfläche. (c) Schematische Darstellung der Streuprozesse im Bi Volumen.

6.2 MAGNETOTRANSPORT UND HALL-EFFEKT ULTRA-DÜNNER BISMUTHFILME

In diesem Abschnitt werden magnetfeldabhängige Transportmessungen vorgestellt. Es wird eine Messreihe an Bismuthfilmen unterschiedlicher Schichtdicken dargestellt, bei der die unterschiedlichen Dicken wieder durch sukzessives Aufdampfen und Ausheilen hergestellt wurden (20-, 40- und 60 BL). Die Filmqualitäten der in diesem Zusammenhang gezeigten Messungen genügen der Bedingung $l_e > d$, sodass damit ein Vergleich zum vorherigen Abschnitt möglich ist.

Der magnetfeldabhängige Leitwert (Abk. MLW) dünner Bismuthfilmen besteht bei tiefen Temperaturen immer aus einer Überlagerung eines diffusen und eines kohärenten Beitrages. Dies ist in der Abbildung 6.6 (a) skizziert.

Der diffuse Anteil, im Folgenden als klassischer Beitrag bezeichnet, folgt dem Verlauf einer Parabel und ist in blau unterlegt. Bei tiefen Temperaturen findet außerdem eine kohärente Überlagerung von Ladungsträgerwellenfunktionen statt. Aufgrund der starken Spin-Bahn-Wechselwirkung in Bismuth manifestieren sich diese Streuevents als schwache Antilokalisierung (WAL). Der WAL-Beitrag ist deutlich als Abweichung vom parabolischen Verlauf der restlichen Messkurve zu erkennen (rot unter-

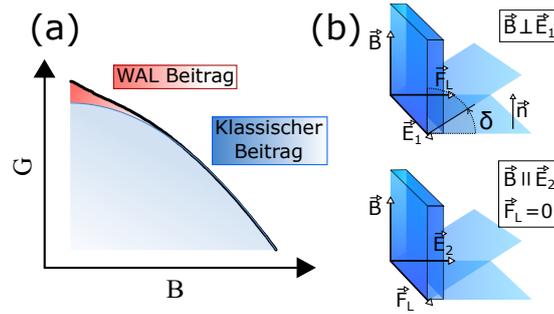


Abbildung 6.6: (a) Klassischer Beitrag und WAL-Beitrag in einer Magneto-Transport-Messung. Der WAL-Beitrag bleibt nach Subtraktion der klassischen Parabel als Residuum übrig und kann analysiert werden. (b) Probengeometrie bei der winkelabhängigen Messung. Aufgrund der beiden Richtungen G_1 und G_2 zeigt die Lorentz-Kraft bei parallelem Feld im ersten Fall in das Probenvolumen, im anderen Fall verschwindet sie.

legt). Beide Anteile werden voneinander separiert, indem zunächst der klassische Anteil durch einen Fit mit dem Modell (2.32) angepasst wird. Dabei wird immer versucht, die Parabel so gut wie möglich für große Magnetfelder (2-4 T), bei denen der klassische Beitrag dominiert, anzupassen. Durch die Subtraktion dieses Anteils bleibt die vom WAL-Kanal verursachte Änderung als Funktion des Magnetfeldes übrig (im Folgenden als Hikami Residuum bezeichnet) und kann separat analysiert werden. Die Anpassung der Hikami Residuen erfolgt für kleine Magnetfelder ($B < 2$ T), um der Bedingung $l_H = \sqrt{\hbar/eB} = 25 \text{ nm}/\sqrt{B[\text{T}]} > d$ zu genügen. Dabei ist d die Schichtdicke und l_H die Distanz, nach der die Phasenkohärenz zerstört wird (magnetische Länge). Dadurch wird gewährleistet, dass die untersuchte Schicht als zweidimensional in Bezug auf Lokalisierung angesehen und damit die Theorie angewendet werden kann.

Zunächst wird die Analyse des klassischen Beitrags des Magnetotransports sowie der zugehörigen Hall-Effekt Daten vorgestellt. Alle Messungen wurden bei fester Probentemperatur von 11 K durchgeführt. Daher sind die Messungen sensitiv auf den Oberflächenkanal. Da bei dünnen Bismuthfilmen sowohl Elektronen als auch Löcher am Transport teilnehmen, die aus den beiden Bändern des Oberflächenzustandes stammen, sind die Daten mittels Formel (2.32) und (2.33) analysiert worden.

Ein intrinsisches Problem bei dieser Art der Auswertung stellt die Unterbestimmung des Datensatzes dar. Es gibt vier freie Parameter pro Messkurve. Eine verlässliche Analyse ist daher nur möglich, wenn MLW- und Hall-Daten parallel ausgewertet werden, da sich die erhaltenen Ladungsträgerbeweglichkeiten und -konzentrationen lediglich um einen konstanten Faktor unterscheiden dürfen (vgl. A.3). Um weitere Sicherheit zu gewinnen, fließt daher eine zusätzliche Nebenbedingung in die Anpassung ein. Der Wert von G_0 aus der MLW-Messung und der Wert $G_{0,\text{Hall}} = \pi/\ln(2) \cdot e(n\mu_n + p\mu_p)$ aus der Hall-Messung müssen mit einer maximalen Abweichung von 10% übereinstimmen und stehen in jeder Messreihe in einem festen Ver-

hältnis zueinander. Das liegt daran, dass die Hall-Beweglichkeiten nicht zwangsläufig identisch mit denen, über den MLW bestimmten sind und es gilt: $\mu_{\text{HALL}} = r_{\text{H}} \cdot \mu$.

Im nächsten Schritt kann das Hikami-Residuum analysiert werden. Hierzu wird in diesem Kapitel die Gleichung (2.39) verwendet, da ein System mit starker Spin-Bahn-Kopplung vorliegt.

Zuletzt werden $G(B)$ -Messungen vorgestellt, bei denen der Winkel zwischen Probenoberfläche und Magnetfeld zwischen 0° (normaler Magnetotransport) und 90° (paralleler Magnetotransport) variiert wurden. Eine schematische Darstellung der Geometrie ist in der Abbildung 6.6 (b) gezeigt. Dabei bezeichnet \vec{B} den Magnetfeld Vektor, \vec{n} den Vektor normal zur Probenoberfläche, δ den Winkel zwischen \vec{B} und \vec{n} , \vec{E}_1 und \vec{E}_2 die Vektoren des elektrischen Feldes für die entsprechende Richtung der Messung und \vec{F}_L die Richtung der Lorentz-Kraft. Im Fall $\delta = 0^\circ$ sind $\vec{B} \perp \vec{E}_1, \vec{E}_2$ und \vec{F}_L lenkt die Ladungsträger senkrecht zu \vec{n} ab. Für $\delta = 90^\circ$ muss für beide Messrichtungen unterschieden werden:

1. B-Feld Vektor und E-Feld Vektor stehen senkrecht aufeinander. Die resultierende Lorentz-Kraft ist in den Bismuthfilm hinein gerichtet. Ist der Oberflächenzustand zweidimensional und gibt es keine Wechselwirkung mit den Valenzbändern, ist in diesem Fall kein MLW zu erwarten. Im Folgenden wird dieser Fall mit G_\perp bezeichnet.
2. B-Feld Vektor und E-Feld Vektor sind parallel zueinander. Die resultierende Lorentz-Kraft $\vec{F}_L = q(\vec{v} \times \vec{B})$ verschwindet. Die Amplitude des MLW ist proportional zu $\cos(\delta)$. Im Folgenden wird dieser Fall mit G_\parallel bezeichnet.

6.2.1 Diffuse Streuung im Magnetfeld

In der Abbildung 6.7 (a) ist die Änderung des Leitwertes $G-G_0$ eines 20-, 40- und 60 BL dicken Bismuthfilms als Funktion des Magnetfeldes dargestellt. G_0 bezeichnet den Leitwert bei 11 K und 0 T. Der Leitwert nimmt mit zunehmendem Magnetfeld ab, wobei die Amplitude umso größer ist, je dicker der Film ist. Qualitativ betrachtet bedeutet dies, dass die Ladungsträgerbeweglichkeiten μ_n und μ_p mit steigender Schichtdicke zunehmen. Da die Substrattemperatur bei allen Messungen 11 K beträgt, sind die hier dargestellten Messungen sensitiv auf Eigenschaften des teilgefüllten Oberflächenzustandes.

Der Leser erinnert sich an den in Abbildung 6.2 (f) dargestellten Zusammenhang zwischen $G(11 \text{ K})$ und der Schichtdicke d . Der Gesamtleitwert des Oberflächenzustandes steigt mit der Schichtdicke an. Dieser Sachverhalt wird durch die $G(B)$ -Messungen bestätigt. Der Leitwert steigt auch hier stetig an, von $G_{0,20\text{BL}}(11 \text{ K}) = 3,6 \text{ mS}$ auf $G_{0,60\text{BL}}(11 \text{ K}) = 5,8 \text{ mS}$. Dies kann bereits anhand der Bandstruktur von Bismuth im vorherigen Abschnitt durch die Änderung der Oberflächenbänder verstanden werden. Eine weitere mögliche Erklärung ist die Tatsache, dass dickere Filme tendenziell

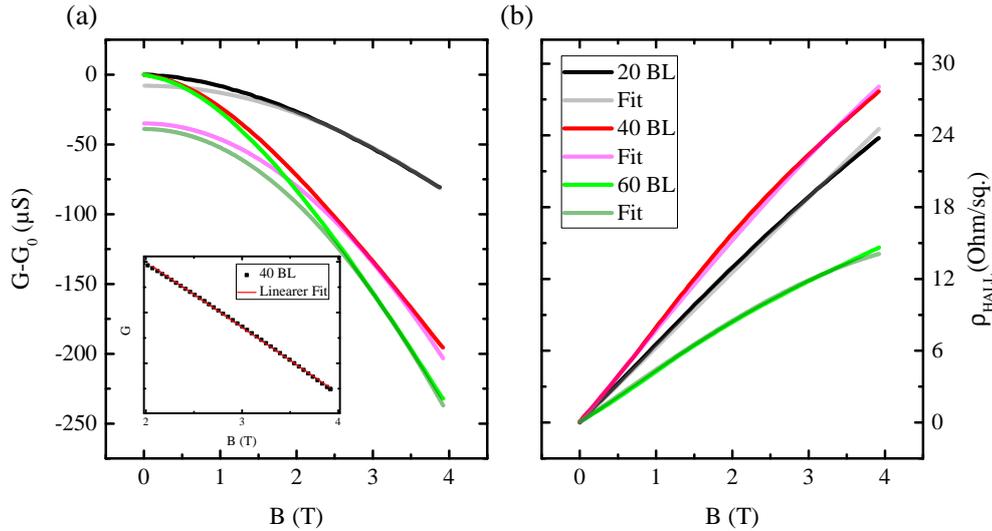


Abbildung 6.7: (a) Änderung des Leitwertes $G - G_0$ als Funktion des magnetischen Feldes B für einen 20-, 40- und 60 BL dicken Bismuthfilm bei einer Probentemperatur von 11 K. Inset: Lineares Verhalten des MLW bei hohen Magnetfeldern des 40 BL dicken Bismuthfilms. (b) Zugehörige Spezifische Hall-Widerstände $\rho_{HALL}(B)$.

weniger intrinsische Defekte aufweisen und die Rotationsfehlordnung geringer ist (vgl. Abbildung 5.2), was eine Erhöhung der Ladungsträgerbeweglichkeiten im Oberflächenzustand zur Folge hat und demnach einen zusätzlichen Beitrag im Anstieg des Leitwertes liefern kann.

Der zugehörige spezifische Hall-Widerstand $\rho_{HALL}(B)$ ist in (b) dargestellt. Die Kurven weisen eine leichte Krümmung auf, was eine Folge des Transports von sowohl Elektronen als auch von Löchern ist (vgl. A.3). Außerdem ist zu erkennen, dass die positive Amplitude des Hall-Widerstands des 20 BL Films kleiner als die des 40 BL Films, aber größer als die des 60 BL Films ist. Da die Größe von ρ_{HALL} empfindlich vom Verhältnis μ_n/μ_p abhängt, ist dieses Verhalten dahingehend verständlich, dass leichte Änderungen z. B. bei der Zeit des Ausheilens solch einen Effekt bewirken können.

In der Abbildung 6.7 (a) und (b) sind zudem die mittels Gleichung (2.32) und (2.33) erstellten Anpassungen an die $G(B)$ - und Hall-Verläufe für 20-, 40- und 60 BL Filme dargestellt. Die daraus resultierenden Ladungsträgerbeweglichkeiten und -konzentrationen sind in der Abbildung 6.8 dargestellt.

Als Randbedingung der Anpassung wurde zum einen die Bedingung $\mu_n > \mu_p$ und zum anderen $n \sim 5 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ gewählt. Dies resultiert aus ARPES-Messungen, die belegen, dass die Bandkrümmung der Elektronen und damit deren Beweglichkeiten größer als die der Löcher ist [3, 4]. Es ist zu erkennen, dass die Messdaten in befriedigender Weise durch die Modelle (2.32) und (2.33) beschrieben werden. Allerdings

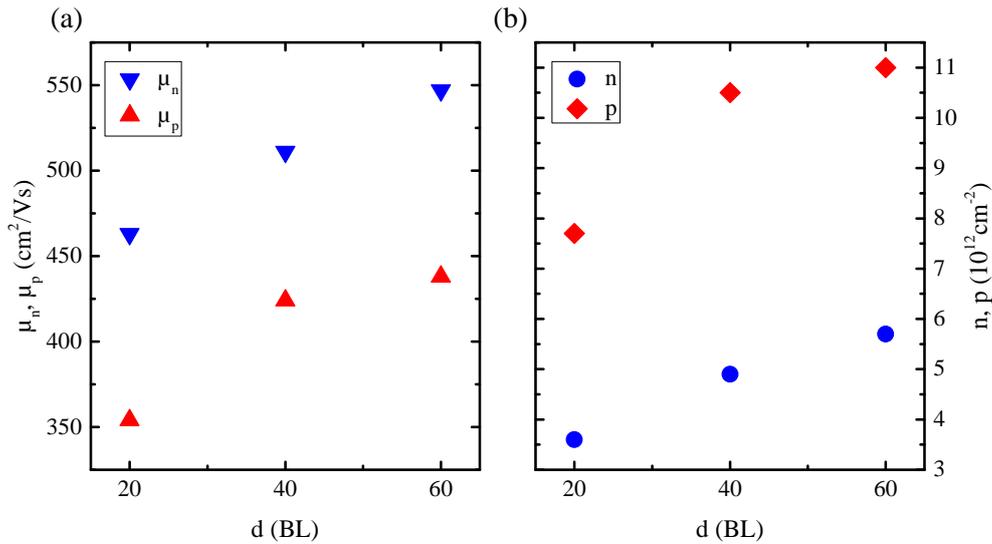


Abbildung 6.8: Fitparameter der Anpassungen der MLW- und Hall-Daten aus Abbildung 6.7: (a) Ladungsträgerbeweglichkeiten μ_n und μ_p . (b) Ladungsträgerkonzentrationen n und p .

zeigt sich sowohl für den 40 BL als auch für den 60 BL Film eine zunehmende Abweichung der Parabelform bei großen Magnetfeldern, die bei dem 20 BL Film noch nicht beobachtet wird. Wie im Inset von Abbildung 6.7 (a) zu erkennen ist, zeigt sich in diesem Bereich eine lineare Abhängigkeit des MLW, die mit dem Modell nicht beschrieben werden kann.

Sowohl Ladungsträgerbeweglichkeiten μ_n und μ_p als auch die Ladungsträgerkonzentrationen n und p nehmen mit steigender Schichtdicke zu. Bei der Ladungsträgerkonzentration des 20 BL dicken Films von $n \sim 4,4 \cdot 10^{12} \text{cm}^{-2}$ und $p \sim 7,8 \cdot 10^{12} \text{cm}^{-2}$ wird eine gute Übereinstimmung zu den ARPES-Messungen von Ast et al. gefunden [4]. Der hier beobachtete Anstieg der Beweglichkeiten von etwa 35 % wurde bereits in dem vorherigen Kapitel mit einer einhergehenden Verbesserung der Schichtqualität mit der Schichtdicke d vorhergesagt. Der Anstieg der Ladungsträgerkonzentrationen ist eine Folge der Änderung der Oberflächenbänder mit der Schichtdicke und ist konsistent mit ARPES-Messungen und DFT-Rechnungen [90, 110].

In ultra-dünnen Bismuthfilmen existiert also ein komplexes Zusammenspiel aus den Oberflächenbändern mit den QSE-aufgespaltenen Valenzbändern, sodass der Oberflächenzustand durch eine Änderung der aufgespaltenen Zustände ebenfalls beeinflusst wird. Diese Änderung wird auch in ARPES-Messungen deutlich [111] (vgl. Abbildung 6.17).

Um den Einfluss der Valenzbänder auf die Transporteigenschaften weiter zu untersuchen, wurden Magnetotransport- und Hall-Messungen der zuvor untersuchten 20-, 40- und 60 BL Filme bei einer Substrattemperatur von 100 K durchgeführt. Diese Messungen sind in der Abbildung 6.9 dargestellt.

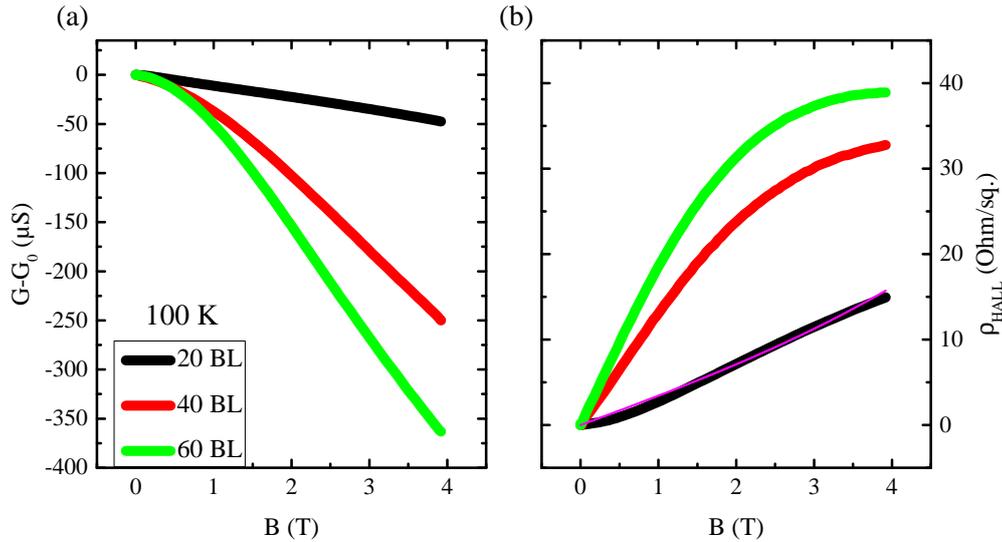


Abbildung 6.9: (a) Änderung des Leitwerts $G - G_0$ als Funktion des Magnetfelds B für einen 20-, 40- und 60 BL dicken Bismuthfilm bei einer Proben­temperatur von 100 K. (b) Spezifischer Hall Widerstand ρ_{HALL} .

Den temperaturabhängigen Messungen aus Abschnitt 6.1 zufolge, wird bei 100 K des 40- und 60 BL Films bereits aktivierter Transport festgestellt, während der 20 BL Film weiterhin rein metallische Eigenschaften aufweist. Genau dieser Zusammenhang spiegelt sich im MLW wieder. Für den 20 BL dicken Film ist die $G(B)$ -Amplitude bei 100 K aufgrund der zusätzlichen e-ph Streuung und der damit einhergehenden Abnahme der Beweglichkeiten kleiner geworden. Für den 40- und 60 BL dicken Film vergrößert sich diese allerdings um bis zu 60 %, was durch die Zunahme der Ladungsträgerkonzentrationen in den leitenden Kanälen durch thermische Aktivierung hervorgerufen wird. Zusätzlich können Ladungsträger in die Leitungsbänder angeregt werden. Diese bereits bei den $G(T)$ -Messungen beobachteten Zusammenhänge haben außerdem einen Einfluss auf die kohärenten Streuprozesse bei $T=100\text{K}$, die mittels MLW-Messungen im parallelen Feld untersucht werden (vgl. Abschnitt 6.3.1).

Eine quantitative Auswertung der Daten ist in diesem Fall mit dem 2-Band Modell nicht mehr möglich, da möglicherweise mehr als zwei Bänder am Transport teilnehmen. Die Form der Kurven ist nicht mehr parabelförmig, sondern durch einen stark linearen Anteil bei großen Magnetfeldern ausgezeichnet, der sich im Falle des 60 BL Films sogar leicht nach oben krümmt.

Die quantitative Analyse der MLW- und Hall-Daten der verschiedenen dicken Bismuthfilme bei tiefen Temperaturen, in Kombination mit der qualitativen Analyse bei 100 K, konnten die in Abschnitt 6.1 gezeigten $G(T)$ -Verläufe durch Einblicke in den klassischen Transport bestätigen und erweitern und sind zudem konsistent zu anderen Studien an ultra-dünnen Bismuthfilmen mittels ARPES und Magnetotransport. Es stellt sich heraus, dass der metallische Oberflächenzustand bei tiefen Temperatu-

ren den Transport dominiert. Im nächsten Abschnitt wird der kohärente Anteil der Streuung weitere Einblicke in die zugrunde liegenden Streumechanismen liefern.

6.2.2 Kohärente Streuung im Magnetfeld

Wie Eingangs beschrieben, werden die klassischen Anteile von den Messkurven⁷ subtrahiert, um den kohärenten Anteil der Streuung zu analysieren. In der Abbildung 6.10 (a) sind die Hikami Residuen sowie Fits durch Anpassung des Modells für kohärenten Transport im Grenzfall starker Spin-Bahn-Kopplung als Funktion des Magnetfeldes für verschiedene Schichtdicken (vgl. Gleichung (2.39)) dargestellt.

Es ist zu erkennen, dass alle Kurven einen negativen MLW (NMLW) aufweisen, was auf die schwache Antilokalisierung als Transportmechanismus hinweist. Weiterhin ist ein Unterschied der Amplituden zwischen dem 20 BL dicken Film und dem 40-, bzw. 60 BL dicken Film zu beobachten. Für den 20 BL Film ist der MLW deutlich kleiner als bei den größeren Schichtdicken, wobei 40- und 60 BL sich kaum in der Größe des Effekts unterscheiden. Dies deutet darauf hin, dass sich die Transportmechanismen zwischen dem dünnsten Film und dem 40 BL Film unterscheiden. Weiterhin sind in der Abbildung 6.10 (b) und (c) die Fitparameter α , bzw. l_ϕ gegen die Schichtdicke aufgetragen. Der Parameter α beträgt für den 20 BL Film ca $-0,31$, für die beiden anderen Schichtdicken ~ -1 .

Die zuvor angedeutete Änderung des Mechanismus zwischen dem dünnsten Film und den dickeren Filmen bestätigt sich durch eine Änderung von α . Für 40-, und 60 BL Film ist davon auszugehen, dass zwei entkoppelte Kanäle mit schwacher Antilokalisierung für den kohärenten Anteil des Transports verantwortlich sind. Diese werden durch den Oberflächen- und Grenzflächenzustand dargestellt, da Spin-Orbit-Streuung für das Beobachten von WAL erforderlich ist. Das von -1 abweichende Verhalten des 20 BL Films bedeutet, dass beide Kanäle bei dieser Schichtdicke miteinander gekoppelt sind.

Die Kohärenzlänge l_ϕ ist ein Maß für die Reichweite kohärenter Streuprozesse. Bei der Analyse wird keine Abhängigkeit von der Schichtdicke gefunden und l_ϕ beträgt für alle Schichtdicken etwa 24 nm. Aitani et al. konnten mit einer Studie an dünnen Bismuthfilmen mit Schichtdicken zwischen 6- und 20 BL die inelastische e^- -ph-Streuung als Streumechanismus über die Temperaturabhängigkeit der Phasenkohärenzlänge identifizieren, beobachten jedoch einen Anstieg der Kohärenzlänge mit der Schichtdicke, die als Beitrag der Valenzbänder interpretieren werden [6]. Daher postulieren sie einen kohärent gekoppelten Kanal zwischen Oberflächen- und Valenzbändern. In der Literatur finden sich weitere Beispiele, die eine Oberflächenresonanz bei dünnen Bismuthfilmen in Photoemissionsdaten beobachten [85, 86, 88, 112], wodurch eine kohärente Kopplung des Oberflächenzustandes mit dem Valenzband mit $n=1$ durchaus denkbar ist. Ein Mechanismus, der für die Zunahme von l_ϕ mit d

⁷ Der Datensatz aus Abbildung 6.7 (a).

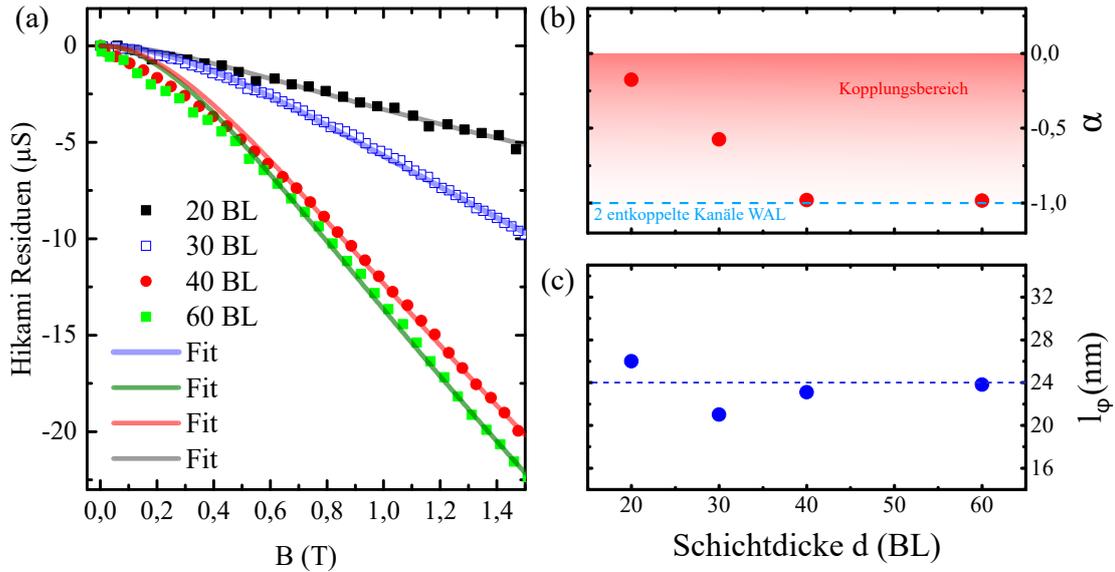


Abbildung 6.10: (a) Nach Abzug des klassischen Anteils des MLW (aus Abbildung 6.7) verbleibender Anteil der kohärenten Streuung (Hikami Residuum) für die 20-, 30-, 40- und 60 BL dicken Bismuthfilme und entsprechende Fits des Modells aus Gleichung (2.39) ($T = 11$ K). Die resultierenden Fitparameter sind in (b) α und (c) l_ϕ dargestellt. α beträgt für 40- und 60 BL Film etwa -1 (zwei entkoppelte Kanäle WAL) nimmt für kleinere Schichtdicken ab (Kopplung der Kanäle). Die Kohärenzlänge l_ϕ ist nahezu unbeeinflusst von der Schichtdicke.

sorgt, wird jedoch nicht beschrieben. Falls ein Zustand an der Si/Bi-Grenzfläche existiert, spricht aus physikalischer Sicht nichts gegen eine kohärente Streuung zwischen beiden Zuständen.

Der Wert von $\alpha \sim -0,3$ wird von Aitani et al. ebenfalls für einen 20 BL dicken Film gefunden, während sie für kleinere Schichtdicken $\alpha \sim -0,5$, also einen einzelnen Kanal WAL beobachten. Dieses gegensätzliche Verhalten kann im Sinne einer Kopplung des Oberflächen- und Grenzflächenzustandes nicht verstanden werden, da mit dünner werdender Schicht eine stärkere Kopplung und damit eine Annäherung von α an 0 erwartet wird.

Eine mit den vorliegenden Messdaten vergleichbare Studie wurde von Zhu et al. durchgeführt [113]. Ihre Auswertung des kohärenten Transports über einen Schichtdickenbereich von 10- 50 BL ergibt einen etwa konstanten Wert von $\alpha \sim -0,5$. Weiterhin werden mit der Schichtdicke ansteigende Phasenkohärenzlängen beobachtet.

In beiden Studien [6, 113] wird ein mit der Schichtdicke ansteigendes l_ϕ und $\alpha \sim -0,5$ präsentiert. Diese Befunde können nicht mit den Ergebnissen der vorliegenden MLW-Daten in Einklang gebracht werden. Zur Veranschaulichung wurden die Messkurven des 20- und 40 BL dicken Bismuthfilms aus Abbildung 6.10 (a) für verschiedene Parameter α und l_ϕ angepasst. Dies ist in der Abbildung 6.11 dargestellt. Die blaue und rote durchgezogene Linie repräsentiert den Fit mit freien, unbe-

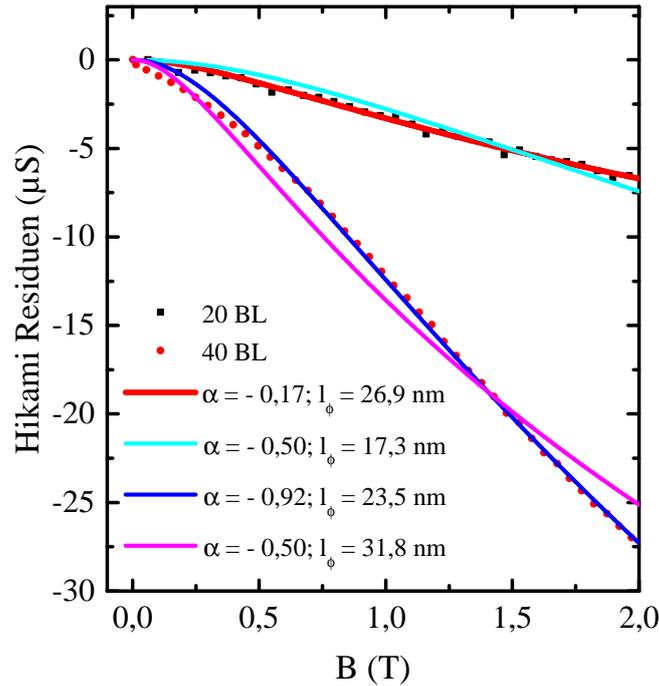


Abbildung 6.11: Hikami Residuen des 20- und 40 BL dicken Films für unterschiedliche Fitparameter α und l_ϕ . Der konvergente Fit des 40 BL Films wird durch $\alpha = -0,92$ erzeugt, wohingegen $\alpha = -0,5$ starke Abweichungen erzeugt.

grenzten Parametern. Mit den zuvor vorgestellten Parametern wird ein konvergenter Fit erzeugt, der sich in einer guten Übereinstimmung zwischen Messkurve und Modell widerspiegelt. Wird α auf einen Wert von $-0,5$ festgelegt (blaue und cyanfarbene Linie), ändert sich die Phasenkohärenzlänge derart, dass eine mit der Schichtdicke ansteigende Tendenz festzustellen ist. Die Messdaten werden in diesem Fall allerdings nur schlecht durch das Modell beschrieben.

Die Ursache der Diskrepanz zwischen dieser Auswertung und der von Aitani und Zhu liegt möglicherweise an der Qualität der Si/Bi Grenzfläche. Die hier vorgestellten Messungen wurden mit jeweils neuen Substraten durchgeführt, sodass eine bestmögliche Filmqualität erzeugt wird. Im Kapitel 5 wurde gezeigt, dass die kristalline Qualität der Filme mit dem Alter des Substrats zusammenhängt. Wird dieses zunehmend rauer, ist die Ausbildung des Grenzflächenzustands unwahrscheinlich, sodass lediglich der Oberflächenzustand als leitender Kanal zur Verfügung steht. Ein starkes Indiz für diese Hypothese findet sich in der Abbildung 6.5. Hierbei zeigt der Film mit guter Qualität verglichen mit dem qualitativ schlechten Film einen doppelt so großen Leitwert, sodass dieser Unterschied durch das Fehlen des Grenzflächenzustandes hervorgerufen werden könnte. Weitere MLW-Messungen könnten diesen Zusammenhang leicht nachweisen.

Zusammenfassend ist zu erwähnen, dass die Ergebnisse der Messdaten des kohärenten Transports die Grenze zwischen gekoppelten und entkoppelten Grenzflächen beschreibt, die zwischen einer Schichtdicke von 20- und 40 BL liegt. Für die großen Schichtdicken sind die Grenzflächen entkoppelt, daher wird $\alpha \sim -1$ beobachtet und gekoppelt für 20 BL mit $\alpha \sim -0,3$. Inwiefern die Existenz einer Oberflächenresonanz kohärente Streuung zwischen Oberflächenzustand und den Valenzbändern ermöglicht, ist anhand der vorliegenden Daten jedoch schwer zu beurteilen. Alle Transportbeiträge konnten den Oberflächen- und Grenzflächenzuständen zugeordnet werden, die bei tiefen Temperaturen als einzige teilgefüllt Bänder aufweisen und somit zur Bandleitfähigkeit beitragen können.

6.3 WINKELABHÄNGIGKEIT DES MAGNETOTRANSPORTS

Wie am Anfang dieses Kapitels erwähnt, wurden winkelabhängige Magnetotransportmessungen dünner Bismuthfilme durchgeführt. Aufgrund der Geometrie des verwendeten Versuchsaufbaus sind dabei zwei verschiedene Fälle zu unterscheiden. Diese sind in der Abbildung 6.6 (b) schematisch dargestellt: Im longitudinalen Fall sind Magnetfeld und Stromrichtung parallel ausgerichtet ($\vec{B} \parallel \vec{I}$) und der entsprechende Leitwert wird im Folgenden mit G_{\parallel} bezeichnet. Im transversalen Fall hingegen gilt $\vec{B} \perp \vec{I}$. Dieser wird mit G_{\perp} bezeichnet.

In der Abbildung 6.12 ist die Änderung des Leitwerts von G_{\parallel} (a) und G_{\perp} (b) eines 30 BL dicken Bismuthfilms als Funktion des Magnetfeldes für verschiedene Winkel ($\delta = 0^{\circ}, 30^{\circ}, 45^{\circ}, 60^{\circ}$ und 90°) zwischen Magnetfeld und Probenoberfläche bei einer Proben temperatur von 11 K dargestellt. Beträgt der Winkel 0° , zeigt sich der parabelförmige NMLW mit einem zusätzlichem WAL-Beitrag bei kleinem Magnetfeld. Wird der Winkel erhöht, nimmt die Amplitude der Parabel sukzessive ab. Das hängt damit zusammen, dass die senkrechte Komponente des Magnetfeldes, die eine Lorentzkraft in der Ebene der Probenoberfläche bewirkt, gemäß $\cos(\delta) \cdot B$ abnimmt. Die Verringerung der Parabelamplitude ist gleichbedeutend mit einer Abnahme des klassischen MLW's mit zunehmendem Winkel. Bei der Erhöhung des Winkels wird außerdem ein drastischer Unterschied zwischen G_{\perp} und G_{\parallel} deutlich. Während G_{\parallel} über den gesamten Winkelbereich parabelförmigen MLW erkennen lässt, zeigt G_{\perp} bei einem Winkel von 60° einen nach oben gekrümmten Verlauf und eine deutlich kleiner Amplitude im Vergleich zu G_{\parallel} . Für $\delta = 90^{\circ}$ wird dieser Unterschied maximal. Es existiert ein verbleibender NMLW in (a) und ein PMLW (positiver Magnetoleitwert) in (b). Beide magnetfeldabhängigen Beiträge sind aufgrund der fehlenden klassischen Komponente rein kohärenter Natur.

Um sicherzustellen, dass dieser Effekt nicht einer Fehlausrichtung des Probenhalters geschuldet ist, wurde der Winkel bei eingeschaltetem Magnetfeld variiert und das Maximum/Minimum des Leitwerts gesucht. Auf diese Weise wird eine exakte

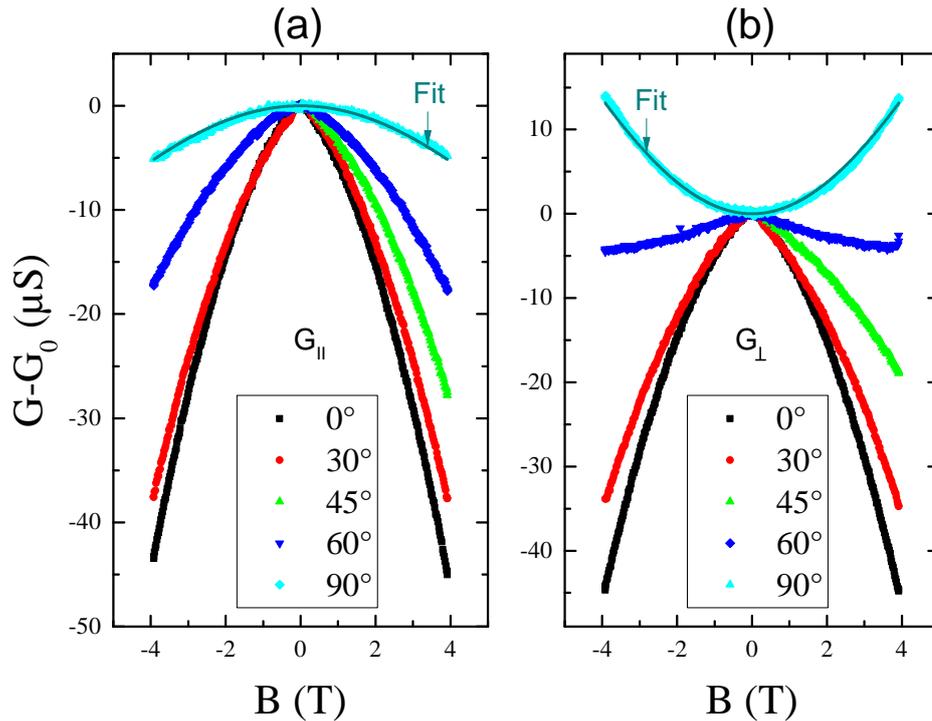


Abbildung 6.12: Änderung des Leitwerts eines 30BL dicken Bismuthfilms als Funktion des magnetischen Feldes. Der Winkel zwischen Probenoberfläche und Magnetfeldrichtung wurde zwischen 0° und 90° variiert. (a) $\Delta G_{||}$ und (b) ΔG_{\perp} . Für paralleles Magnetfeld ($\delta = 90^\circ$) werden in beiden Orientierungen WAL bzw. WL beobachtet. Dies impliziert grundlegend unterschiedliche Streumechanismen beider Fälle. In dunkel-Cyan sind exemplarische Anpassung von Gleichung (2.40) an die Messdaten dargestellt.

Ausrichtung der Probenoberfläche im Magnetfeld, mit einer Genauigkeit von $0,1^\circ$ erreicht und somit der Beitrag des klassischen MLW minimiert.

Um die Abhängigkeit des klassischen Kanals herauszuarbeiten, werden zunächst die Änderungen des Leitwerts bei verschiedenem Winkel gegen $\cos(\delta) \cdot B$, also die senkrechte Komponente des Magnetischen Feldes, für $G_{||}$ aufgetragen. Das Ergebnis ist in der Abbildung 6.13 dargestellt. Die Messkurven der verschiedenen Winkel liegen übereinander und bestätigen damit die Annahme, dass nur die senkrechte Komponente des magnetischen Feldes eine Änderung des klassischen Transports bewirken kann. Eine Ausnahme stellt hierbei wieder die Messung bei einem Winkel von 90° dar. Diese kann trivialerweise nicht mit den restlichen Kurven in Deckung gebracht werden, da es keinen klassischen Beitrag geben kann. Es ist daher wahrscheinlich, dass bei diesem Winkel die schwache Antilokalisierung den Transport dominiert. Mit dem gleichen Argument handelt es sich im transversalen MLW sehr wahrscheinlich um schwache Lokalisierung. Auf eine Auftragung dieser Daten gegen $B \cos(\delta)$, wird aufgrund der WL induzierten Korrekturen, die bereits bei einem Winkel von 60° deutlich zum Tragen kommen, verzichtet.

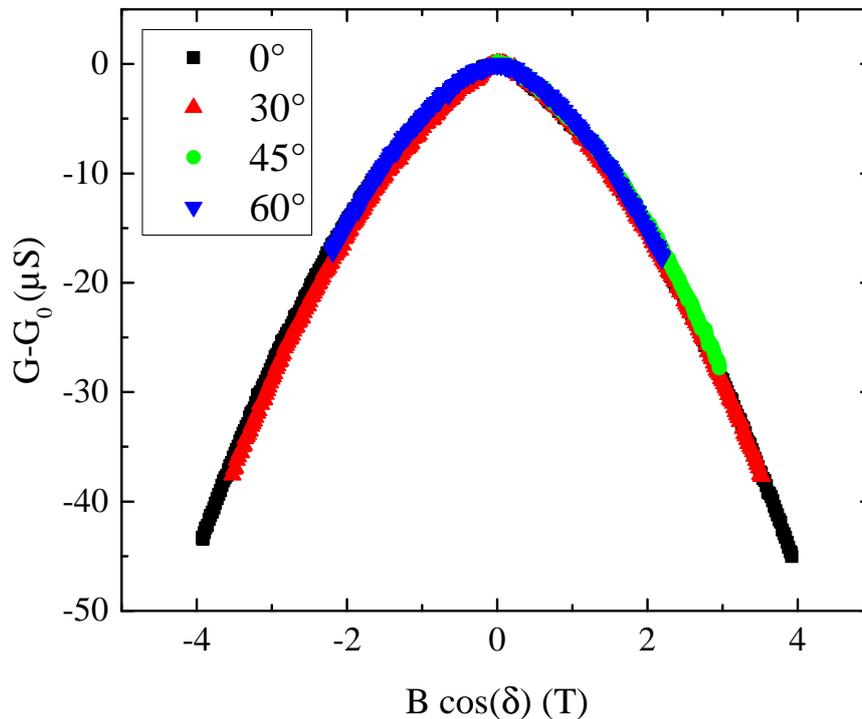


Abbildung 6.13: Änderung des Leitwerts als Funktion von der senkrechten Komponente des magnetischen Feldes $B \cos(\delta)$ für die in Abbildung 6.12 (a) dargestellten Messdaten. Die Kurven liegen übereinander und bestätigen damit den Zusammenhang der Lorentzkraft mit der senkrechten Magnetfeldkomponente.

Fraglich bleibt jedoch wieso die Messungen bei Winkeln von $0^\circ < \delta < 90^\circ$ keine Abweichungen des WAL Beitrages erkennen lassen. Da die senkrechte und parallele Komponente des magnetischen Feldes die Phasenkohärenz in unterschiedlicher Weise stören, ergibt sich ein anderer Zusammenhang von $\Delta G(B)$. Somit stellen alle Winkel zwischen 0° und 90° eine Überlagerung aus beiden Komponenten dar. Aufgrund des klassischen Untergrundes ist die Trennung der einzelnen Komponenten nicht trivial und im weiteren wird nur der longitudinale- und transversale MLW bei einem Winkel von 90° quantitativ analysiert.

6.3.1 Magnetotransport im parallelen Feld

Um weitere Einblicke in die zugrunde liegenden Streumechanismen zu erhalten, wurden zusätzlich MLW-Messungen in einem parallelen Magnetfeld für verschieden dicke Bismuthfilme (20-, 40 und 60 BL) durchgeführt⁸. In der Abbildung 6.15 ist die

⁸ Alle hier vorgestellten Messungen gehören zur gleichen Messreihe der in Kapitel 6.2.2 gezeigten Ergebnisse.

Änderung des Leitwerts als Funktion des magnetischen Feldes für verschieden dicke Bismuthfilme (20, 30, 40 und 60 BL) dargestellt. Die Messung des 30 BL Films ist die zuvor gezeigte. Sie stammt aus einer anderen Messreihe und ist zum Vergleich mit eingefügt. Es sind beide Orientierungen (G_{\parallel} - offene Symbole und G_{\perp} - geschlossene Symbole) dargestellt. Für 30-, 40- und 60BL wird für G_{\parallel} WAL und für G_{\perp} WL beobachtet, wobei die Amplitude mit der Schichtdicke zunimmt. Für den 20 BL dicken Bismuthfilm wird in beiden Orientierungen WAL beobachtet, wobei der Effekt für G_{\perp} verschwindend klein ist. Diese Messungen belegen, dass es unter Umständen mehr als einen Transportkanal in dünnen Bismuthfilmen gibt.

Es drängt sich die zentrale Frage auf, wieso die beiden Extrema, WL/WAL, abhängig von der Magnetfeldrichtung auftreten. Um die Anisotropie zu erklären, müsste demnach B_{\perp} die Phasenbeziehung der Spinwellenfunktion bei Streuprozessen zwischen Oberflächen- und Grenzflächenzustand derart ändern, dass diese konstruktiv interferieren, also auf ihrem zeitinversiven Weg eine Berry-Phase akkumulieren, die sich von 2π unterscheidet. Im Gegensatz dazu muss B_{\parallel} einen Phasensprung von 2π nach Umlauf des zeitinversiven Weges induzieren.

Um dieses Dilemma zu klären, erinnern wir uns zunächst an die Ausführung in Kapitel 2.2.4.1. Eine Änderung der Phasenbeziehung bei einem Rückstreuprozess ist generell nur möglich, falls die magnetischen Feldlinien, die den Streupfad einschließende Fläche durchstoßen. Daher ist die Messung G_{\perp} sensitiv auf Streupfade zwischen den Grenzflächen, die senkrecht zur Stromrichtung verlaufen, während G_{\parallel} sensitiv auf Streupfade zwischen den Grenzflächen senkrecht und mit einem Winkel zur Stromrichtung ist. Während für die senkrechten MLW-Messungen (B -Feld senkrecht zur Probenoberfläche) die Eigenschaften kohärenter Streupfade in der Ebene detektiert werden, sind die parallelen Messungen $G_{\perp}(B)$ und $G_{\parallel}(B)$ nur auf die kohärenten Streupfade aus der Ebene hinaus empfindlich. Dieser Sachverhalt ist in der Abbildung 6.14 schematisch dargestellt.

Somit kann ein WAL oder WL Effekt überhaupt nur dann beobachtet werden, wenn Streuprozesse mit der inneren Grenzfläche stattfinden. Ähnlich wie in topologischen Isolatoren, postulieren Takayama et al. in Bismuth einen Grenzflächenzustand, der aufgrund von gebrochenen Inversionssymmetrie ebenfalls Rashba aufgespaltene Zustände besitzt [13]. In ihrem SARPES-Experiment begründen sie die Abnahme der Spinpolarisation des Oberflächenzustandes ab einer Schichtdicke von 20 BL mit der Hybridisierung zwischen Oberflächen- und Grenzflächenzustand. Aus Symmetriegründen ist die Spinpolarisation im Grenzflächenzustand der des Oberflächenzustands entgegengesetzt, sodass die Nettospinpolarisation bei der Annäherung beider Zustände abnimmt [13, 89, 114, 115].

Im Fall G_{\parallel} kann eine Lokalisierung nur beobachtet werden, wenn zum einen Grenzflächenstreuung und zum anderen eine Streuung aus der Stromrichtung heraus stattfindet, d.h. Streuprozesse *in*, als auch *aus* der Ebene. Wegen der \mathcal{T} -Symmetrie gibt es in der Ebene keine direkte Rückstreuung von $-\mathbf{k}$ nach $+\mathbf{k}$. Ein zeitinversiver Pfad

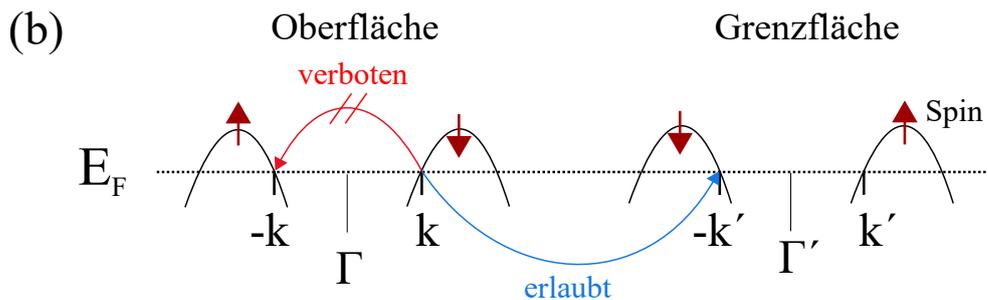
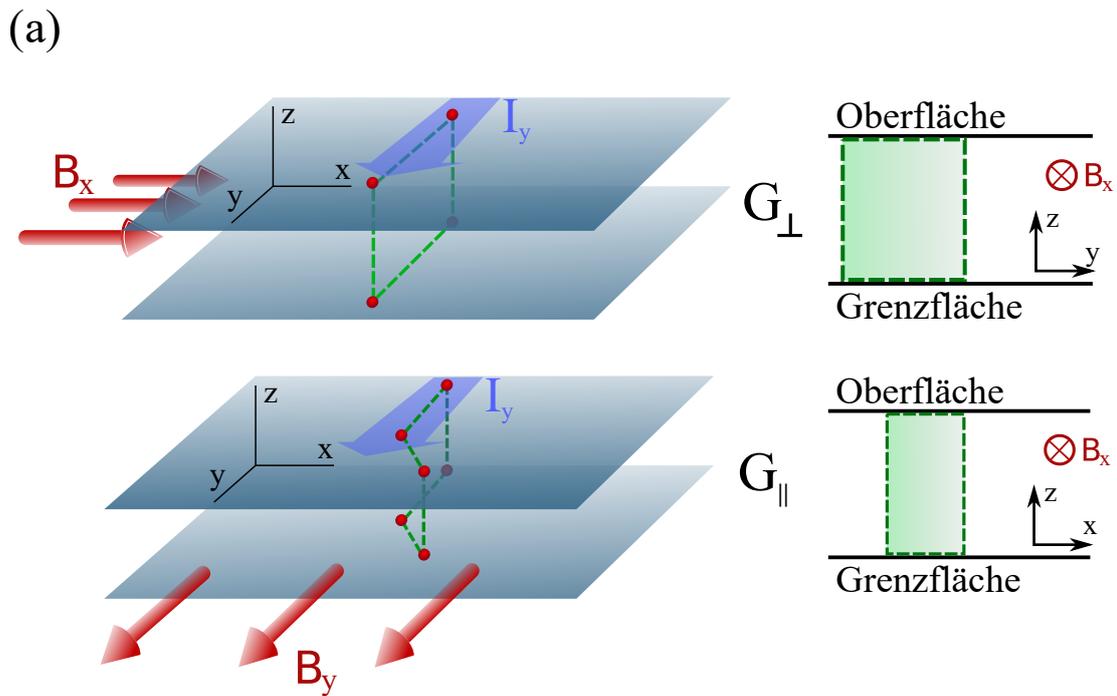


Abbildung 6.14: (a) Schematische Darstellung der Streupfade und der die Streupfade einschließenden Flächen im transversalen (oben) und longitudinalen (unten) Fall. (b) Die direkte Rückstreuung zwischen Zuständen der Oberfläche und Grenzfläche. Die Spinpolarisation beider Zustände ist genau entgegengesetzt. Aus Gründen der Übersicht ist der Prozess exemplarisch für die Löcher-taschen in Γ -M-Richtung dargestellt.

verläuft also über Umwege unter Beteiligung eines Spinflips bei jedem Streuprozess aufgrund der Spin-Orbit-Wechselwirkung und das Ergebnis ist WAL (analog zum senkrechten MLW). Im Fall G_{\perp} ist der Umweg in der Ebene nicht mehr notwendig, um die Lokalisierung zu beobachten. Dadurch, dass die Spinpolarisation im Oberflächenzustand (z.B. $E(+\mathbf{k})=\uparrow$) der des Grenzflächenzustandes entgegengesetzt ist, findet sich hier ein Zustand mit $E(-\mathbf{k})=\uparrow$ und die direkte Rückstreuung ist ohne Änderung des Spins möglich. Das Ergebnis ist WL.

Aus der Analyse der kohärenten Streuung in Kapitel 6.2.2 ist ein solcher Prozess sowie der Beitrag des Grenzflächenzustands zum Transport durchaus denkbar. Für den Fall, dass zwei entkoppelte kohärente Kanäle zum Transport beitragen, ist der

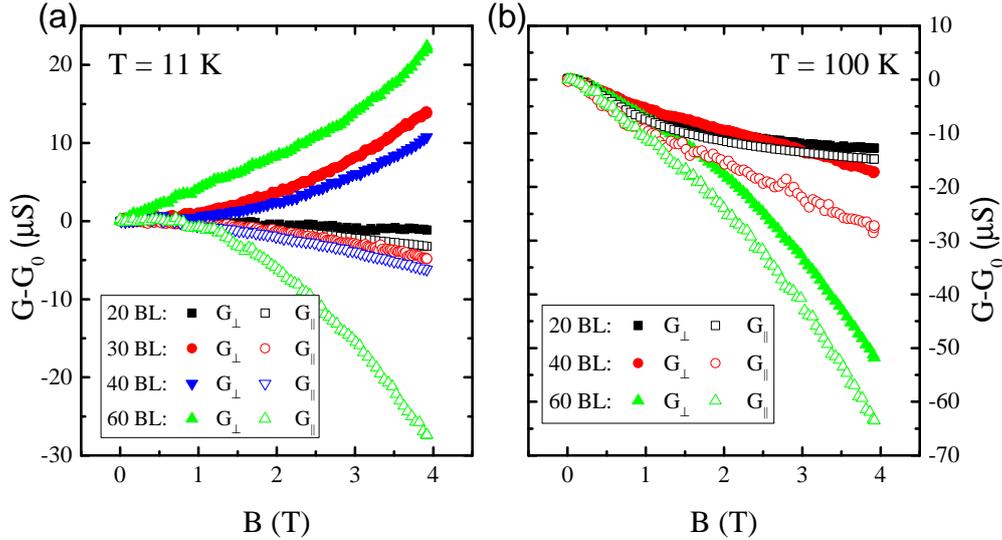


Abbildung 6.15: (a) Magnetfeldabhängige Änderung des Leitwerts im parallel orientierten Feld für verschieden dicke Bismuthfilme (20-, 30-, 40- und 60 BL) bei $T = 11$ K. Bei G_{\parallel} ist das B-Feld parallel zur Stromrichtung und für alle Schichtdicken wird WAL beobachtet. Bei G_{\perp} steht das B-Feld senkrecht auf der Stromrichtung. Hierbei wird nur für 20 BL WAL beobachtet, wohingegen alle anderen Schichtdicken durch WL gekennzeichnet sind. (b) Magnetfeldabhängige Änderung des Leitwerts im parallel orientierten Feld für verschieden dicke Bismuthfilme (20-, 40- und 60 BL) bei $T = 100$ K. Für beide Richtungen wird NMLW beobachtet.

Parameter $\alpha = -1$. Nehmen zwei gekoppelte Kanäle am Transport teil, oder gibt es nur einen einzigen Kanal so gilt $-1 \geq \alpha \geq 0$. Der erhaltene Wert von etwa -1 deutet also auf die Existenz eines zweiten Kanals hin. α zeigt dabei eine starke Abhängigkeit von der Schichtdicke, die bei der Entkopplung beider Kanäle ab einer Schichtdicke von 40 BL Film eine Änderung aufweist. Analog wird eine solche Hybridisierung bei ultra-dünnen topologischen Isolatoren für das Öffnen einer Bandlücke des Oberflächenzustandes verantwortlich gemacht [116].

Durch eine Änderung der Substrattemperatur können die kohärenten Streuprozesse des Systems modifiziert werden. Dazu sind in der Abbildung 6.15 (b) die Änderungen des Leitwerts als Funktion des magnetischen Feldes für verschieden dicke Bismuthfilme (20-, 40- und 60 BL) bei $T = 100$ K dargestellt.

Die Anisotropie ist weitgehend verschwunden und alle Messungen zeigen einen NMLW, wobei sich die Amplituden des 20-, 40- und 60 BL Films um einen Faktor 4,5, 4,7, bzw. 2,4 vergrößert hat. Da in beiden Richtungen unterschiedlich große Amplituden beobachtet werden, handelt es sich um eine Überlagerung aus WAL und WL Prozessen. Aus den Analysen des Abschnitts 6.1 ist klar, dass bei diesen Temperaturen ein nicht zu vernachlässigender Transport durch die Aktivierung aus dem aufgespaltenen Valenzband stattfindet, der für die dickeren Filme am stärksten ist.

Daher ist zum einen die Ladungsträgerkonzentration im Oberflächenzustand erhöht, aber auch die Streurrate der Ladungsträger. Zudem kann es zu einer Umverteilung der Ladungsträger in den Oberflächenbändern und einer Besetzung von zusätzlichen Leitungsbändern kommen. Die Beobachtung der Lokalisierung bei 11 K ist außerdem nur möglich, falls der Grenzflächenzustand mit den zuvor beschriebenen Eigenschaften existiert. Die Spinpolarisation der Zustände wird vom Rashba-Effekt festgelegt, also dem Gradienten des elektrischen Potentials an der Ober- bzw. Grenzfläche, der sich sicherlich nicht mit der Temperatur ändert. Als Ursache der unterdrückten WL bleibt also die Modifikation der Oberflächenbänder, die erhöhte Ladungsträgerkonzentration und Streurrate sowie der mögliche Beitrag eines weiteren Leitungsbandes.

Da die Beschreibung von WAL und WL eine statistische Mittelung aller vorhandenen zeitinversiven Streupfade darstellt, kann eine Erhöhung der Streurrate und Ladungsträgerkonzentration zu einer Unterdrückung der WL führen. Der direkte Rückstreuprozess zwischen den Grenzflächen ist demnach immer noch vorhanden, jedoch dominieren die WAL verursachenden Pfade das Messsignal, sodass bei 100 K eine endliche Anisotropie verbleibt. Da die WAL Streuprozesse im Mittel zunehmen, ergibt sich die größeren Amplituden des MLW.

Für ein tieferes Verständnis der vorliegenden Messdaten bei $T = 11$ K, wurden diese Mithilfe des Modells für kohärenten Transport in parallelen Magnetfeldern (Formel (2.40)) angepasst. Eine Überprüfung des Modells, sowie Fits für verschiedene Werte von α und β sind im Anhang A.4 dargestellt. Hierbei zeigt sich, dass das Modell für verschiedene Parameterkombinationen gute Anpassungen erzeugt. Daher werden Rahmenbedingungen für die Anpassung vorgegeben.

Zum einen werden die im vorherigen Kapitel bestimmten Phasenkohärenzlängen als Startwert der Anpassung verwendet und in engen Grenzen (± 3 nm) um die zuvor gefunden Werte variiert.

Weiterhin wird eine Abschätzung für β durchgeführt. Dazu werden zunächst die mittleren freien Weglängen l_e aus den unabhängig bestimmten Beweglichkeiten (vgl. Abschnitt 6.2.1) gemäß

$$l_e = \mu v_F \frac{m^*}{e} \quad (6.2)$$

abgeschätzt. Dabei ist v_F die Fermi-Geschwindigkeit und m^* die effektive Masse⁹. Hierbei ist zu beachten, dass zwei Bänder mit unterschiedlichen Massen m_e^* bzw. m_h^* , Beweglichkeiten μ_n bzw. μ_p und Fermi-Geschwindigkeiten vorhanden sind. Um eine vernünftige Abschätzung zu treffen, wird die mittlere freie Weglänge für Elektronen und Löcher bestimmt und anschließend der Mittelwert gebildet.

Es ergeben sich $l_e(20 \text{ BL}) = 41 \pm 20 \text{ nm}$, $l_e(40 \text{ BL}) = 47 \pm 21 \text{ nm}$ und $l_e(60 \text{ BL}) = 50 \pm 22 \text{ nm}$. Für alle Filme ist die mittlere freie Weglänge sehr viel größer als die Schichtdicke, sodass die Streumechanismen gemäß den Ausführungen im Kapitel 2.2.4.1 dem DK-Regime ($l_e \gg d$) zuzuordnen sind. Gemäß der Berechnung von

⁹ $v_F = 4,9 \cdot 10^5 \frac{\text{m}}{\text{s}}$ und $m_e^* = 0,22m_e, m_h^* = 0,5m_e$ nach [1]

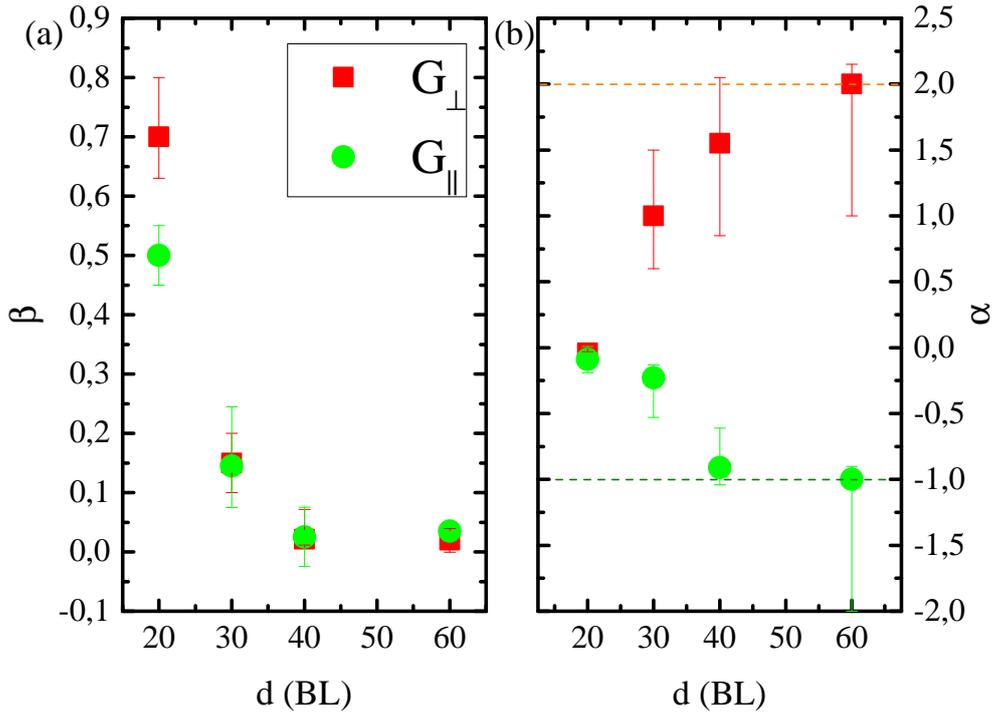


Abbildung 6.16: Fitparameter β (a) und α (b) durch die Anpassung des Modells aus Gleichung (2.40) an die longitudinalen- und transversalen MLW-Messkurven aus Abbildung 6.15 (a). β steigt mit abnehmendem d , was eine erhöhte Kopplung zwischen Oberflächen- und Grenzflächenzustand impliziert. α beträgt im longitudinalen MLW (grüne Kreise) ~ -1 (2 entkoppelte Kanäle WAL), bzw. ~ 2 (2 Kanäle WL) im transversalen MLW (rote Quadrate). Für den 20- und 30 BL Film strebt α gegen 0, entsprechend einer verstärkten Kopplung der Transportkanäle.

$\beta_{DK} = 1/16 \cdot d/l_e$ ergeben sich damit $\beta(20 \text{ BL}) = 0,012 \pm 0,003$, $\beta(40 \text{ BL}) = 0,022 \pm 0,005$ und $\beta(60 \text{ BL}) = 0,030 \pm 0,007$.

In diesem Formalismus hat der Parameter α die gleiche Bedeutung wie im Fall des senkrechten Magnetfelds. Der Parameter β kann Werte zwischen 0 und 1 annehmen und beschreibt die Kopplungsstärke zwischen Oberfläche und Grenzfläche [41]. Lin et al. gelang es zu zeigen, dass durch Durchstimmen des chemischen Potentials mit einer Gatespannung in $(\text{Bi,Sb})_2\text{Te}_3$ α Werte von -0,5, bzw. -1 annehmen kann. In Abhängigkeit von V_{Gate} ist $\alpha = -0,5$ (-1) und es liegt ein gekoppelter Kanal (zwei entkoppelte Kanäle) vor.

Die Ergebnisse sind in der Abbildung 6.16 (a) (β) und (b) (α) dargestellt. Im longitudinalen Fall verhalten sich die Werte von α ähnlich zu den im senkrechten MLW bestimmten (vgl. Kapitel 6.2) und bestätigt damit die Richtungsabhängigkeit der beteiligten Streuprozesse, die zum Teil in der Ebene stattfinden. Für den 40- und 60 BL dicken Film beträgt dieser etwa -1, während es für 20- und 30 BL dicken Films gegen

o strebt. Die Interpretation ist analog wie zuvor: Die Kopplung der Kanäle erniedrigt α .

Für den transversalen MLW wird für die dicken Filme ein Wert von $\alpha \sim 2$ gefunden. Dies entspricht zwei entkoppelten Transportkanälen mit WL. Beim 20- und 30 BL Film nimmt α aufgrund der Kopplung beider Kanäle wieder ab. Hierbei könnte die Hybridisierung beider Kanäle zu einer Aufweichung der Spinpolarisation führen [13], wodurch die direkte Rückstreuung zwischen beiden Kanälen nicht mehr möglich ist und als Ergebnis WAL beobachtet wird.

Der Parameter β beträgt für den 40-, und 60 BL dicken Bismuthfilm ($2 - 3 \cdot 10^{-2}$) und steigt dann für 30-, und 20 BL auf bis zu $7 \cdot 10^{-10}$. Nach den Ausführungen in Kapitel 2.2.4.1 bedeutet dies, dass die Kopplung zwischen Oberfläche und Grenzfläche mit abnehmender Schichtdicke zunimmt. Dennoch verbleibt eine sehr kleine, aber endliche Kopplung für Schichtdicken ab 40 BL. Die Streuereignisse zwischen den Grenzflächen werden in der Theorie über Tunnelprozesse ermöglicht. Dieser Mechanismus ist bei Schichtdicken von bis zu 24 nm (60 BL) durchaus mit den gefundenen Phasenkohärenzlängen von ca. 25 nm verträglich.

Hirahara et al. haben mittels ARPES-Messungen gezeigt, dass es am $\bar{\Gamma}$ -Punkt einen Überlapp zwischen Oberflächenzustand und einem Valenzband gibt [117], sodass hier eine Oberflächenresonanz entsteht, die tiefer in den Kristall eindringt. Diese Beobachtung wird außerdem von Koroteev et al. durch *first-principle* Rechnungen theoretisch unterstützt (vgl. Abbildung 6.17) [88]. In der Abbildung 6.17 sind entsprechende Bandstrukturmessungen und -rechnungen gezeigt.

In der Abbildung 6.17 (c) ist die Resonanz für verschiedene Schichtdicken gezeigt. Zwischen den 30- und 6 BL dicken Filmen ist dabei kein Unterschied in der energetischen Lage auszumachen. Bei einer Dicke von 180 BL ist sie knapp unter das Fermi-Level verschoben. Daher ist die Annahme, dass die Resonanz auch noch für dickere Filme existiert, gerechtfertigt und könnte den effektiven Kopplungsmechanismus zwischen den Grenzflächen erklären. Die Frage des Kopplungsmechanismus kann jedoch mit den vorliegenden Daten nicht vollständig geklärt werden.

ZUSAMMENFASSUNG

Die schichtdickenabhängigen Messungen an ultra-dünnen Bismuthfilmen als Funktion der Temperatur und des magnetischen Feldes liefern Erkenntnisse in vielerlei Hinsicht.

G(T)-Messungen zeigen den Temperaturbereich, in dem der Transport alleine von den spinpolarisierten Oberflächenbändern getragen wird. Die Breite des Bereichs hängt von der Aufspaltung der Valenzbänder durch den QSE, also von der Schichtdicke ab und wird größer, je dünner die Schicht ist. Die Aufspaltung der quantisierten

¹⁰ Für den 20 und 30 BL dicken Film können die Messkurven nicht sinnvoll für die zuvor bestimmten β -Werte angepasst werden.

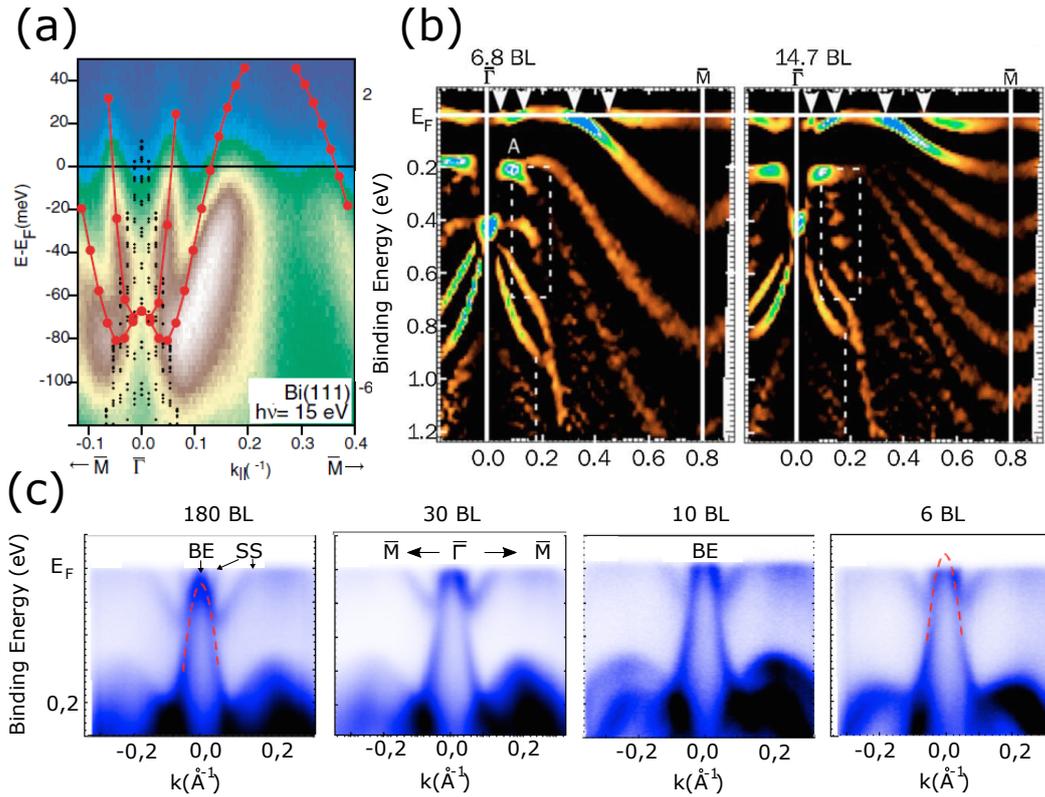


Abbildung 6.17: Die Berechnete und gemessene Bandstruktur in (a). Die kleinen schwarzen Punkte stellen die projizierte Volumenbandstruktur dar, die roten die Berechnung (Abbildung aus Referenz [88] übernommen). Die ARPES-Messungen eines 6,8 BL und 14,7 BL Films zeigen den Einfluss der Schichtdicke auf den Oberflächenzustand und Aufspaltung der Valenzbänder in (b) (Abbildung aus Referenz [111] übernommen). ARPES-Messungen für einen 180-, 30-, 10- und 6 BL dicken Bismuthfilm in (c) zeigt die Schichtdickenabhängigkeit der Oberflächenresonanz die hier als BE (Bulk-Edge) bezeichnet ist (Abbildung aus Referenz [118] übernommen).

Zustände als Funktion der Schichtdicke zeigt eine d^{-1} -Abhängigkeit und weicht damit von dem Modell eines Teilchens im Kasten ab. Der Ursprung der Abweichung liegt einerseits in der Form des Grenzflächenpotentials, wird aber auch durch die Aktivierung der Ladungsträger aus dem obersten Valenzband in den Oberflächenzustand beeinflusst, welcher offenbar eine Schichtdickenabhängigkeit aufweist. Diese Abhängigkeit manifestiert sich sowohl in einer Zunahme des Leitwerts $G(11\text{K})$, der mit zunehmender Schichtdicke um $30\ \mu\text{S}/\text{BL}$ steigt, als auch in einer Zunahme der Ladungsträgerbeweglichkeiten und -konzentrationen mit der Schichtdicke, wie magnetfeldabhängige Messungen zeigen. Somit gewähren die Transportmessungen einen direkten Rückschluss auf die Dispersion der Oberflächenbänder.

Magnetotransportmessungen in einem senkrechten und parallelen Feld geben außerdem Rückschluss auf die kohärenten Streuprozesse. Die Messungen mit dem Magnetfeld senkrecht zur Oberfläche sind sensitiv auf die Streuprozesse in der Ebene.

WAL ist in allen Fällen der beobachtete Mechanismus und reflektiert dabei die starke Spin-Bahn-Wechselwirkung der Bismuthfilme. Die Analyse der kohärent gestreuten Ladungsträger im parallelen Feld sind sensitiv auf Streuprozesse zwischen den Grenzflächen und lassen Rückschlüsse auf Existenz des Grenzflächenzustandes zu. Dieser zeichnet sich durch Rashba-aufgespaltene Zustände aus, deren Spinpolarisation aus Symmetriegründen der des Oberflächenzustandes entgegengesetzt ist. Die direkte Rückstreuung zwischen \mathbf{k} und $-\mathbf{k}$ Zuständen des Oberflächen- und Grenzflächenzustands können durch die Beobachtung von WL bei G_{\perp} identifiziert werden. Mit abnehmender Schichtdicke weicht die Hybridisierung beider Zustände die Auswahlregeln auf, sodass bei 20 BL dicken Filmen ein Übergang zu WAL beobachtet wird.

Zuletzt wird die direkte Beobachtung des QSE in temperaturabhängigen Transportmessungen mit der Schichtqualität der Bismuthfilme korreliert. Die Bedingung $l_e > d$ muss erfüllt sein, damit die Streuung an Defekten das Ergebnis nicht verfälscht. Die gewachsenen Filme zeichnen sich daher durch eine hochwertige kristalline Qualität mit Korngrößen >35 nm aus.

MAGNETISCHE FREMDATOME AUF DER BI(111)-OBERFLÄCHE

Die elektrischen Eigenschaften dünner Bismuthfilme sind aufgrund der Zeitinversionssymmetrie (\mathcal{T} -Symmetrie) $E(\mathbf{k}, \uparrow) = E(-\mathbf{k}, \downarrow)$ und dem damit verbundenen Rückstreuverbot zwischen Spin-Up und Spin-Down Zuständen hochinteressant. Aus diesem Grund können viele elastische Rückstreukanäle ohne ein Umklappen des Spins nicht genutzt werden. Dies führt zu großen Ladungsträgerbeweglichkeiten des Oberflächenzustandes [9, 119] sowie charakteristischen Streueigenschaften an Störstellen, beurteilt nach STM-Messungen [15, 106, 120–122]. Die Manipulation und Kontrolle dieser Streuprozesse ist aus Sicht eines Anwendungsbezuges von großem Interesse. Es hat sich gezeigt, dass die Adsorption von 3d-Übergangsmetallen einen lokalen Bruch der \mathcal{T} -Symmetrie bewirkt [9, 46, 123] und somit eine direkte Rückstreuung von \mathbf{k} in $-\mathbf{k}$ Zustände ermöglicht.

Die Adsorption der magnetischen Störstellen hat für das Gesamtsystem drei Konsequenzen. Zum einen kann es durch die chemische Bindung der Adsorbate zu einem Ladungstransfer zwischen Adsorbat und Oberflächenzustand kommen. Weiterhin stellen die Adatome zusätzliche Störstellen auf der Oberfläche dar. Dies führt zu einer Abnahme der Ladungsträgerbeweglichkeiten durch eine Erhöhung der Streurate. Zuletzt werden die Auswahlregeln der Rückstreuprozesse aufgrund des lokalen Symmetriebruchs aufgehoben. Dazu zählen zum einen elastische Streuprozesse aber auch Spin-Orbit Streuprozesse, falls das Adatom ein magnetisches Moment im adsorbierten Zustand aufweist. Die lokale Koordinierung des Adsorbates hat dabei einen großen Einfluss auf dessen verbleibendes magnetisches Moment, da dieses in den 3d-Übergangsmetallen durch lokalisierte d-Orbitale hervorgerufen wird. Im Folgenden wird zunächst die Entwicklung des Leitwerts während der Adsorption der Materialien Sb, Cr, Mn, Fe und Co untersucht. Um ein komplettes Bild der Reihe der 3d-Übergangsmetalle zu erhalten, wurden die Messreihen für Fe und Co aus [51] verwendet, um die vorhandenen Datensätze zu ergänzen.

7.1 ÄNDERUNG DES LEITWERTS BEI ADSORPTION

Ein großer Vorteil des experimentellen Aufbaus liegt darin, dass die Änderung des Leitwerts als Funktion der Zusatzbedeckung von Adsorbaten gemessen werden kann. Zum einen kann mit dieser Methode eine Kalibrierung der aufgedampften Menge durchgeführt werden, wie bereits in Kapitel 4.1.1 beschrieben. Zum anderen wird ein erster Einblick in die adsorbatinduzierten Änderungen der Oberflächenleitfähigkeit gewonnen.

Die Form der Messkurven wird bei tiefen Temperaturen (11 K) durch zwei Prozesse bestimmt. Einerseits wird die Streurrate der Ladungsträger im Oberflächenzustand durch die Störatome erhöht. Dadurch werden die Beweglichkeiten der Ladungsträger gesenkt und der Leitwert nimmt monoton ab. Andererseits kann es durch den Einbau von Fremdatomen zu einem Ladungstransfer zwischen dem Atom und dem Bismuthkristall kommen. Wird die Ladungsträgerkonzentration erhöht, nimmt die Leitfähigkeit des Films gemäß $\sigma = e \cdot (n\mu_n + p\mu_p)$ zu. Zuletzt können kinetische Prozesse diese simple Abhängigkeit maßgeblich ändern. Bei der Adsorption von Tb auf Bi(111) diffundieren die Adatome selbst bei niedrigen Temperaturen über die Oberfläche, bis sie schließlich an den Korngrenzen des Films nukleieren [124]. Der Leitwert wird dabei zunächst durch eine Erhöhung der Streurrate gesenkt, nimmt jedoch durch die Diffusion der Streuzentren zu den Korngrenzen und einer damit einhergehenden effektiven Verringerung der Streuzentren wieder zu. Für die in diesen Messungen verwendeten 3d-Übergangsmetalle ist dieser Prozess jedoch höchst unwahrscheinlich, da diese unterhalb der ersten Bismuthbilage nukleieren, wie im nächsten Abschnitt diskutiert wird.

In der Abbildung 7.1 ist die Änderung des Leitwerts in Prozent gegen die Zusatzbedeckung der Materialien Co, Fe, Mn, Cr und Sb in ML bei einer konstanten Probertemperatur von ca. 11 K dargestellt. Der Inset zeigt eine vergrößerte Ansicht der Messung für den Bereich kleiner Bedeckungen.

Für Zusatzbedeckungen unter ca. 0,5 % einer Monolage bewirken alle 3d-Übergangsmetalle eine sehr starke Abnahme des Leitwerts um bis zu 10 %. Im Laufe der Messung verringert sich diese Abnahme jedoch leicht, wobei der Leitwert bei 0,5 ML ein Minimum durchläuft. Die Metalle Mn und Cr beeinflussen den Leitwert im Vergleich zu Fe und Co anders. Der Leitwert bei der Mn-Adsorption hat bei einer Konzentration von $c_1=0,5$ %ML einen Sattelpunkt. Im Fall von Cr entwickelt sich sogar ein lokales Minimum bei einer Bedeckung von $c_2=1,0$ %ML. Aufgrund der qualitativen Ähnlichkeit zu der Adsorptionskurve von Tb [124], liegt die Vermutung nahe, dass sowohl Cr, als auch Mn bei tiefen Temperaturen Cluster an den Korngrenzen des Bismuthfilms bilden. Eine zeitabhängige Messung des Leitwerts und SPA-LEED Analyse, die die Diffusion von Tb bestätigten, haben diese Vermutung allerdings widerlegt.

Unter der Annahme, dass pro adsorbiertem Atom ein Ladungstransfer und eine Änderung der Streurrate stattfindet, können die Messkurven für Fe und Co verstanden werden. Für sehr kleine Konzentrationen dominiert die Streuung und die Abnahme des Leitwerts ist beinahe linear. In diesem Regime gibt es keine Wechselwirkung der Adsorbatatome untereinander. Für größere Konzentrationen ist dies nicht mehr der Fall. Die Wahrscheinlichkeit, dass Atome wechselwirken (z.B. Dimer-Bildung) steigt. Die zusätzliche Streuung pro Atom nimmt ab. Zusammen mit der stetigen Erhöhung der Ladungsträgerkonzentration führt dies zu einer Kompensation der Abnahme durch Streuung. Eine größer werdende Krümmung der Messkurve ist zu erkennen.

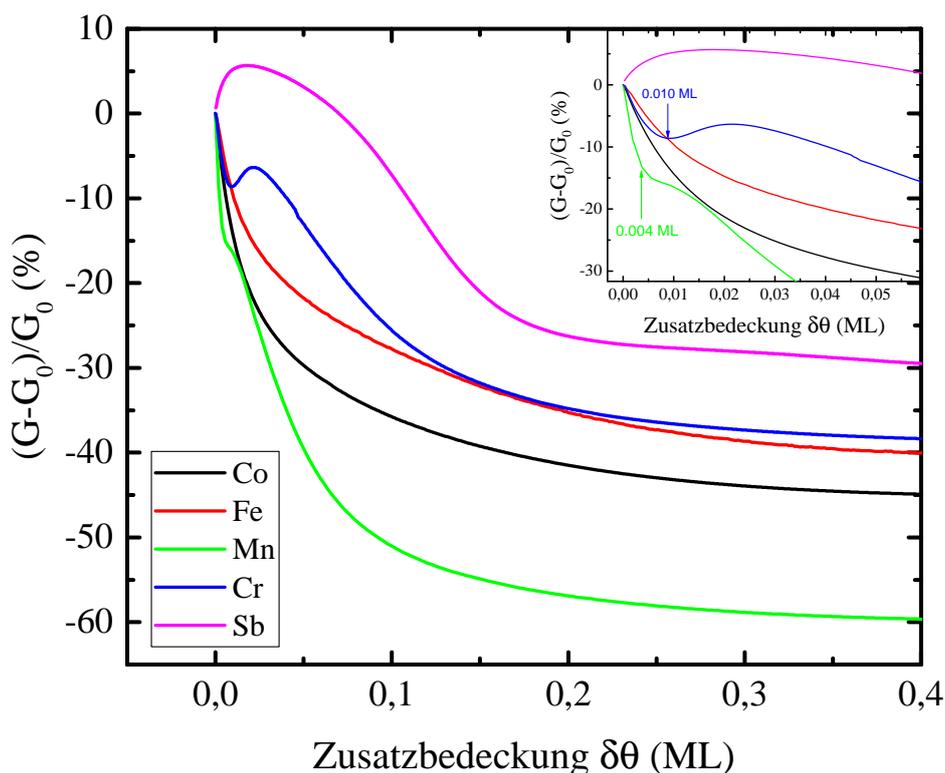


Abbildung 7.1: Änderung des Leitwerts bei Adsorption von Co, Fe, Mn, Cr und Sb. Der Inset zeigt eine vergrößerte Darstellung des Bereichs kleiner Zusatzbedeckungen, um die in den Cr und Mn Messreihen auftretenden Extrema herauszustellen.

Die Messkurven für Mn und Cr können durch dieses Modell nicht verstanden werden. Als Ursache bleibt ein nicht linearer Ladungstransfer als Funktion der Zusatzbedeckung. Wie in Kapitel 7.3.1 beschrieben wird, erhöhen alle 3d-Übergangsmetalle die Löcherkonzentration des Bismuthoberflächenzustands um $0,3-0,5h^+$ /Atom, wobei für Cr und Mn eine Unstetigkeit dieses Transfers beim Überschreiten der kritischen Konzentrationen c_1 und c_2 auftritt. Ein atomares Modell, das eine lokale Änderung der Oberfläche darstellt, kann dieses Verhalten nicht beschreiben.

Eine mögliche Erklärung ist die Verschiebung des chemischen Potentials in Richtung des Valenzbandes, induziert durch den Ladungstransfer. In der Abbildung 7.2 sind Bandstruktur DFT-Rechnungen von Matetskiy et al. für einen dünnen Bismuthfilm (a) und für denselben Film unter Zugabe (b) oder Entnahme (c) eines Elektrons dargestellt [125]. Hierbei ist eine Verschiebung der Bänder zu größeren (b) bzw. kleineren Bindungsenergien (c) zu erkennen. Dies stellt eine stark vereinfachte Darstellung des zuvor beschriebenen Sachverhalts dar, da keine Änderung der Oberflächenbänder durch Senken der Beweglichkeiten berücksichtigt wird, kann aber eine qualitative Erklärung der beobachteten Messergebnisse liefern. Matetskiy et al. zeigen weiterhin ARPES-Messungen der Oberflächenbänder von Bismuth bei der Adsorpti-

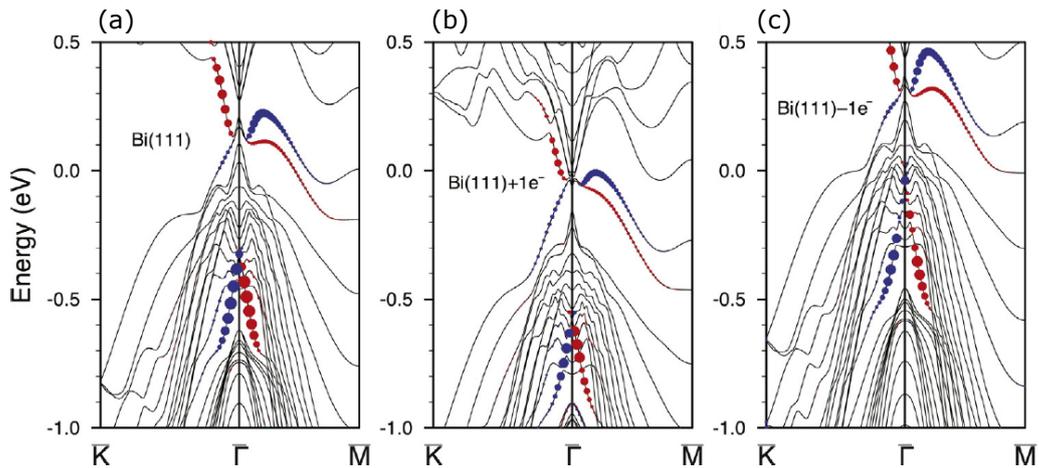


Abbildung 7.2: (a) DFT-Bandstruktur von Bi(111) sowie der Einfluss auf die Bänder unter Zugabe (b) oder Entnahme (c) eines Elektrons. Die Abbildung wurde aus Referenz [125] übernommen.

on von Cs und Sn. Diese bewirken einen Ladungstransfer und die Verschiebung des chemischen Potentials.

Durch die adsorbatinduzierte Erhöhung der Löcherkonzentration wird das Valenzband mit $n=1$ über das Fermi-Level geschoben, sodass ein weiterer Transportkanal entsteht. Die Verschiebung ist abhängig von der pro Atom verschobenen Ladung. Daher ordnet sich der Ladungsübertrag der untersuchten Adsorbate gemäß den, in der Abbildung 7.1 beobachteten Unregelmäßigkeiten an: $\Delta p_{Cr} < \Delta p_{Mn} < \Delta p_{Fe,Co}$. Der Ladungsübertrag von Fe und Co ist am größten, sodass nur sehr geringe Zusatzkonzentrationen zu dem Effekt führen, in diesen Messungen aber nicht aufgelöst werden können. Eine quantitative Untersuchung der Ladungsträgerkonzentrationen wird in Kapitel 7.3.1 vorgestellt und kann diesen Zusammenhang bestätigen.

Eine bemerkenswerte Beobachtung dieser Messreihen, ist die Tatsache, dass der Leitwert für alle Metalle um nicht viel mehr als 50% seines Ausgangswertes fällt. Wenn der Transport durch einen einzigen Kanal an der Oberfläche bei tiefen Temperaturen dominiert, wäre eine deutlich größere Abnahme des Leitwerts zu erwarten. Dies ist ein Anzeichen dafür, dass nicht nur der Oberflächenzustand, sondern ein weiterer Kanal zum Transport beiträgt. Dieser wurde im Kapitel 6.2 als Grenzflächenzustand identifiziert. Dieser weist, ähnlich dem Oberflächenzustand, spinpolarisierte Bänder auf und kann in einem Adsorptionsexperiment nicht beeinflusst werden, sodass eine Abnahme des Leitwerts bei der Störung des Oberflächenzustandes von etwa 50% plausibel ist.

Um das Streuverhalten der einzelnen Atome zu charakterisieren, wird der Einfluss des Ladungstransfers abgeschätzt und von den jeweiligen Messkurven subtrahiert. Als Startpunkt wird Gleichung (2.18) gewählt. Im Weiteren wird angenommen, dass $\mu_n \approx \mu_p = \mu$, was für einen reinen Bismuthfilm eine berechnete Vereinfachung darstellt (vgl. Abschnitt 6.2). Außerdem gelte, dass jedes Atom einen diskreten La-

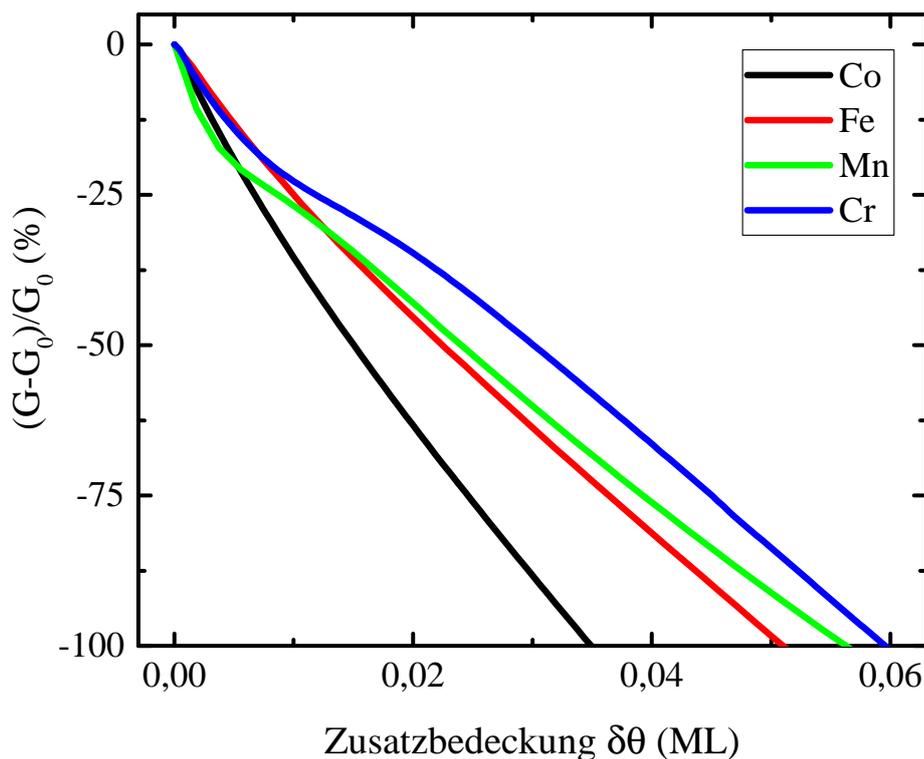


Abbildung 7.3: Änderung des Leitwerts G als Funktion der Zusatzbedeckung $\delta\theta$ für die Adsorbate Co, Fe, Mn und Cr nach dem Abzug der durch Dotierung induzierten Zunahme des Leitwerts.

dungsübertrag bewirkt, was sicherlich nur für kleine Zusatzbedeckungen $\delta\theta < 0,1$ ML gerechtfertigt ist, da in diesem Bereich keine Wechselwirkung der Adsorbate untereinander stattfindet. Als nächstes wird die Beweglichkeit aus den gemessenen Leitwerten berechnet und dann anhand von $G_0 + \Delta G = \pi/\ln(2) \cdot e\mu \cdot (c_0 + \Delta c)$, die durch Dotierung induzierte Änderung des Leitwerts berechnet. Das Ergebnis ist in der Abbildung 7.3 dargestellt. Im Vergleich zur Abbildung 7.1 zeigt sich, dass der Effekt der Ladungsträgerstreuung an den Fremdatomen sehr groß ist. Bereits nach wenigen Prozent einer ML wird ein Metall-Isolator-Übergang (Mott-Übergang) beobachtet. Die Stärke der Streuung folgt der Position des Metalls im Periodensystem.

7.1.1 Einfluss der Adsorption auf die Temperaturabhängigkeit

Um den Einfluss der Dotierung und die Hypothese der Bandstrukturänderung aus dem letzten Kapitel zu überprüfen, wurden temperaturabhängige Messungen des Leitwerts bei unterschiedlichen Cr Zusatzbedeckungen durchgeführt. Wie in Kapitel 6.1 beschrieben, dominiert für Temperaturen zwischen 11 K und ca. 50 K das metallische Verhalten des Oberflächenzustands den Transport, während für größere Tempe-

raturen (>50 K) aktivierter Transport beobachtet wird¹. In der Abbildung 7.4 (a) sind $G(T)$ -Messungen für einen reinen 35 BL dicken Bismuthfilm sowie Messungen desselben Films mit unterschiedlichen Cr Zusatzbedeckungen um den Bereich des lokalen Minimums der $G(\delta\theta)$ Kurve (b) dargestellt.

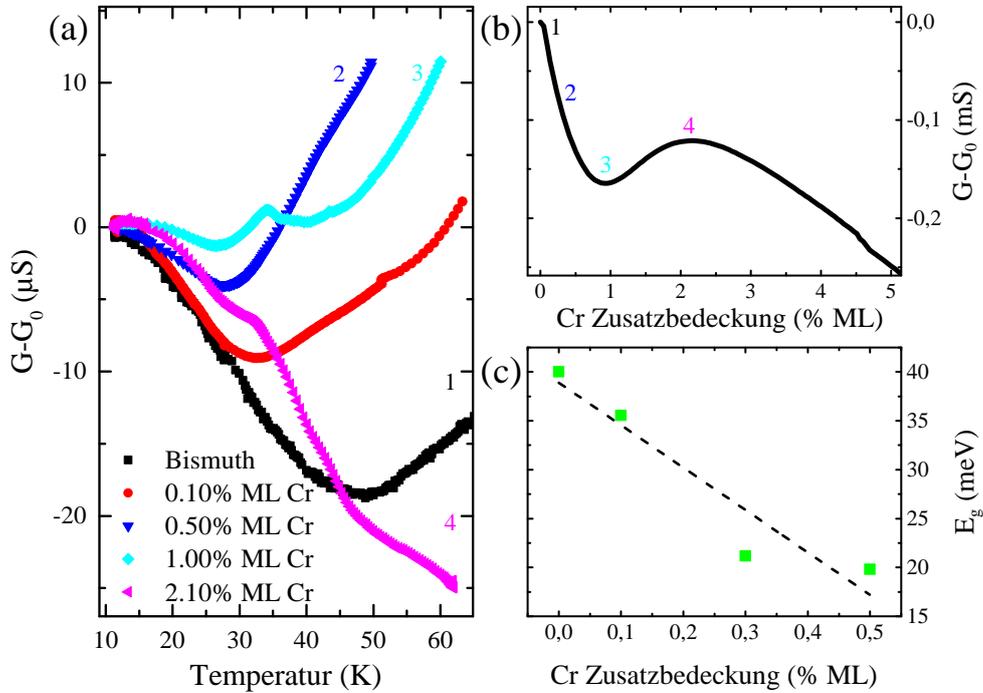


Abbildung 7.4: Cr induzierter Halbleiter-Halbmetall-Übergang. (a) $G(T)$ -Messungen für verschiedene Zusatzbedeckungen im Bereich des lokalen Minimums des $G(\delta\theta)$ -Verlaufs (b). Der fließende Übergang, sowohl in (a) zwischen 0,1 und 0,25 % ML als auch in (b) sichtbar, spiegelt sich in einer linearen Abnahme der Aktivierungsenergie (c) wider.

Der reine Bismuthfilm zeigt das zuvor beschriebene Verhalten. Für tiefe Temperaturen dominiert der metallische Transport des Oberflächenzustands, durchläuft dann ein Minimum und geht in aktivierten Transport für höhere Temperaturen über. Mit zunehmender Cr-Zusatzbedeckung verschiebt sich das Minimum zu kleineren Temperaturen und der exponentielle Anstieg wird zunehmend steiler (schwarze, rote und blaue Messkurve). Dies ist ein Zeichen dafür, dass die Bandlücke der quantisierten Zustände kleiner wird. Ab einer Bedeckung von 1 % ML, was der Konzentration des lokalen Minimums entspricht, ändert sich der zuvor beobachtete Trend drastisch (hellblaue Messkurve). Die Position des Minimums ist nicht mehr eindeutig auszumachen, wobei die Änderung des Leitwerts im Bereich tiefer Temperaturen nur noch weniger als $2 \mu\text{S}$ beträgt. Außerdem verschiebt sich der exponentielle Anstieg bei et-

¹ Je nach Schichtdicke d , verändert sich das Einsetzen des aktivierten Transports.

wa konstanter Amplitude zu höheren Temperaturen. Wird die Cr-Zusatzbedeckung weiter auf etwa 2 % ML erhöht, verschwindet der aktivierte Transport. Die Temperaturabhängigkeit des Leitwerts ist über den gesamten Temperaturbereich durch metallisches Verhalten gekennzeichnet (magentafarbene Messkurve).

Eine Analyse der Messkurven in (a) mit dem Modell aus Kapitel 6.1 (Gleichung (6.1)) ergibt die in (c) dargestellten Energielücken². Es wird deutlich, dass die Energielücke mit zunehmender Cr Bedeckung kleiner wird. Die durch Cr injizierten Löcher könnten ähnlich wie bei der Halbleiterdotierung zu einer Verschiebung des chemischen Potentials führen. Die Extrapolation der Datenpunkte, dargestellt durch die gestrichelte Linie, ergibt ein Verschwinden der Bandlücke bei etwa 0,9 % ML. Dies ist sehr genau die Bedeckung c_2 , nach welcher der Leitwert im $G(\delta\theta)$ -Verlauf beginnt zuzunehmen (vgl. Abbildung 7.4 (c)). An dieser Stelle wird also ein zusätzlicher Transportkanal geöffnet, der die Ladungsträgerstreuung an den Cr Adsorbaten durch eine Erhöhung der Ladungsträgerkonzentration überkompensiert und somit den Leitwert erhöht. Die Untersuchung der Ladungsträgerkonzentrationen in diesem Bedeckungsbereich wird im nächsten Abschnitt anhand von MLW- und Hall-Messungen vorgestellt und kann diesen Zusammenhang teilweise bestätigen.

7.2 ADSORPTIONSPLÄTZE

In diesem Abschnitt werden einige Erkenntnisse aus Dichte-Funktional-Theorie Rechnungen (DFT) sowie STM-Messungen wiedergegeben werden, die den energetisch günstigsten Adsorptionsplatz der 3d-Übergangsmetalle auf einer Bismuthoberfläche zeigen. Die DFT-Rechnungen wurden in der Arbeitsgruppe W. G. Schmidt am Lehrstuhl für Theoretische Physik der Universität Paderborn erstellt und sind zum Teil bereits in [110] und [47] veröffentlicht. In der Abbildung 7.5 sind diesbezügliche Rechnungen für die Adsorbate Bi, Co, Fe und Cr dargestellt. Es ist die Bindungsenergie als Funktion der Eindringtiefe aufgetragen. Die eingefügten Bilder zeigen zwei verschiedene Adsorptionsplätze I und II, entsprechend des ersten und zweiten Energieminimums.

Wie zu erkennen ist, lagert sich Bismuth oberhalb der Oberfläche direkt über einem Atom der zweiten Bilage, was konsistent mit dem homoepitaktischen Wachstum im Lage-für-Lage Modus ist [97] (vgl. Kapitel 5). Für die Übergangsmetalle ändert sich die Situation drastisch. Der energetisch stabilste Platz liegt innerhalb der ersten Bilage und weist eine siebenfachen Koordination auf. Die ersten sechs Bindungen entstehen dabei mit Bismuthatomen aus der ersten Bilage und die siebte mit einem Atom der zweiten Bilage [47]. Die Rechnungen zeigen weiterhin, dass keine thermische Aktivierung nötig ist, damit das Adsorbat diesen Platz einnimmt. Daher ist davon auszugehen, dass die 3d-Übergangsmetalle selbst bei tiefsten Temperaturen an dieser Stelle adsorbieren. Die Inkorporation geht mit einer Umverteilung von Ladung innerhalb

² aus Gründen der Übersicht werden in (a) nicht alle untersuchten Bedeckungen angezeigt

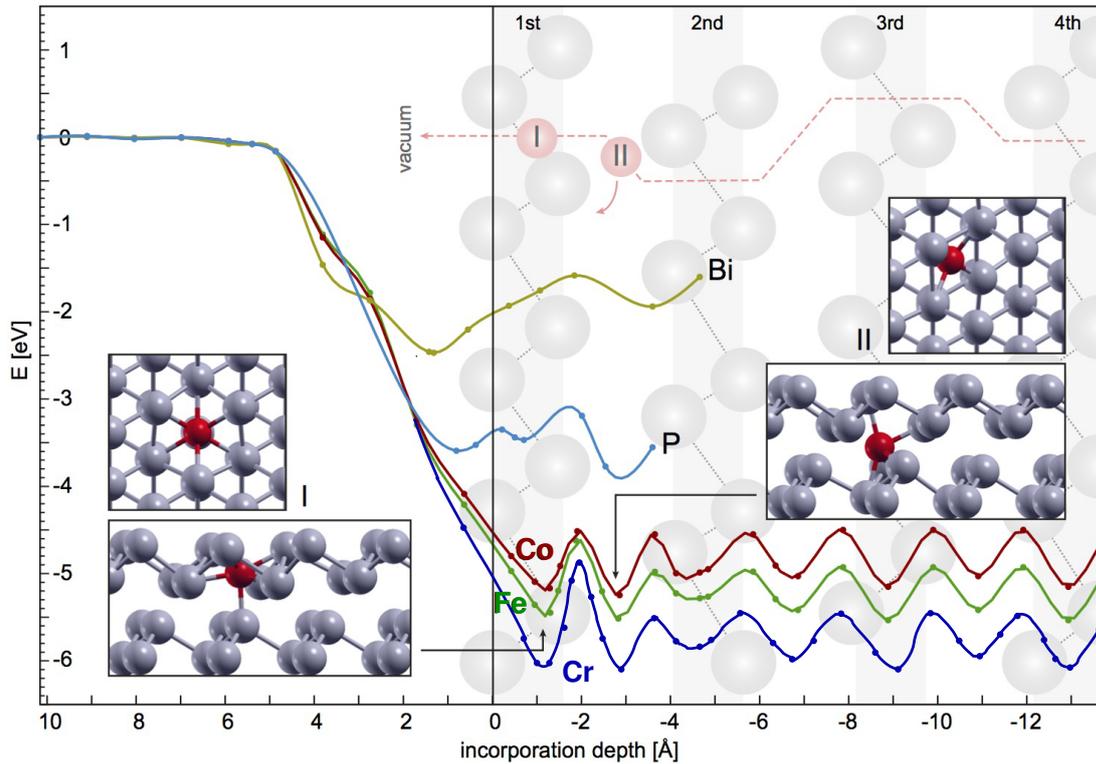


Abbildung 7.5: DFT-Rechnung: Bindungsenergie als Funktion der Eindringtiefe der 3d-Übergangsmetalle in den Bismuthfilm. In den Insets I und II sind zudem die energetisch günstigsten Adsorptionsplätze dargestellt, die dem ersten bzw. zweiten Minimum der Bindungsenergie entsprechen.

des Metallatoms und der ersten drei Bismuthbilagen einher. Die Übergangsmetalle mit der Konfiguration $3d^n 4s^2$ verschieben Ladungen der s-Orbitale in die d-Orbitale, um stabile σ -Bindungen mit den Nachbaratomen einzugehen. Die d-Orbitale bleiben somit lokalisiert. Dies ist der Grund für deren großes verbleibendes magnetisches Moment (Cr: $5 \mu_B$; Mn: $4,5 \mu_B$; Fe: $3,1 \mu_B$; Co: $1,2 \mu_B$). Der gesamte Ladungstransfer der Atome berechnet sich weiterhin zu: Cr: $0,3 h^+$ /Atom; Mn: $0,29 h^+$ /Atom; Fe: $0,43 h^+$ /Atom; Co: $0,6 h^+$ /Atom.

7.3 ADSORBATINDUZIERTER ÄNDERUNG DES MAGNETOTRANSPORTS

In diesem Abschnitt soll der Einfluss der magnetischen 3d-Übergangsmetalle auf einer Bismuthoberfläche untersucht werden. Die Adsorption eines solchen Atoms hat mehrere Konsequenzen für das Gesamtsystem. Zum einen werden gebundene oder freie Ladungsträger durch die chemische Bindung mit dem Substrat erzeugt. Weiterhin nehmen die Beweglichkeiten der Ladungsträger durch eine Erhöhung der Streuzentrensdichte an der Oberfläche ab. Diese beiden Aspekte wurden bereits Kapitel 7.1 diskutiert und können durch sukzessive Adsorption verschieden kleiner Mengen ($0,1$ - $3,0$ %ML) der 3d-Übergangsmetalle mithilfe der Analyse des klassischen Unter-

grunds quantifiziert werden. Zuletzt werden die Auswahlregeln der Streuprozesse aufgrund eines lokalen Bruchs der \mathcal{T} -Symmetrie, induziert durch das nach Adsorption verbleibende magnetische Moment des Atoms, aufgehoben. Um dies zu untersuchen wird der WAL-Beitrag des MLW analysiert.

7.3.1 Diffuser Transport bei Adsorption

Zunächst werden die adsorbatinduzierten Änderungen des Leitwerts auf den klassischen Anteil des MLW untersucht. Dabei werden Messungen an dünnen Bismuthfilmen mit Cr und Mn als Adsorbate vorgestellt. Zusätzlich werden die Ergebnisse der mit Co und Fe durchgeführten Messungen aus [51] gezeigt, um ein ganzheitliches Bild des Einflusses der 3d-Übergangsmetalle auf der Bismuthoberfläche zu erhalten. Die Proben temperatur beträgt dabei in allen Fällen 11 K.

In den Abbildungen 7.6 sind die Ergebnisse der Magnetotransport (a), (c) und (d) und spezifischen Hall-Widerstände (b), (d) und (f) eines 30 BL bzw. zwei 20 BL dicker Bismuthfilme für verschiedene Zusatzbedeckungen $\delta\theta$, angegeben in %ML, für die Adsorbate Cr, Mn und Fe dargestellt. Bei der Wahl der Zusatzkonzentrationen wurde darauf geachtet, den Bereich um die Extrema der $G(\delta\theta)$ -Verläufe (vgl. Abbildung 7.1) bestmöglich abzudecken. Für die reinen Bismuthfilme zeigen sich die parabelförmigen Verläufe als Funktion des magnetischen Feldes. Mit zunehmender Adsorbatkonzentration $\delta\theta$ nimmt die Amplitude des klassischen Beitrags deutlich ab und fällt bereits bei Konzentrationen von unter 1 %ML auf 20 % ihres Ausgangswertes. Die Größe dieses Beitrags hängt sehr stark von den Ladungsträgerbeweglichkeiten ab ($G(B) \propto \mu^2$). Weiterhin zeigen sich unterschiedliche Amplituden für die reinen Filme, was auf unterschiedliche Filmqualitäten und die damit verbundenen Beweglichkeiten schließen lässt. In der Mn Messreihe wurde ein 30 BL dicker Bismuthfilm verwendet. Diese zeigt die größte $G(B)$ -Amplitude und ist damit konsistent mit den in der Abbildung 6.8 dargestellten Ergebnissen.

Bei den $\rho_{\text{HALL}}(B)$ -Verläufen zeigen sich qualitative Unterschiede der einzelnen Messreihen, die zum einen mit den unterschiedlichen Ausgangsbedingungen zusammenhängen und zum andern durch adsorbatinduzierte Unterschiede hervorgerufen werden. Bei der Cr-Adsorption zeigen alle $\rho_{\text{HALL}}(B)$ einen linearen Verlauf. Zudem ist für den reinen Bismuthfilm $d\rho_{\text{HALL}}(B)/dB < 0$. Schon nach der ersten aufgedampften Menge (0,7 %ML) wird ein Umklappen der Steigung beobachtet. Das Umklappen der Steigung markiert den Punkt an dem die Bedingung $\mu_n/\mu_p < \sqrt{p/n}$ erfüllt ist. Anschließend verändert sich die Steigung bei doppelt so großer Zusatzbedeckung nur sehr gering und nimmt dann sukzessive mit jeder weiteren Bedeckung ab. Die fehlende Änderung der Steigung in $\rho_{\text{HALL}}(B)$ zwischen $\delta\theta = 0,7\% \text{ ML}$ und $\delta\theta = 1,4\% \text{ ML}$ bei gleichzeitiger Änderung der Beweglichkeiten deutet auf eine starke Änderung der Ladungsträgerkonzentration hin.

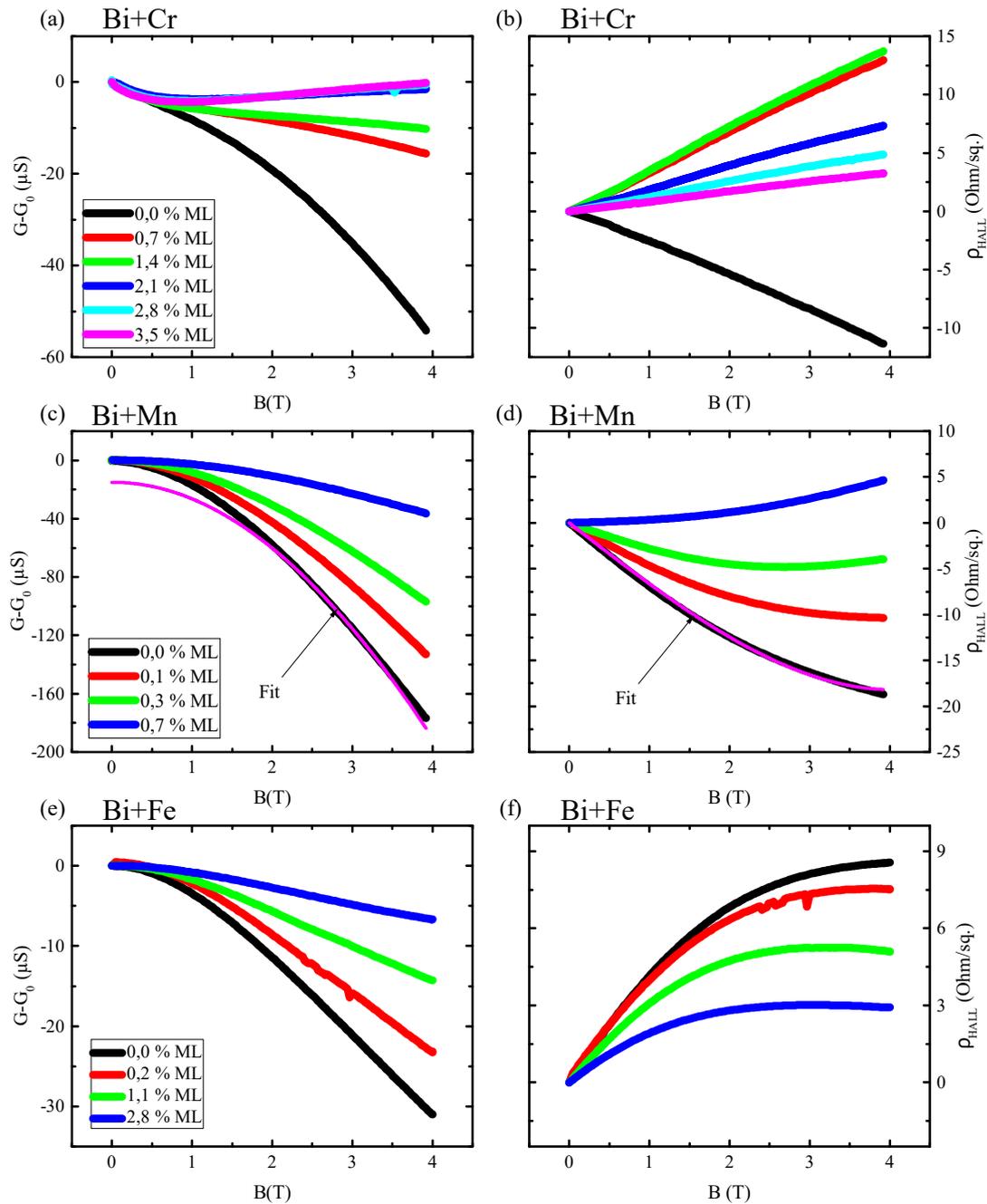


Abbildung 7.6: (a), (c), (e) Die Änderung des Leitwerts $G-G_0$ als Funktion des Magnetischen Feldes für verschiedene Adsorbate (Cr, Mn und Fe) und Zusatzbedeckungen $\delta\theta$. Für jedes Metall bewirkt zusätzliche Adsorption eine Verkleinerung der klassischen $G(B)$ -Amplitude. (b), (d), (f) Spezifischer Hall-Widerstand der entsprechenden Adsorbate und Zusatzbedeckungen. In (c) und (d) sind exemplarische Fits in Magenta dargestellt. Alle Messungen wurden bei $T = 11$ K durchgeführt. Die Bismuthfilmdicke bei der Cr und Fe Messung beträgt 20 BL und bei Mn 30 BL.

Bei der Mn Messreihe ist, wie bei Cr, $d\rho_{\text{HALL}}(B)/dB < 0$. Zudem zeigt die Kurve einen gekrümmten Verlauf. Bei sukzessiver Adsorption nimmt die Steigung ab und

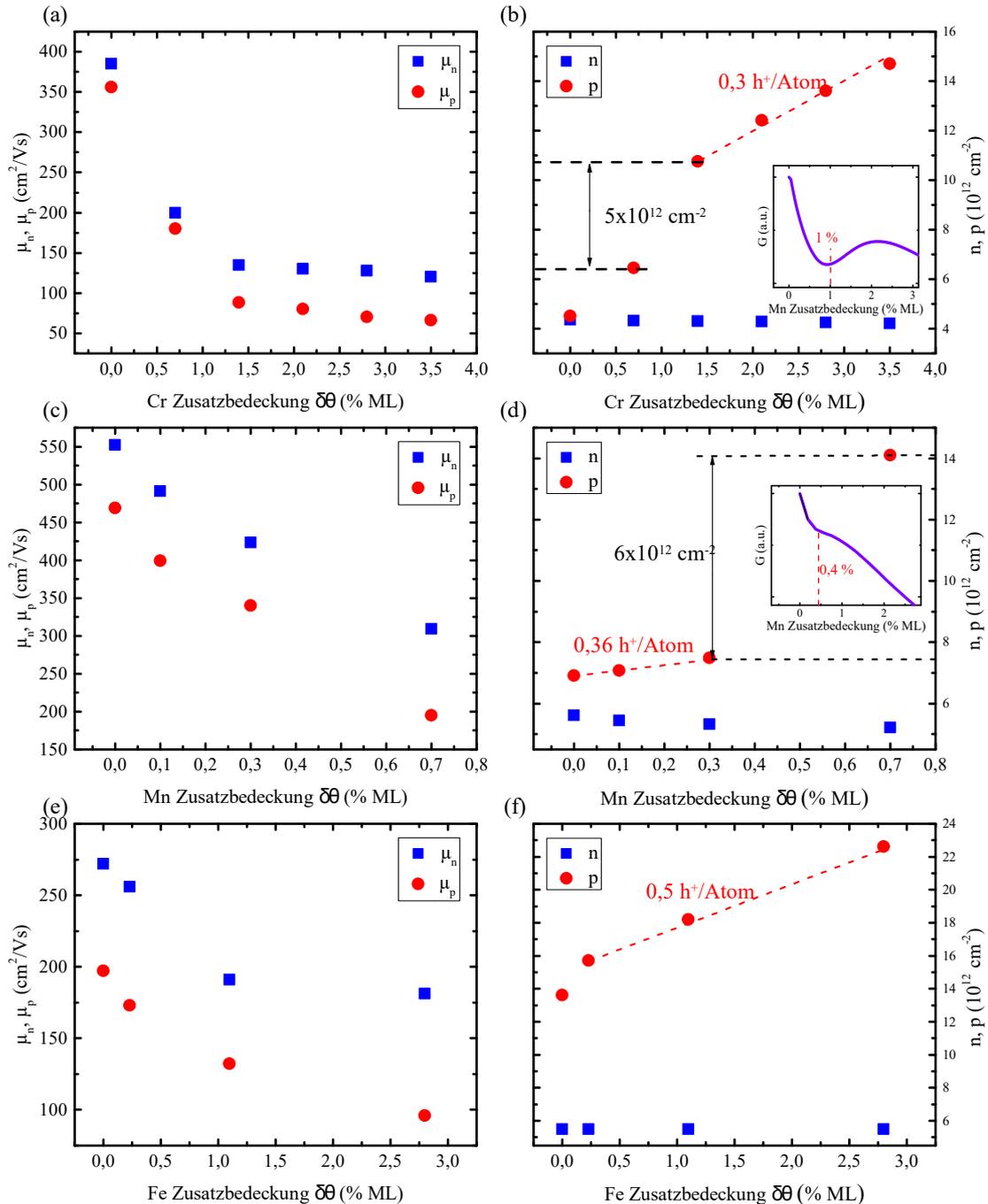


Abbildung 7.7: Durch Anpassung der Messkurven aus Abbildung 7.6 erhaltene Parameter. (a), (c), (e) Die Beweglichkeiten als Funktion der Zusatzbedeckung verschiedener Adsorbate. Für Alle Adsorbate nehmen die Beweglichkeiten mit zunehmender Zusatzbedeckung ab. (b), (d), (f) Entwicklung von n und p als Funktion der Zusatzbedeckung. Bei der Cr und Mn Adsorption wird ein sprunghafter Anstieg der Löcherkonzentration p beobachtet. Diese fällt in den Bedeckungsbereich der Extrema in den $G(\delta\theta)$ -Verläufe (Insets). Bei der Fe Adsorption ist der p -Sprung bereits nach der Adsorption der kleinsten Menge zu beobachten.

ist positiv für $\delta\theta = 0,7\%ML$. Qualitativ ist die Entwicklung des Hall-Widerstandes bei der Mn-Adsorption ähnlich wie bei der Cr-Adsorption. Die hier gezeigten Mn-Zusatzbedeckungen sind jedoch deutlich kleiner. Für einen Vergleich beider Metalle wurde eine unabhängige MLW- und Hall-Messung durchgeführt. Die entsprechende Abbildung A.4 befindet sich im Anhang A.3. An dieser Stelle wird zudem das Auftreten der unterschiedlichen Steigungen und Krümmungen des spezifischen Hall-Widerstandes bei den verschiedenen Präparationen diskutiert. Im Gegensatz zu beiden anderen Messreihen startet der spezifische Hall Widerstand bei der Fe Messreihe mit einem positiven Vorzeichen. Dies hängt damit zusammen, dass die Ladungsträgerbeweglichkeiten in diesem Film sehr gering und deren Verhältnis klein gegen $\sqrt{p/n}$ ist. Dies wird auch durch die Beobachtung der kleinsten $G(B)$ -Amplitude in (e) bestätigt. Mit zunehmendem $\delta\theta$ wird die Steigung kleiner.

Aus der simultanen Analyse der $\rho_{Hall}(B)$ - und $G(B)$ -Daten ergeben sich die in der Abbildung 7.7 dargestellten Ladungsträgerbeweglichkeiten μ_n und μ_p ((a), (c) und (e)), bzw. Ladungsträgerkonzentrationen n und p ((b), (d) und (f)). Die Beweglichkeiten der reinen Filme unterscheiden sich dabei, wie bereits anhand der $G(B)$ -Messungen beurteilt, deutlich. Die Beweglichkeiten der Elektronen und Löcher liegen zwischen 270- und 550 cm^2/Vs bzw. zwischen 200 und 470 cm^2/Vs und nehmen dann in allen Fällen aufgrund der zusätzlichen Streuzentren und der damit verbundenen kleineren Streuzeit τ_{st} gemäß $\mu \propto \tau_{st}$ ab. Bei den höheren Zusatzbedeckungen der Cr Messreihe zeigte sich ein Umklappen von NMLW auf PMLW bei Magnetfeldstärken von ca. 1 T. Die Ladungsträgerbeweglichkeiten sind ab einer Konzentration von 2,1 % ML bereits stark reduziert, sodass die Amplitude des klassischen B^2 -Verlaufes sehr klein geworden ist. Die überlagerten kohärenten Streuprozesse dominieren das Messsignal (vgl. Kapitel 7.3.2). Mit weiterer Adsorption ändern sich die Beweglichkeiten nur minimal. Möglicherweise werden in diesem Konzentrationsbereich bevorzugt Dimere gebildet, sodass eine zusätzliche Bedeckung nur wenige zusätzliche Streuzentren hervorruft. Auch in der Fe-Messreihe lässt sich für die größte Adsorbatkonzentration ein Umklappen des $G(B)$ -Verlaufs bei sehr großen B erahnen, wobei die Beweglichkeiten bereits auf einen mit der Cr-Messreihe vergleichbaren Wert abgesunken sind.

Die Entwicklung der Ladungsträgerkonzentrationen zeigen ebenfalls einige Gemeinsamkeiten. Zum einen nimmt die Elektronenkonzentration n mit zunehmender Zusatzbedeckung kaum ab $< 0,01 e^-/Atom$. Außerdem wird ein deutlicher Anstieg der Löcherkonzentration beobachtet, der für alle untersuchten Materialien unterschiedlich ist. Die Dotierung, ausgedrückt in Ladungstransfer pro aufgedampftem Atom ist: $\Delta p \sim 0,3 \pm 0,1 h^+/Cr - Atom$, $\sim 0,36 \pm 0,04 h^+/Mn - Atom$, $\sim 0,5 \pm 0,08 h^+/Fe - Atom$, $\sim 0,6 \pm 0,1 h^+/Co - Atom^3$.

Für die Cr Adsorption zeigt sich weiterhin ein sprunghafter Anstieg der Löcherkonzentration zwischen $0,7\%ML < \delta\theta < 1,7\%ML$ um etwa $5 \cdot 10^{12} cm^{-2}$. Genau in

³ Cobalt Daten aus [51]

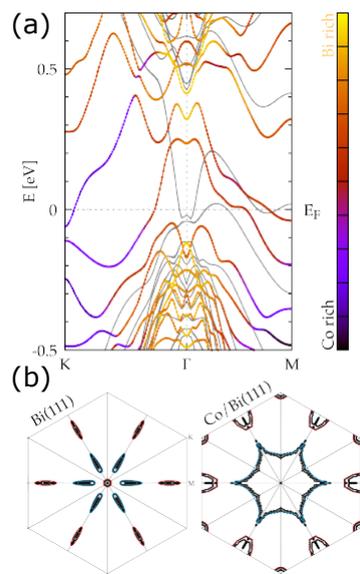


Abbildung 7.8: (a) Relativistische Bandstruktur für 1 ML Cobalt auf Bi(111). Die Bänder des reinen Films sind in grau hinzugefügt. (b) Fermi-Fläche für den reinen Bi(111)-Film bzw. Co/Bi(111). Elektronen- und Lochtaschen sind in rot, bzw. blau dargestellt. Die Abbildungen sind aus Referenz [110] übernommen.

diesem Bereich der Zusatzkonzentration von etwa 1 % ML befindet sich das Extremum des $G(\delta\theta)$ -Verlaufs, welcher noch einmal im Inset der Abbildung dargestellt ist. Der Grund für die Besonderheit von $G(\delta\theta)$ ist demnach ein überproportional starker Anstieg von p während der Adsorption, sodass die Dotierung die Abnahme von G durch die sinkenden Beweglichkeiten überkompensiert. Dadurch steigt der Leitwert.

Für die Mn Messreihe findet sich ebenfalls ein Sprung in der Löcherkonzentration bei einer Zusatzbedeckung um 0,4 % ML, der auch in diesem Fall mit dem Extremum im $G(\delta\theta)$ -Verlauf korreliert werden kann. Für die Fe Messreihe⁴ hingegen wurde bei den bedeckungsabhängigen Leitwerten kein Extremum gefunden. Auch hierfür findet sich die Erklärung in der Abbildung 7.7 (f). Bereits nach der ersten aufgedampften Menge ist ein Sprung gleicher Größenordnung bei p zu beobachten, sodass dieser möglicherweise in der $G(\delta\theta)$ -Messung nicht mehr aufgelöst werden kann (vgl. Abbildung 7.1).

Aufgrund dieser Analysen ist klar, dass die Extrema der $G(\delta\theta)$ -Verläufe durch einen sprunghaften Anstieg in der Löcherkonzentration bei gleichzeitiger monotoner Abnahme der Beweglichkeiten hervorgerufen werden. Es muss also ein zusätzlicher Transportkanal zum Gesamttransport beitragen um diese Beobachtung zu beschreiben. Matetskiy et al. konnten eine durch Ladungstransfer induzierte Änderung der energetischen Lage des chemischen Potentials mittels ARPES-Messungen beobachten [125]. Hierzu wurden Cäsium für n-Dotierung, bzw. Zinn für p-Dotierung auf Bismuth aufgedampft, wobei die Fermi-Fläche bei hinreichend großer Dotierung n

⁴ Selbes gilt Co.

bzw. p-artig wird. Die Verschiebung des Fermi-Levels beträgt im Fall von Cs bei einer Konzentration von 0,035 ML bereits über 100 meV. Ein äquivalenter Effekt wurde von DFT-Rechnungen bei der Adsorption von Co auf Bismuth vorhergesagt. In der Abbildung 7.8 (a) ist diese Rechnung dargestellt. In (b) ist die Fermi-Fläche des reinen Films bzw. von Co/Bi(111) dargestellt, die bei einer Bedeckung von 1 ML Co stark lochartige Zustände aufweist. Hierbei fällt außerdem eine starke Änderung der Oberflächenzustände auf.

Es ist offensichtlich, dass die Verschiebung des chemischen Potentials starke Auswirkungen auf den Transport des Bismuthfilms zur Folge hat. Bei p-Dotierung wird die Zustandsdichte der Elektronentaschen bei $\bar{\Gamma}$ und \bar{M} verringert, während die Zustandsdichte der Lochtasche zwischen $\bar{\Gamma}$ und \bar{M} zunimmt. Weiterhin kann die Verschiebung dazu führen, dass ein Valenzband über das Fermi-Level geschoben wird und somit einen Beitrag zum Transport liefert. Die Valenzbänder bei $\bar{\Gamma}$ zeichnen sich durch eine sehr große Wellenlänge bzw. einen kleinen Wellenvektor aus ($k_F = 0,05 \text{ \AA}^{-1}$ [118]) und haben daher nur eine geringe Zustandsdichte von $p = k_F^2/2\pi \approx 4 \cdot 10^{12}/\text{cm}^2$. Eben dieser Beitrag wird als sprunghafter Anstieg der Löcherkonzentration in den Ergebnissen aus den Abbildungen 7.7 beobachtet. In der Abbildung 7.9 ist dieser Mechanismus schematisch dargestellt.

Unter Annahme starrer Bänder bei gleichzeitiger Verschiebung des chemischen Potentials kann der Effekt offensichtlich nicht vollständig erklärt werden, da neben dem Anstieg der Löcherkonzentration eine deutliche Abnahme der Elektronenkonzentration zu erwarten ist. Diese Beobachtung legt nahe, dass die Adsorbatatome die Struktur der Oberflächenbänder beeinflussen, was auch in den DFT-Rechnungen der Abbildung 7.8 zu erkennen ist. Um den Einfluss der 3d-Übergangsmetalle auf die Bismuthbandstruktur zu klären, sind weitere ARPES-Messungen nötig.

Dennoch lässt sich schlussfolgern, dass die Extrema der $G(\delta\theta)$ -Verläufe ein durch Dotierung induzierter Beitrag des Valenzbandes mit $n=1$ ist. Dieser wird in Abhängigkeit von der Stärke des Ladungsübertrags der 3d-Übergangsmetalle als ein Anstieg der Leitfähigkeit des Bismuthfilms beobachtet. Cr hat den kleinsten Ladungsübertrag von etwa $0,3 \pm 0,1 h^+/\text{Atom}$, gefolgt von Mn mit $0,35 \pm 0,1 h^+/\text{Atom}$. Aus diesem Grund werden die Extrema bei unterschiedlichen Zusatzbedeckungen $\delta\theta$ beobachtet. Im Fall von Fe und Co sind die Ladungsüberträge sehr viel größer ($0,5 \pm 0,1$ – bzw. $0,6 \pm 0,1 h^+/\text{Atom}$) und können daher in den $G(\delta\theta)$ -Messungen nicht mehr aufgelöst werden, wobei der Sprung in den MLW-Messungen bereits nach der Adsorption der ersten Zusatzbedeckung beobachtet wird.

7.3.2 Kohärenter Transport bei Adsorption

Nach der Subtraktion des diffusen Anteils der $G(B)$ -Messungen verbleibt der Anteil der kohärent gestreuten Ladungsträger und kann mithilfe der Hikami-Theorie analysiert werden. Im Folgenden soll untersucht werden, inwiefern die magnetischen

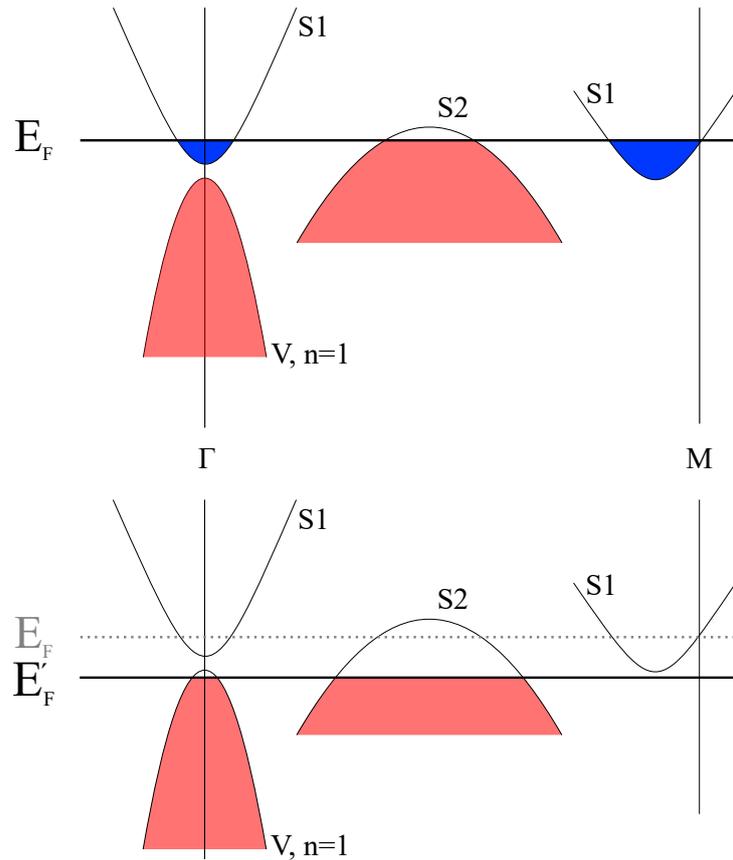


Abbildung 7.9: Schematische Darstellung der Bismuthbandstruktur bei p-Dotierung. Oben: Ungestörtes Bismuth mit den beiden Oberflächenbändern S_1 und S_2 . Unten: Die gleiche Situation bei Erhöhung der Löcherkonzentration. Die Zustandsdichte des S_2 Bandes nimmt zu und das Valenzband mit $n=1$ wird über das Fermilevel geschoben. Gleichzeitig werden die Elektronentaschen des S_1 Bandes entleert.

Adsorbate die \mathcal{T} -Symmetrie beeinflussen können. In der Abbildung 7.10 und 7.11 sind die Hikami-Residuen (a) sowie die aus den Anpassungen resultierenden Streuzeiten (b) als Funktion der Zusatzbedeckung für die Metalle Cr und Mn dargestellt. Die Schichtdicken der Bismuthfilme betragen $d_{Mn}=30$ BL und $d_{Cr}=20$ BL.

Für alle Metalle sind beispielhaft Fits des von Hikami vorgeschlagenen Modells eingefügt. Die Übereinstimmung mit den Messdaten ist sehr gut. Diese Tatsache unterstützt die Näherung, beide Beiträge als Überlagerung zu betrachten und zeigt außerdem, dass die zuvor subtrahierten Anteile eine vernünftige Modellierung darstellen.

Für die reinen Bismuthfilme nimmt der Leitwert als Funktion des Magnetfelds ab. Es handelt sich also um WAL. Die Adsorption der 3d-Übergangsmetalle führt in allen Fällen zu einer Abnahme dieser Amplitude, also einer Entwicklung des Streuverhaltens von WAL zu WL. Einen detaillierteren Einblick in den Mechanismus liefert die Analyse der Streuzeiten. Die elastische Streuzeit τ_0 wird aufgrund einer Erhöhung der Ladungsträgerstreuung kleiner. Dies ist äquivalent mit der Abnahme der Beweglichkeiten beim diffusen Magnetotransport (Kapitel 7.3.1). Die inelastische Streuzeit

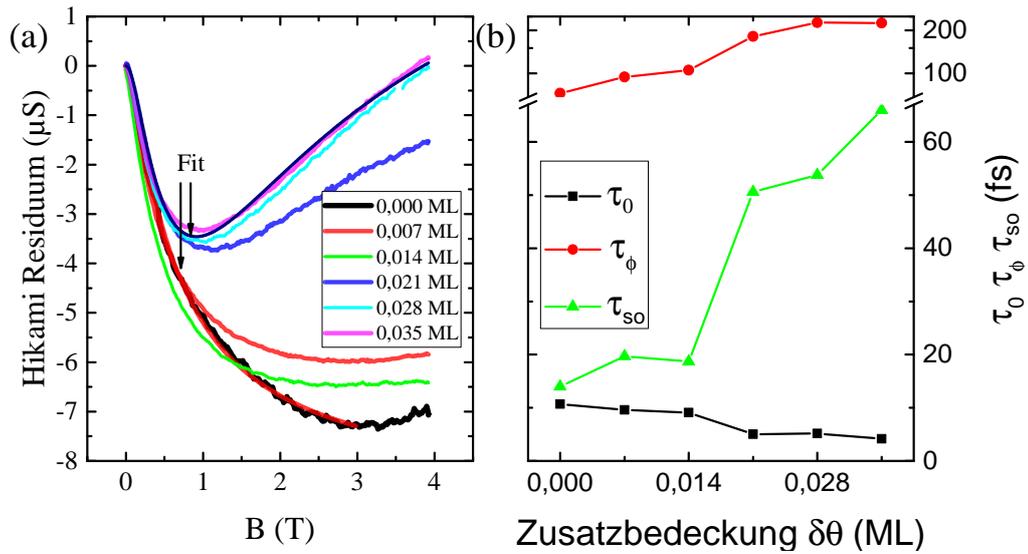


Abbildung 7.10: In (a) sind die Hikami Residuen als Funktion der Cr Zusatzbedeckung dargestellt. Mit zunehmender Bedeckung ändert sich die Krümmung der Kurven und zeigt für hohe Bedeckungen WL Verhalten. Die Analyse dieser Messdaten mithilfe der Gleichung (2.35) ist in (b) dargestellt. Mit zunehmender Schichtdicke nimmt die elastische Streuzeit τ_0 entsprechend einer Erhöhung der Defektdichte ab. Die Spin-Orbit Streuzeit τ_{so} verzeichnet einen Zuwachs, während τ_ϕ fast unbeeinflusst bleibt.

τ_ϕ zeigt keine klare Abhängigkeit von der Zusatzbedeckung, ist aber für alle Metalle um mindestens eine Größenordnung größer als τ_0 und τ_{so} . Das bedeutet zum einen, dass inelastische Streuprozesse (wie z.B. Elektron-Phonon-Streuung) bei der Probertemperatur von 11 K keine Rolle spielen und ist natürlich zum anderen eine notwendige Bedingung zur Beobachtung von WL/WAL (vgl. Abschnitt 2.2.4). Die interessanteste Streuzeit, die Spin-Orbit-Streuzeit τ_{so} , zeigt eine Zunahme mit der Adsorbatzusatzbedeckung für alle untersuchten Metalle. Hierbei fällt auf, dass die Zunahme für alle 3d-Übergangsmetalle unterschiedlich ist.

Aus DFT-Rechnungen und STM-Messungen ist bekannt, dass die 3d-Übergangsmetalle mit großer Wahrscheinlichkeit unterhalb der ersten Bismuth-BL nukleieren. Außerdem ist das magnetische Moment im adsorbierten Zustand dem der freien Atome ähnlich. Die theoretischen Werte der magnetischen Momente betragen: Cr : $4,9 \mu_B$, Mn : $4,5 \mu_B$, Fe : $3,2 \mu_B$ und Co : $1,2 \mu_B$.

Die Zunahme der Spin-Orbit-Streuzeit $\tau_{so}(\delta\theta)$ bedeutet also, dass alle 3d-Übergangsmetalle starke Spin-Orbit-Streuer sind. An der induzierten Störstelle sind die spinabhängigen Auswahlregeln aufgehoben. Anders ausgedrückt, die Streuprozesse an den magnetischen Störstellen mischen alle Spinkomponenten, sodass der Spin keine gute Quantenzahl mehr ist. Als Konsequenz tragen die Adsorbate zu einer

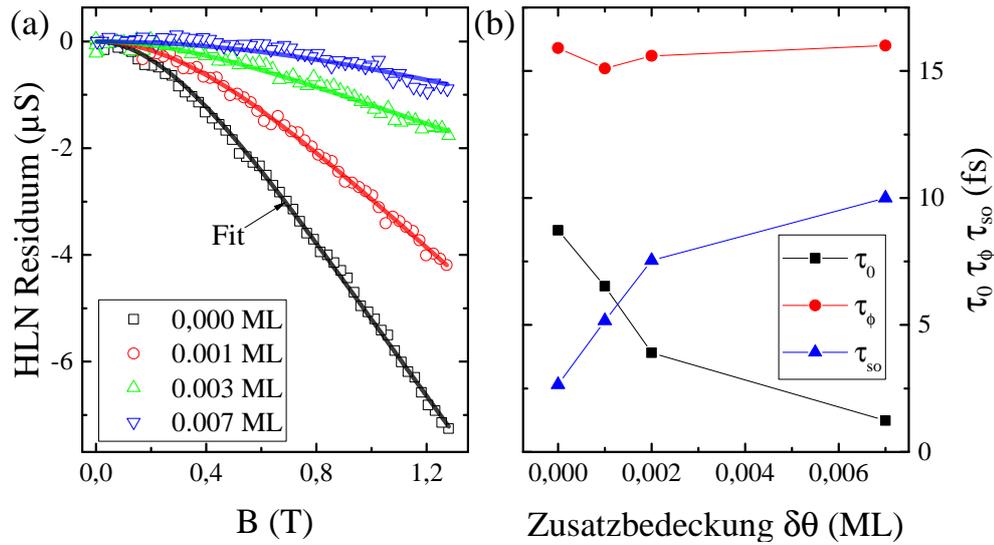


Abbildung 7.11: In (a) sind die Hikami Residuen als Funktion der Mn Zusatzbedeckung dargestellt. Mit zunehmender Bedeckung nimmt die WAL-Amplitude ab. Die Analyse dieser Messdaten mithilfe der Gleichung (2.35) ist in (b) dargestellt. Mit zunehmender Schichtdicke nimmt die elastische Streuzeit τ_0 entsprechend einer Erhöhung der Defektdichte ab. Die Spin-Orbit Streuzeit τ_{so} verzeichnet einen Zuwachs, während τ_ϕ fast unbeeinflusst bleibt.

Verlängerung der Spin-Orbit Streuzeit und der damit verbundenen Aufweichung des Rückstreuverbots aufgrund der \mathcal{T} -Symmetrie bei.

Im nächsten Abschnitt werden die magnetischen Eigenschaften der Übergangsmetalle auf der Bismuthoberfläche anhand von XMCD-Messungen experimentell überprüft, um letztlich eine Korrelation zwischen dem Streuverhalten und den magnetischen Momenten herzustellen.

7.4 XMCD-MESSUNGEN AN CR/BI(111) UND FE/B(111)

Die Ausrichtung der Magnetisierung eines Materials entlang einer spezifischen Raumrichtung wird als magnetische Anisotropie bezeichnet. Die magnetische Anisotropieenergie (MAE) charakterisiert dabei die Energie, die benötigt wird, um die Richtung der Magnetisierung zu ändern. Große MAE sind wünschenswert, um Anwendungen wie beispielsweise MRAM zu realisieren [126, 127], damit die Information dauerhaft über den Spin gespeichert werden kann und nicht durch thermische Fluktuationen ausgelöscht wird.

Der Ursprung der magnetischen Anisotropie ist eine Kombination aus orbitalem Moment und Spinmoment. In einem Festkörper wird sich das Orbitalmoment entlang einer Raumrichtung orientieren, die durch das Kristallfeld festgelegt wird. Die Stärke der MAE wird durch die Aufspaltung (ohne magnetisches Feld) zwischen elektro-

nischem Grundzustand und dem ersten angeregten Zustand mit entgegengesetzter Spinausrichtung definiert [128]. In Volumenmaterialien oder bei der Hybridisierung von magnetischen Atomen mit dem Hostmaterial ist der Bahndrehimpuls jedoch oft keine gute Quantenzahl mehr, sodass Energien im Bereich von 0,01-1 meV/Atom erreicht werden [129, 130]. Eine beliebte Methode zur Erzeugung hoher MAE ist die Adsorption von 3d Übergangsmetallen unter Minimierung der Wechselwirkung mit dem Substrat, sodass dessen magnetischen Eigenschaften erhalten bleiben [128, 131, 132]. Gambardella et al. haben in ihrer Pionierstudie mittels XMCD sehr große MAE (9 meV) realisiert, indem sie Co Atome in einer dreifach koordinierten Geometrie auf einer Pt(111)-Oberfläche adsorbiert haben [132]. Der Symmetriebruch sorgt dabei für die Ausrichtung der Magnetisierung, während die damit verbundene Lokalisierung der d-Elektronen und die starke Spin-Bahn Kopplung des Substrats die Größe der MAE bestimmen [133].

Aufgrund der theoretischen Vorhersagen des magnetischen Moments und der Änderung der Spin-Orbit-Streuzzeit mit der Metallzusatzbedeckung liegt die Vermutung nahe, dass die Kombination der 3d-Übergangsmetalle mit Bismuth ebenfalls große MAE hervorrufen können.

Die im Folgenden vorgestellten Messungen wurden an der X-Treme Beamline [98] (Swiss Light Source, Paul Scherrer Institut) durchgeführt. Die Röntgenspektren werden mit zirkular polarisiertem Licht (c_+ (c_-) rechts- (links-) zirkular polarisiertes Licht) im *Total Electron Yield Modus* (TEY) der $L_{2,3}$ -Kanten von Fe, bzw. Cr mit einem maximalen magnetischen Feld von 6,8 T parallel zur Strahlrichtung bei Proben Temperaturen von etwa 8 K aufgenommen.

Um die Anteile der 3d-Übergangsmetalle vom Hintergrund des Bi(111)-Films zu isolieren, werden zunächst Röntgenspektren des reinen Films um die $L_{3,2}$ -Kanten von Fe und Cr aufgenommen und von den Spektren nach der Abscheidung subtrahiert. Diese Vorgehensweise ist in der Abbildung 7.12 dokumentiert. Aus den Spektren beider Polarisationsrichtungen kann nun das XAS-Spektrum (*White-Line*) gemäß $(c_+ + c_-)/2$ gebildet werden. Von diesem Spektrum wird wegen des Kantensprungs an der L_3 und L_2 Kante eine Stufenfunktion abgezogen. Das XMCD wird anschließend durch Subtraktion von c_+ und c_- erhalten und die den Summenregeln (Gleichung (2.49)(2.48)) entsprechende Integrale können gebildet werden.

Weiterhin wurden Magnetisierungskurven gemessen. Dabei wird die Magnetfeldabhängigkeit der Absorption am L_3 -Maximum des entsprechenden Materials zwischen -6,8 T und 6,8 T gemessen.

7.4.1 Ergebnisse der Summenregeln für Fe und Cr

Die im vorherigen Abschnitt bestimmten Änderungen der Spin-Orbit Streuzeiten bei der Adsorption von 3d-Übergangsmetallen auf einem Bi(111)-Film legen nahe, dass die Atome im adsorbierten Zustand über ein verbleibendes magnetisches Moment

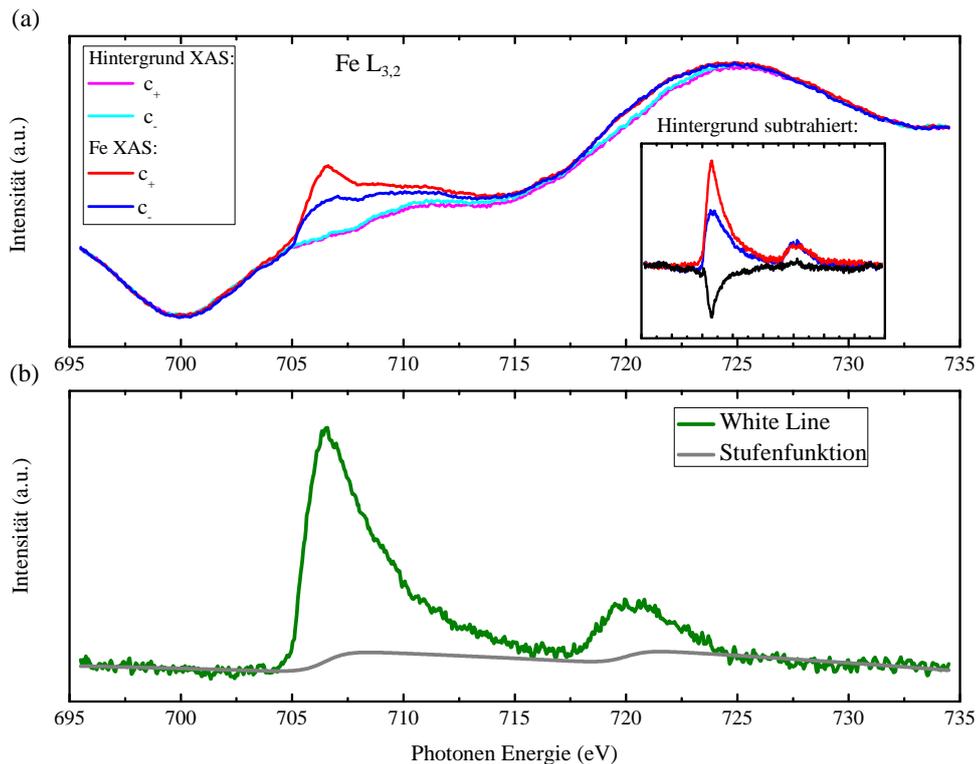


Abbildung 7.12: (a) Absorptionssignal für links-, bzw. rechts-zirkular polarisiertes Licht ($c_{+/-}$) an der Fe $L_{3/2}$ -Kante. Die Hintergrundspektren (hellblau und magenta) werden von den Fe-XAS Spektren subtrahiert, um die Signale der Metalle zu isolieren. (b) White Line Absorption und Stufenfunktion

verfügen. Um dieses zu quantifizieren eignen sich XMCD-Messungen und mithilfe der Summenregeln kann das magnetische Moment bezüglich der Spin- und Bahnkomponente untersucht werden.

Für die Fe Adsorption wurden zwei unterschiedliche Zusatzbedeckungen von 1 % ML und 4 % ML untersucht. Für die Cr-Adsorption gibt es eine Messungen mit einer Zusatzbedeckung von 4 % ML. In der Abbildung 7.13 sind die entsprechenden Spektren für rechts- und links-zirkular polarisiertes Licht (für hohe Zusatzbedeckung) sowie das entsprechende XMCD von Cr ((a) und (b)) und Fe ((c) und (d)) unter normalem (0°) sowie streifendem Einfall (60°) dargestellt.

Bei dem Vergleich von normalem und streifendem Einfall fällt eine starke Anisotropie für beiden Materialien auf. Besonders deutlich wird dies im XMCD-Signal. In beiden Fällen ist die Differenz der Intensitäten unter streifendem Einfall sehr viel kleiner als unter normalem Einfall. Die leichte Richtung der Magnetisierung ist demnach parallel zur Oberflächennormalen (*out-of-plane*). Weiterhin lässt sich ein spektraler Überlapp der $L_{2,3}$ Kanten erkennen, der für Cr sehr deutlich wird. Zudem ist keine ausgeprägte Multiplet Aufspaltung beider Materialien zu erkennen, die im Fall starker Lokalisierung der d-Orbitale zu erwarten wäre [134]. Dies deutet außerdem

darauf hin, dass Hybridisierungseffekte der Metall- und Bismuthorbitale eine Rolle spielen.

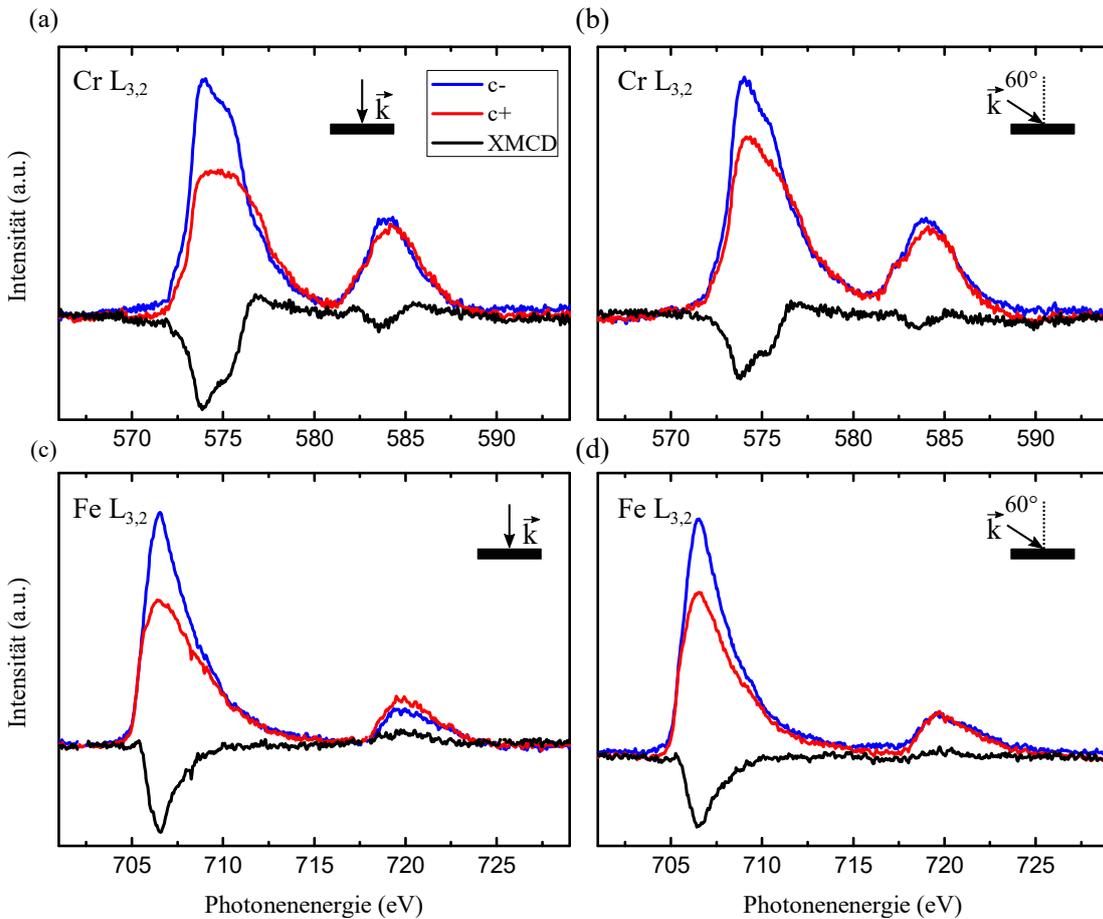


Abbildung 7.13: XAS/XMCD Messungen in einem externen magnetischen Feld der Stärke 6,8 T parallel zum einfallenden Röntgenstrahl der Cr- (a,b) und Fe (c,d) L_{2,3}-Kanten bei normalem- (a,c) und streifendem (b,d) Einfall. Die Zusatzbedeckung der Metalle auf der Bi(111)-Oberfläche beträgt 4 %.

Die Auswertung der Spektren mithilfe der Summenregeln liefern die in der Tabelle 2 gezeigten magnetischen Momente. Interessanterweise werden in allen Messungen endliche Orbitalmomente mit einer *out-of-plane* Anisotropie beobachtet. Da aus Symmetriegründen an den siebenfach koordinierten Adsorptionsplätzen lediglich eine *in-plane* Komponente von m_L erwartet wird [135], ist von einer starken Hybridisierung zwischen den d-Orbitalen der Metalle und Zuständen des Bismuthfilms auszugehen.

Für beide Materialien ergibt sich unter normalem Einfall ein Orbitalmoment m_L von $0,5-0,8 \mu_B^5$, dass beim streifendem Einfall auf etwa die Hälfte reduziert wird. Dies ist konsistent mit der Vorstellung, dass unter streifendem Einfall nur die Projektion $m_L \cdot \cos(60^\circ)$ gemessen wird. Das Orbitalmoment wird also durch die Symmetrie des

⁵ Die Bahn- und Spinmomente der Fe-Messung mit 1% Zusatzbedeckung liegen innerhalb der Fehlergrenzen bei den gleichen Werten wie die 4%-Messung. Die entsprechenden Spektren sind im Anhang in der Abbildung A.11 dargestellt.

Moment	Cr 0°	Cr 60°	Fe 0°	Fe 60°
m_L	$0,5 \pm 0,2$	$0,3 \pm 0,1$	$0,8 \pm 0,2$	$0,5 \pm 0,1$
m_S^{eff}	$1,2 \pm 0,4$	$0,4 \pm 0,1$	$1,8 \pm 0,3$	$1,1 \pm 0,3$
$m_{\text{Bahn,DFT}}$	0,48	0,29	1,00	0,67
$m_{S,DFT}$	4,90	4,89	2,79	2,75
T_z	-0,53	-0,64	-0,14	-0,24

Tabelle 2: Ergebnisse des Bahn- bzw. effektiven Spinmoments m_L und m_S^{eff} durch die Anwendung der entsprechenden Summenregeln auf die gemessenen Spektren für normalen (0°) und streifenden Einfall (60°) in μ_B . Zudem sind die mittels DFT berechneten Werte des Bahn- und Spinmomente sowie die gemäß $T_z=(m_S^{\text{eff}}-m_{S,DFT})/7$ bestimmten magnetischen Dipoloperatoren gezeigt.

Atoms und dessen Umgebung festgelegt und kann nicht durch das magnetische Feld ausgerichtet werden, was zu der beobachteten *out-of-plane* Anisotropie führt. Die Größe der Momente m_L wird zudem durch DFT-Rechnungen komplementiert⁶, wobei eine gute Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment gefunden wird.

Eelbo et al. finden anhand ihrer XMCD-Messungen an Fe/Bi₂Te₃ ebenfalls eine *out-of-plane* Anisotropie, die durch Hybridisierung der Metallorbitale mit dem Substrat hervorgerufen wird [136]. Die Adsorptionsplätze von Fe auf Bi₂Te₃ bei Eelbo et al. sind dabei identisch mit denen auf einer Bismuthoberfläche. Interessanterweise sind die Unterschiede ihrer Summenregelerggebnisse zu denen von Fe/Bi(111) klein ($m_L=1,2 \mu_B$, sodass der Einbaumechanismus und die Erzeugung der magnetischen Momente in beiden Materialien vergleichbar ist).

Die Interpretation der ebenfalls in Tabelle 2 dargestellten effektiven Spinmomente m_S^{eff} ist hingegen komplizierter. Im Experiment wird die Quantisierungsachse für m_S durch das magnetische Feld vorgegeben, wobei die Anisotropie von $m_S^{\text{eff}}=m_S+7T_z$ im magnetischen Dipoloperator T_z enthalten ist, welcher die größten Werte für Einzelaatome an Oberflächen annehmen kann [137, 138].

Für Fe beträgt m_S^{eff} bei 0° $1,8 \mu_B$ und nimmt unter 60° auf $1,1 \mu_B$ ab, während für Cr bei 0° $1,2 \mu_B$ und unter 60° auf $0,4 \mu_B$ beobachtet wird. Die Anisotropie von m_S^{eff} deutet also auf ein endliches T_z hin, sodass die Summenregel das Spinmoment unterschätzt. Der Vergleich zwischen m_S^{eff} und $m_{S,DFT}$ zeigt deutliche Abweichungen beider Werte. Diese werden anhand von $T_z=(m_S^{\text{eff}}-m_{S,DFT})/7$ quantifiziert und sind in der letzten Zeile von Tabelle 2 dargestellt. Der Vergleich von T_z beider Materialien zeigt eine Anisotropie gleicher Größenordnung von etwa $0,1 \mu_B$. Dabei ist T_z für Cr am größten. Dies hängt mit einer weiteren wesentlichen Voraussetzung für die korrekte Beschreibung des Spinmoments über die Summenregel zusammen: Die Spin-Orbit Kernmultiplets $2p_{1/2}$ und $2p_{3/2}$ müssen bei der $2p \rightarrow 3d$ Absorption gute Quantenzahlen sein. Andernfalls führt der spektrale Überlapp der experimentell er-

⁶ Uwe Gerstmann und W. G. Schmidt, Lehrstuhl für theoretische Physik, Universität Paderborn

mittelten $L_{2,3}$ -Kanten zu einem signifikanten Fehler von bis zu 50 % [139, 140]. Dieser Effekt wird größer, je leichter das Element ist [141, 142]. Es ist also nicht auszuschließen, dass T_z für Cr überschätzt wird.

Entgegen der Definition der Winkelabhängigkeit $(3 \cdot \cos^2(\theta) - 1)$ von T_z [137, 138], wird dieses unter streifendem Einfall betragsmäßig größer. Oguchi und Shishidou beschreiben Abweichungen von dieser Winkelabhängigkeit, die von der Stärke der Spin-Bahn-Wechselwirkung des Systems abhängen [138]. Es ist also denkbar dass in Fe/Bi(111), bzw. Cr/Bi(111) die Spin-Bahn-Wechselwirkung ebenfalls eine Rolle spielt und dieses abweichende T_z -Verhalten verursacht. Um diese offenen Fragen schlussendlich zu klären, sind theoretische Berechnungen unerlässlich. Der Prozess ist jedoch zum jetzigen Zeitpunkt noch nicht abgeschlossen.

Zusammenfassend suggeriert der Vergleich der magnetischen Momente aus Experiment und Theorie die Hybridisierung zwischen Metall- und Bismuthorbitalen, die für die Ausbildung des Orbitalmoments m_L verantwortlich ist. Die Größe und Anisotropie des magnetischen Dipoloperators deutet außerdem auf eine starke Spin-Bahn-Wechselwirkung der Atome hin. Diese spielt eine entscheidende Rolle bei der Ausbildung der magnetischen Anisotropieenergie, welche im nächsten Abschnitt anhand von Magnetisierungskurven untersucht wird.

7.4.2 Magnetische Anisotropie

In den Systemen Cr/Bi(111) und Fe/Bi(111) konnte anhand der XMCD Spektren im normalen und streifenden Einfall eine starke *out-of-plane* Magnetisierung sowie ein nicht verschwindendes Orbitalmoment identifiziert werden, sodass auch für diese Systeme hohe MAE erwartet werden. Um die MAE zu bestimmen, wurden Magnetisierungskurven aufgenommen. Dabei wird die Intensität der L_3 -Kante bei Absorption als Funktion des magnetischen Feldes gemessen. In der Abbildung 7.14 (a) ist die Magnetisierungskurve von Cr und in (b) von Fe dargestellt. In beiden Fällen beträgt die Zusatzbedeckung 4 % ML.

Für Cr ist zu erkennen, dass die Kurve für große Magnetfelder sättigt, was auf eine große MAE hindeutet. Für Fe hingegen ist dies nicht zu beobachten. Um eine quantitative Aussage zu treffen, wurden die Messdaten mit dem folgenden Modell angepasst:

$$M = \mathbf{m} \frac{\int_0^{2\pi} d\phi \int_0^\pi d\theta \sin\theta \cos\theta e^{-E/k_B T}}{\int_0^{2\pi} d\phi \int_0^\pi d\theta \sin\theta e^{-E/k_B T}} \quad (7.1)$$

$$E = -\mathbf{m}\mathbf{B} \cos\theta - K(\sin\theta_0 \sin\theta \cos\phi + \cos\theta_0 \cos\theta)^2 \quad (7.2)$$

Dabei ist $\mathbf{m} = \mathbf{m}_L + \mathbf{m}_S$ das gesamte magnetische Moment eines einzelnen Atoms, K die magnetische Anisotropieenergie, ϕ und θ die Azimutal- und Polerkoordinaten des

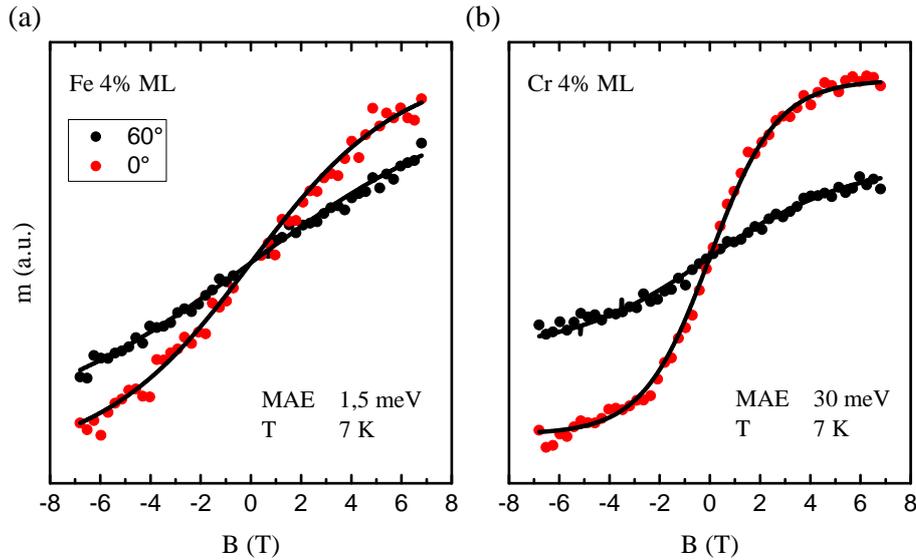


Abbildung 7.14: (a) Magnetisierungskurven für Fe/Bi(111) bei einer Zusatzbedeckung von 4 % ML, gemessen an der L_3 -Kante unter normalem Einfall (rote Punkte) und streifendem Einfall (schwarze Punkte). Die Anpassung des Modells (7.1) ist durch die schwarzen durchgezogenen Linien dargestellt und liefert die MAE. (b) Magnetisierungskurven für Cr bei einer Zusatzbedeckung von 4 % ML.

magnetischen Moments und θ_0 definiert die leichte Magnetisierungsrichtung [132]. Die MAE von Cr/Bi(111) beträgt 30 meV/Atom und für Fe/Bi(111) 1,5 meV/Atom. Bei gleicher Bedeckung ist die MAE von Cr also um einen Faktor 20 größer als die von Fe. Für Fe ist die Energie vergleichbar mit der von Eeblo et al. auf Bi_2Te_3 gefundenen (4 meV), was wiederum auf die Ähnlichkeit beider Systeme zurückzuführen ist.

Die außerordentlich große MAE des Cr deutet auf eine im Vergleich zum Fe größere Spin-Bahn-Wechselwirkung des Gesamtsystems hin, welche bereits im vorherigen Abschnitt durch große magnetische Dipolmomente motiviert wurde. Ein Vergleich mit der Theorie ist auch für die MAE in naher Zukunft geplant.

7.5 EINFLUSS DER MAGNETISCHEN MOMENTE AUF DIE LADUNGSTRÄGERSTREUUNG

Es hat sich herausgestellt, dass die 3d-Übergangsmetalle einen lokalen Bruch der \mathcal{T} -Symmetrie bewirken. Dies ist eng verknüpft mit den magnetischen Eigenschaften, da die Streuung an den induzierten Störstellen die spinabhängigen Auswahlregeln aufheben, was sich in einem Anstieg der Spin-Bahn-Streuzeit τ_{s_0} und einer Abnahme der elastischen Streuzeit τ_0 äußert (vgl. Abschnitt 7.3.2). Da sich die Bahn- und Spinmomente (m_L und m_S) der einzelnen Adsorbate deutlich unterscheiden, liegt die

Vermutung nahe, dass die Größe der magnetischen Momente mit der Änderung der Streuzeiten korreliert.

Bei der Zunahme von τ_{so} ist die Spinkomponente des gestreuten Ladungsträgers die bestimmende Größe beim Übergang von WAL zu WL mit zunehmender Adsorbatkonzentration. Diese wird vom Spinmoment des Adsorbataatoms zufällig geändert, sodass beide Größen miteinander korrelieren sollten. Um dies zu überprüfen wird die Änderung der Spin-Orbit-Streuzeit $d\tau_{so}/d\delta\theta$ gegen das Spinmoment m_S aufgetragen. Das Ergebnis ist in der Abbildung 7.15 dargestellt. Die Spinmomente stammen dabei aus DFT-Rechnungen. Es wird eine überzeugende Proportionalität zwischen beiden Größen beobachtet, sodass sich schlussfolgern lässt: Je größer das Spinmoment m_S des eingebauten Streuers, desto stärker wird die \mathcal{T} -Symmetrie beeinflusst.

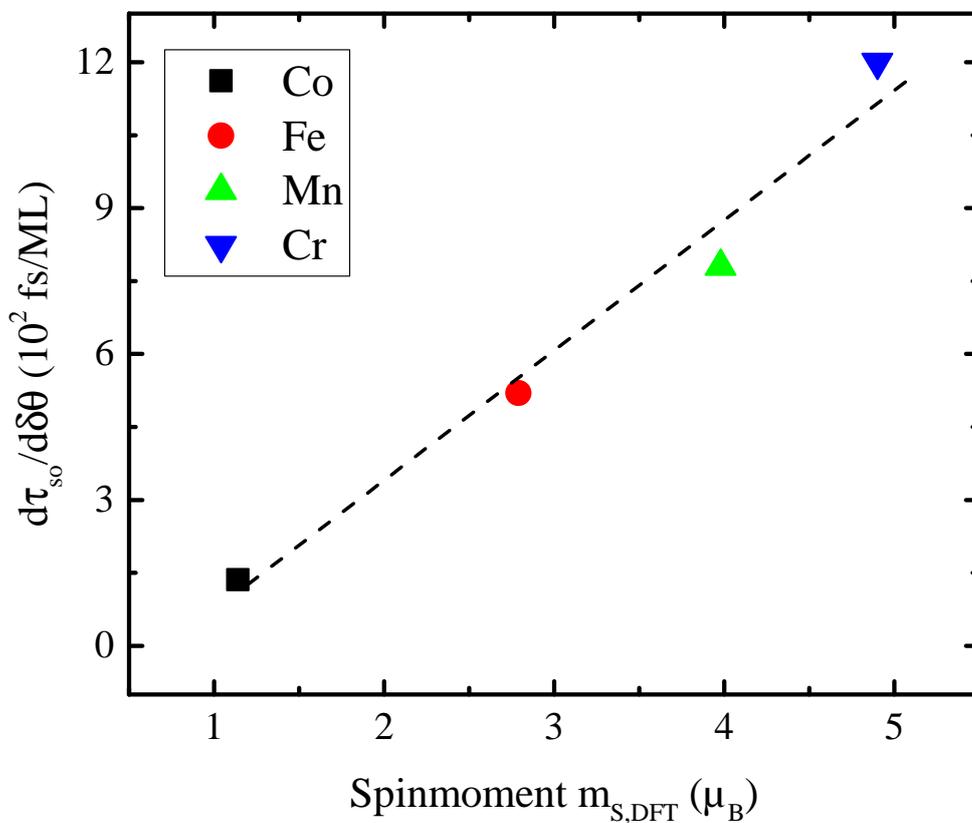


Abbildung 7.15: Die Änderung der Spin-Orbit-Streuzeit mit der Zusatzbedeckung $d\tau_{so}/d\delta\theta$ als Funktion des Spinmoments. Hier ist deutlich zu erkennen: Der Bruch der TR-Symmetrie ist effektiver, je größer $m_{S,DFT}$ des Atoms im adsorbiertem Zustand ist. Hierbei wird eine überzeugende Korrelation beobachtet.

Die elastische Streuzeit τ_0 , welche die Wahrscheinlichkeit zur konstruktiven Überlagerung der Ladungsträgerwellenfunktionen bei einem Rückstreuprozess beschreibt, zeigt für alle untersuchten Adsorbate eine abnehmende Tendenz. In diesem Fall spielt nicht die Richtung des Spins, sondern der Streuquerschnitt des Adsorbataatoms die

entscheidende Rolle. Demnach bietet sich das Bahnmoment m_L als Vergleichsgröße an. Im klassischen Sinn betrachtet, bedeutet ein größeres Bahnmoment einen größeren Radius oder eine höhere Umlauffrequenz ($\vec{L} = m r^2 \vec{\omega}$). Damit kann sich bei größer werdendem Orbitalmoment auch der Streuquerschnitt erhöhen. Um diesen Zusammenhang zu überprüfen, werden die Änderungen der elastischen Streuzeiten mit zunehmender Zusatzbedeckung aufgetragen. Dies ist in der Abbildung 7.16 dargestellt.

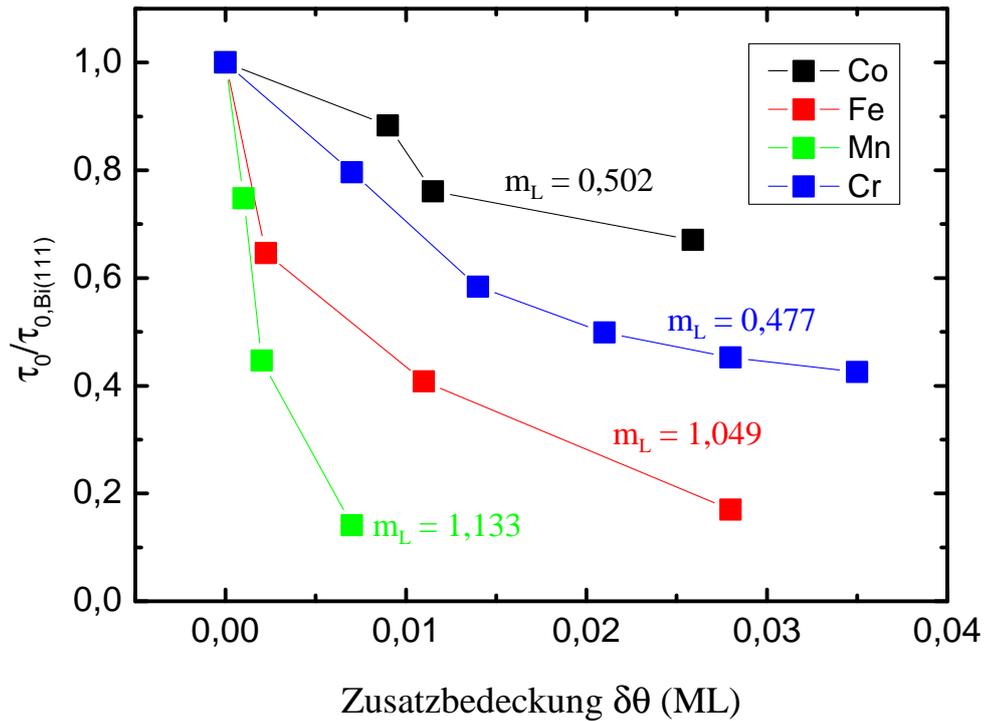


Abbildung 7.16: Änderung der elastischen Streuzeiten τ_0 , normiert auf die Ausgangsstreuzeit bei Adsorption von Co, Fe, Mn und Cr.

Es ist zu erkennen, dass die Abnahme der elastischen Streuzeit adsorbatabhängig ist. Zusätzlich sind die Orbitalmomente m_L eingetragen. Diese wurden ebenfalls aus DFT-Rechnungen bestimmt und konnten im vorherigen Abschnitt für Fe und Cr experimentell verifiziert werden (vgl. 4.4). Bei dem Vergleich zeigt sich: Je größer m_L , desto stärker wird die elastische Streuzeit beeinflusst.

ZUSAMMENFASSUNG

Die Konsequenzen der Adsorption der 3d Übergangsmetalle auf der Bismuthoberfläche wurden mithilfe bedeckungs- und magnetfeldabhängiger Messungen untersucht. Die Zusatzbedeckungsabhängigkeit zeigt neben der starken Ladungsträgerstreuung an den Adsorptionsplätzen eine Zunahme des Leitwerts durch den Ladungsübertag zwischen Adsorbatom und Bismuthoberfläche. Die Abnahme des Leitwerts nach vollständiger Störung des Oberflächenzustands auf etwa 50 % ist ein Zeichen für die Existenz des Grenzflächenzustandes.

Die Analyse von MLW und Hall-Widerstand quantifizieren die Abnahme des Leitwerts durch Streuung mit einer Abnahme der Ladungsträgerbeweglichkeiten um bis zu 50 % bei kleinsten Zusatzbedeckungen. Weiterhin wird ein Anstieg der Löcherkonzentration bei Adsorption beobachtet. Dieser sorgt für eine Verschiebung des chemischen Potentials. Bei der Adsorption von Cr und Mn führt dies zu Extremstellen im $G(\delta\theta)$ -Verlauf, an denen der sprunghafter Anstieg von p um $4 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ beobachtet wird. Dieser Sprung kann mit dem Durchstoßen der Fermi-Kante eines Valenzbandes identifiziert werden und überkompensiert die Abnahme des Leitwerts durch zusätzliche Störstellenstreuung. Die Analyse der kohärent gestreuten Ladungsträger zeigt den Bruch der \mathcal{T} -Symmetrie bei Adsorption der 3d-Übergangsmetalle über eine Entwicklung des Streumechanismus von WAL zu WL. Die Stärke des Symmetriebruchs ist dabei proportional zur Größe des magnetischen Moments des Adsorbates.

XMCD Messungen der Systeme Cr/Bi(111) und Fe/Bi(111) wurden durchgeführt, um einen Einblick in die Größe der verbleibenden magnetischen Momente der Adsorbate zu erhalten. Die Messungen zeigen eine *out-of-plan* Anisotropie, die über die Hybridisierung zwischen den 3d-Metall- und Bismuthorbitalen begründet wird. Zudem zeigen die magnetischen Dipolmomente, die über den Vergleich von Spinmoment Summenregel und DFT-berechneten Spinmomenten empirisch bestimmt wurden, eine interessante Anisotropie, die nur im Fall starker Spin-Bahn-Wechselwirkung verstanden werden kann. Diese beiden Bausteine führen zu einer vergleichsweise großen magnetischen Anisotropieenergie, die anhand von Magnetisierungskurven untersucht wurden.

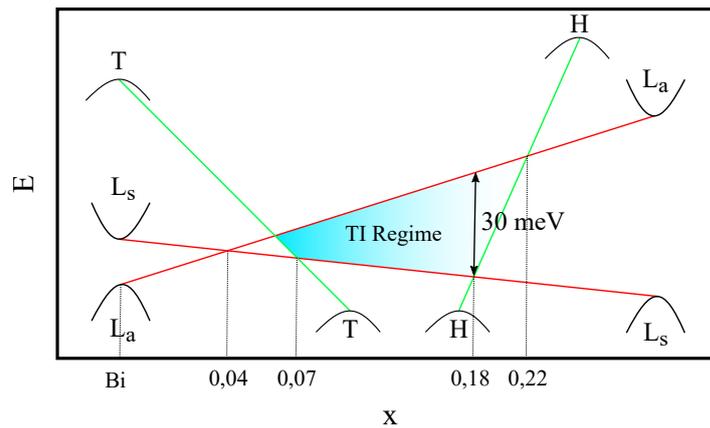
Diese vorläufige Interpretation wird in Zukunft durch die theoretische Bestimmung der magnetischen Dipolmomente und magnetischen Anisotropieenergien erweitert, sodass der Mechanismus vollständig verstanden werden kann. Zuletzt konnten die magnetischen Eigenschaften der einzelnen Atome mit den Transportergebnissen in Einklang gebracht werden. Hierbei hat sich herausgestellt, dass die Größe des Spinmoments m_s direkt mit der Effektivität des Bruchs der \mathcal{T} -Symmetrie korreliert. Die Größe des Bahnmoments ist hingegen proportional zum Streuquerschnitt des Atoms, wie dessen Vergleich mit den elastischen Streuzeiten τ_0 aufdecken konnte.

Die in diesem Kapitel vorgestellten Messungen an $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ -Filmen wurden in Zusammenarbeit mit Julian Koch im Rahmen seiner Masterarbeit erstellt und sind bereits teilweise in [143] veröffentlicht.

Der experimentelle Nachweis des Quanten-Spin-Hall-Effekts in HgTe-Filmen [25] hat eine Vielzahl wissenschaftlicher Untersuchungen auf dem Gebiet des spinpolarisierten Stromtransports ausgelöst. Auf der Suche nach 3D TIs, gelang Hsieh et al. die erste experimentelle Realisierung mit $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ [26], kurz nach der theoretischen Vorhersage von Fu und Kane [27]. Topologische Isolatoren (TI) sind aufgrund ihrer helikalen Spinpolarisation der Oberflächenzustände von großem wissenschaftlichen Interesse und eine Vielzahl von Materialsystemen (Bi_2Se_3 , Bi_2Te_3 , Sb_2Te_3), die als topologische Isolatoren der zweiten Generation bezeichnet werden, wurden untersucht. Diese Verbindungen leiden jedoch unter großen Defektdichten, die zu leitenden Volumenzuständen und einer niedrigen Ladungsträgerbeweglichkeit im Oberflächenzustand führen.

Unter diesen Umständen stellt das epitaktische Wachstum von TI-Schichten eine vielversprechende Alternative dar [28–30]. Durch diese Technik wird sowohl das Wachstum dünner Schichten mit hochqualitativer Kristallinität, als auch die Untersuchung der Bandstruktur durch den QSE erlaubt [31]. Im Gegensatz zu geschnittenen Volumenkristallen, bei denen es zu undefinierter Terminierung der Oberfläche kommen kann [32, 33], führt die Kontrolle von Stöchiometrie und Morphologie beim epitaktischen Wachstum zu wohldefinierten Oberflächen.

Die Beurteilung des topologisch nicht trivialen Charakters von $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ Volumenkristallen erfolgte in den ersten ARPES-Messungen anhand von fünf Schnittpunkten von drei Oberflächenbändern mit dem Fermi-Level [26]. In jüngsten hochauflösenden ARPES-Experimenten wurde diese Interpretation von Benia et al. durch die Beobachtung von nur zwei Oberflächenbändern widerlegt [34] und ist konsistent mit den theoretischen Vorhersagen [27]. Die Identifizierung des dritten Oberflächenbandes als defektinduzierten Volumenkanal bekräftigt die Fertigung dieses Systems durch Epitaxie. $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ ist dabei nicht zuletzt aufgrund der zu erwartenden Beweglichkeiten von $10^4 \text{ cm}^2\text{Vs}^{-1}$ [35], sondern auch wegen der Variabilität, ein triviales Halbmetall als Funktion der Antimonkonzentration in einen nicht trivialen Zustand zu versetzen (vgl. Abbildung 8.1), attraktiv [27, 34, 36].

Abbildung 8.1: Phasendiagramm von $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$

Transportmessungen epitaktischer dünner Schichten ermöglichen zudem schichtdickenabhängige Untersuchungen des Übergangs zwischen dem dreidimensionalen topologischen Isolator und dem zweidimensionalen Limit [37–39] sowie den Einfluss des QSE auf die Aufspaltung der Volumenzustände [31].

8.1 TEMPERATURABHÄNGIGKEIT ULTRA-DÜNNER $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ -FILME

In diesem Abschnitt werden temperaturabhängige Messungen des Leitwerts ultradünner $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ -Filme in Abhängigkeit von der Schichtdicke und der Sb-Konzentration x vorgestellt. Hierbei wird ein erster Eindruck der zugrundeliegenden Transportkanäle in den Mischfilmen gewonnen.

8.1.1 Volumen und Oberflächenbeiträge

In der Abbildung 8.2 (a) ist die temperaturabhängige Änderung des Leitwerts für verschieden dicke $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ -Filme dargestellt. Die Sb-Konzentrationen x des 20-, 40- und 60-BL-Films variieren dabei leicht und betragen $x=0,17$, $x=0,15$ bzw. $x=0,19$. Verglichen mit den zuvor vorgestellten $G(T)$ -Verläufen dünner Bismuthfilme (vgl. Abschnitt 6.1 Abbildung 6.2 (a)), zeigen die Messungen an den TI-Filmen Gemeinsamkeiten. Für sehr tiefe Temperaturen wird eine metallische Abnahme des Leitwerts als Funktion der Temperatur beobachtet. Auch der aktivierte Anteil des Transports bei höheren Temperaturen, der mit zunehmender Schichtdicke ausgeprägter erscheint, wird für alle drei Filme beobachtet. Außerdem nimmt der Leitwert $G(11\text{ K})$ ebenfalls als Funktion der Schichtdicke zu¹. Zusätzlich zu diesen Merkmalen ist ein deutlicher Unterschied zum $G(T)$ -Verlauf der Bismuthfilme bei etwa 30 K sichtbar. Der Leitwert der

¹ Der Leitwert $G(11\text{ K})$ nimmt als Funktion der Sb-Konzentration zu. Diese Ergebnisse werden in Abschnitt 8.1.3 präsentiert. Jedoch ist diese Änderung für den hier untersuchten Konzentrationsbereich $0,15 < x < 0,19$ kleiner als 5%, sodass der Einfluss der Schichtdicke dominiert.

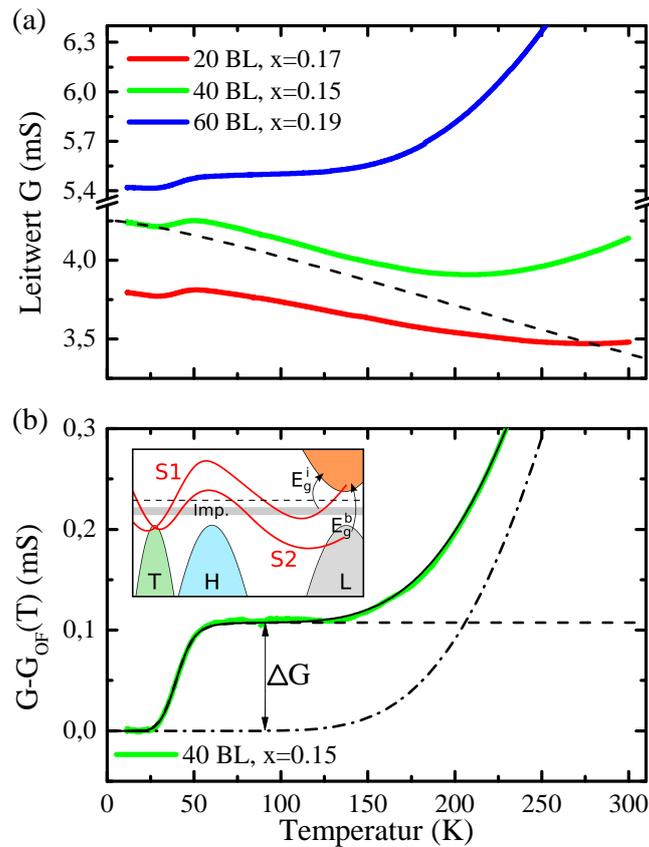


Abbildung 8.2: (a) Leitwert G als Funktion der Temperatur T für verschieden dicke $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ -Filme. Die gestrichelte Linie zeigt den Beitrag des Oberflächenzustandes für den 40 BL Film. (b) Leitwert des 40 BL Films als Funktion der Temperatur nach der Subtraktion des OF-Anteils. Die gestrichelte- bzw. gestrichelt-gepunktete Linie sind die Anpassungen des Modells, charakterisiert durch die thermischen Aktivierungen des *Impurity*-Bands E_g^i und der Volumenbänder E_g^b . Inset: Schematische Darstellung der elektronischen Bandstruktur nach [34] mit hinzugefügtem *Impurity*-Band (Imp.).

Mischfilme steigt ab dieser Temperatur um etwa 0,1 mS, um anschließend den zuvor gezeigten Verlauf fortzusetzen.

Um die Messkurven zu beschreiben wird das Modell aus Kapitel 6.1 um einen aktivierten Beitrag $G_I(T)$, der durch Ladungsträger aus Störstellen hervorgerufen wird [144], erweitert :

$$\begin{aligned} G(T) &= G_{\text{OF}}(T) + G_{\text{Vol}}(T) + G_I(T) \\ &= \frac{1}{1/g_0 + aT^m} + g_1 \cdot \exp\left(-\frac{E_g^b}{2k_B T}\right) \\ &\quad + 2\Delta G \left[1 + \left(1 + 4cT^{-3/2} \exp\left(\frac{E_g^i}{2k_B T}\right) \right)^{1/2} \right] \end{aligned} \quad (8.1)$$

$G_{\text{OF}}(T)$ beschreibt den metallischen Transport des Oberflächenkanals und $G_{\text{Vol}}(T)$ den aktivierten Beitrag des Volumens mit der Bandlücke E_g^b . Der zusätzliche aktivierte Beitrag $G_I(T)$ wird durch eine weitere Energielücke E_g^i und den Anstieg des Leitwerts ΔG charakterisiert. Die Parameter a , g_1 und c sind Konstanten. In der Abbildung 8.2 (b) ist ein exemplarischer Fit des Modells an die Messung des 40 BL Films nach Abzug des metallischen Beitrags dargestellt. Die Übereinstimmung ist sehr zufriedenstellend.

Der Ursprung des aktivierten Beitrags um $T=30$ K wird in der Literatur der thermischen Aktivierung von Volumenladungsträgern² in Kanäle des Leitungsbandes zugeschrieben [36, 145–149]. Diese Interpretation scheint nicht nur bei einem Vergleich mit den Bismuth-Daten aus Kapitel 6.1, sondern auch aufgrund der Tatsache, dass dieser Beitrag keine Schichtdickenabhängigkeit aufweist, höchst unwahrscheinlich. Vielmehr wird die thermische Aktivierung zwischen Volumenvaleanz- und Leitungsbändern dem Beitrag bei höheren Temperaturen zugeordnet, sodass der Ursprung von $G_I(T)$ ein anderer ist. Lenoir et al. beobachten diesen Beitrag in ihrer Studie über $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ -Kristalle, welcher als Funktion der Sb-Konzentration größer wird und interpretieren dies als ein Störstellenband mit einem Überlapp zum fundamentalen Volumenleitungsband [36]. Die kleinen effektiven Massen und die große dielektrische Konstante des Mischfilms führen zu kleinen Ionisierungsenergien (~ 10 μeV) und großen Bohr-Radien ($a_B \sim 500$ nm). Der große Bohr-Radius führt bereits bei kleinen Störstellenkonzentrationen n_{St} zur Bildung des Störstellenbands [150]. Der Leitwert von Bismuthfilmen zeigt unter Beimischung von Pb, Sn, Zn oder In ein ähnliches Verhalten [151]. Außerdem spielt das Störstellenband in dünnen $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ -Filmen und nanostrukturierten Proben eine wichtige Rolle [145, 148].

Die aus den Anpassungen erhaltenen Energielücken betragen $E_g^i = 38 \pm 3$ meV und sind im Vergleich zu theoretischen Rechnungen der Bandlücke im Sinne des QSE von Tang und Dresselhaus [31] zu klein, um einer solchen Anregung zu entsprechen. Der Anstieg des Leitwerts $\Delta G = 0,1 \pm 0,01$ μS ist außerdem für alle untersuchten Schichtdicken etwa gleich und zeigt keine Abhängigkeit von der Oberflächenstruktur

² In diesem Kapitel wird in Konsistenz zur gängigen Literatur von Volumenbeiträgen gesprochen, obwohl die Bezeichnung quantisierte Valenzbandzustände bei dem untersuchten Schichtdickenbereich korrekt wäre.

(vgl. Kapitel 5). Aus diesen Gründen liegt es nahe, dass der aktivierte Beitrag bei tiefen Temperaturen volumenartigen Charakter aufweist und eine Konsequenz der Beimischung von Antimon in die Bismuthmatrix ist.

Der aktivierte Beitrag bei hohen Temperaturen hingegen zeigt eine klare Schichtdickenabhängigkeit. Die Bandlücken E_g^b des 20-, 40- und 60 BL Films betragen 280 ± 70 , 200 ± 20 , bzw. 160 ± 10 meV. Diese sind umgekehrt proportional zur Schichtdicke d und zeigen einen Zusammenhang von $E_g^b \propto d^{-0,61}$. Im Sinne eines QSE werden Exponenten zwischen -1 und -2, für ein parabolisches bzw. Kastenpotential an den Grenzflächen erwartet, sodass der hier gefundene Wert von -0,61 durch dieses einfache Bild nicht zu beschreiben ist. Der Exponent des QSE der ultra-dünnen Bismuthfilme beträgt -1 (vgl. Kapitel 6.1) und in der Literatur finden sich weitere vom Idealfall abweichende Beispiele [107, 108]. Mögliche Erklärungen für dieses Verhalten sind die Abweichung der Potentialform an den Grenzflächen vom idealen Kastenpotential sowie die Tatsache, dass die Bandlücke dieser Filme selbst eine Temperaturabhängigkeit aufweist [31], die mit dem verwendeten Modell nicht erfasst wird.

8.1.2 Dominanz des Oberflächenzustands

In der Abbildung 8.3 (a) sind die Leitwerte $G(11\text{ K})$ der 20-, 40- und 60 BL Filme dargestellt. Bei dieser Temperatur wird der metallische Beitrag in den $G(T)$ -Verläufen beobachtet, sodass der Oberflächenzustand dominant gegenüber den Volumenbeiträgen ist. Ähnlich wie bei dünnen Bismuthfilmen (vgl. Abbildung 6.2 (f)) nimmt der Leitwert mit der Schichtdicke der $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ -Filme zu, sodass auch bei tiefen Temperaturen Transport durch Volumenzustände zu erwarten ist. Die Änderung von $\Delta G(11\text{ K})$ zwischen dem 20 BL Film ($G(11\text{ K}) = 3,9\text{ mS}$) und dem 60 BL Film ($G(11\text{ K}) = 5,5\text{ mS}$) beträgt lediglich $1,6\text{ mS}$. Dies entspricht einer Änderung von etwa $40\text{ }\mu\text{S/BL}$ und ist damit etwas größer als die für dünne Bismuthfilme beobachtete Änderung von etwa $30\text{ }\mu\text{S/BL}$ (vgl. Kapitel 6.1), zeigt aber, dass Volumenbeiträge präsent, wenn auch sehr klein sind. Sehr wahrscheinlich werden diese Volumenkanäle durch *Hopping*-Prozesse der Ladungsträger über Defekte wie z. B. stoichiometrische Unordnung des Mischfilms oder kristallographische Defekte aufgrund der Gitterfehlpassung zum Siliziumsubstrat erreicht. Die erhöhte Unordnung des Mischfilms im Vergleich zum reinen System spiegelt sich demnach auch in der größeren Änderung $\Delta G(11\text{ K})$ wider.

Um den Beitrag des Volumens zu quantifizieren wurde eine 10 BL dicke $\text{Bi}_{0,84}\text{Sb}_{0,16}$ -Pufferschicht auf dem Siliziumsubstrat gewachsen und ausgeheilt. Anschließend wurde ein homoepitaktischer Film bei einer Substrattemperatur von 11 K gewachsen und parallel der Leitwert der Schicht aufgenommen. Unter diesen Wachstumsbedingungen ist die Qualität des Films schlecht, sodass keine Beugungsreflexe bei einer LEED-Messung auftauchen. Der Anstieg des Leitwerts während des Wachstums als Funktion der Schichtdicke ist in der Abbildung 8.3 (b) dargestellt. Die Änderung

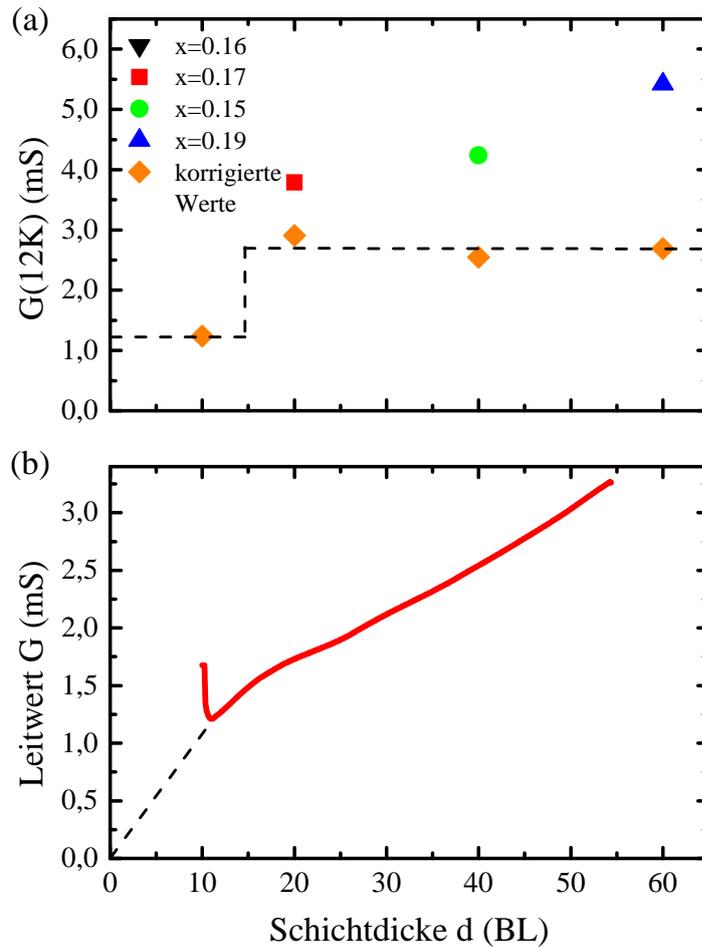


Abbildung 8.3: (a) Leitwert $G(11\text{ K})$ vs. Schichtdicke d . Die korrigierten Werte zeigen den Beitrag des Oberflächenzustands nach Abzug der Volumenbeiträge. (b) Leitwert beim Wachstum eines $\text{Bi}_{0,84}\text{Sb}_{0,16}$ -Films als Funktion der Schichtdicke bei einer Substrattemperatur von 11 K . Die anfängliche Abnahme des Leitwerts wird durch die Störung des Oberflächenzustands bei Adsorption hervorgerufen. Die gestrichelte Linie skizziert die Volumenbeiträge bei Filmdicken unter 10 BL , die in diesem Regime etwa doppelt so groß sind.

des Leitwerts mit der Schichtdicke beträgt in diesem Fall $\Delta G(11\text{ K}) = 0,44\ \mu\text{S}/\text{BL}$ und ist vergleichbar mit dem zuvor ermittelten Wert. Weiterhin ist der Leitwert während der gesamten Messung deutlich kleiner als die in der Abbildung 8.3 (a) gezeigten, sodass die Ausbildung eines langreichweitig geordneten Oberflächenzustandes während dieser Messung sehr unwahrscheinlich ist. Mit diesem Volumenbeitrag können die $G(11\text{ K})$ Werte aus (a) korrigiert werden. Dies wird durch die korrigierten Werte (orange Raute) dargestellt, die nun für $20\text{--}60\text{ BL}$ einen nahezu konstanten Wert von $2,8\text{ mS}$ annehmen und somit den Beitrag des Oberflächenzu-

standes preisgeben. Die Leitfähigkeit des Oberflächenzustands beträgt damit $\sigma_{\text{OF}} = \ln(2)/\pi \cdot G_{\text{OF}} \sim 0,62 \text{ mS/sq.}$ und ist etwas geringer als die für die reinen Bismuthfilme gleicher Schichtdicke festgestellten. Der Grund dafür ist die Absenkung der Ladungsträgerbeweglichkeiten aufgrund der Beimischung von Antimon und der damit verbundenen erhöhten Potentialstreuung (vgl. 8.2). Zuletzt soll der unterproportional kleine Leitwert $G(11\text{K})$ des 10 BL Films diskutiert werden. Obwohl das LEED-Beugungsbild eine im Vergleich mit den dickeren Filmen ähnliche Oberflächenqualität suggeriert (vgl. Abbildung 5.2), ist doch der Beitrag des Störstellenbandes ΔG etwa doppelt so groß ($\sim 0,18 \text{ mS}$, siehe Abbildung 8.4 (b)). Unter der Annahme, dass der Wachstumsprozess der $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ -Filme eine ähnliche allotropische Phasentransformation wie bei $\text{Bi}(111)$ -Filmen aufweist [40], ist davon auszugehen, dass die Defektdichte im Volumen nahe der Grenzschicht erhöht ist.

Trotz dessen sollte der metallische Oberflächenkanal, begründet durch die LEED-Messung, im Temperaturverlauf des Leitwerts auftauchen. In der Abbildung 8.4 (a) ist der $G(T)$ -Verlauf des 10 BL Films und eines vergleichbar dicken $\text{Bi}(111)$ -Films dargestellt. Der Bismuthfilm zeigt auch bei diesen Schichtdicken einen metallischen Beitrag [8, 9], wohingegen beim $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ -Film der aktivierte Kanal dominiert. Dies kann durch den fundamentalen Unterschied beider Materialien erklärt werden. Bei topologisch nicht trivialen Materialien kann es durch die Hybridisierung des Oberflächen- und Grenzflächenzustands zu der Öffnung einer Bandlücke innerhalb des Oberflächenzustandes kommen. Damit beide Zustände überlappen können, muss der Film hinreichend dünn sein. Landolt et al. zeigen die Hybridisierung der Zustände von dünnen Bi_2Se_3 Filmen anhand von ARPES-Messungen bei Schichtdicken zwischen 5 und 6 Quintupellagen [152]. Taksin et al. interpretieren das Fehlen des metallischen Transports für dünne Bi_2Se_3 Filme $<4 \text{ nm}$ ebenfalls durch diese Hybridisierung. Die Beobachtungen für den 10 BL dicken Film sind also ein erster Hinweis auf die topologisch nicht triviale Natur der hier untersuchten Systeme. Bei Bismuthfilmen existiert ebenfalls eine Kopplung zwischen Grenzflächen- und Oberflächenzustand in ultradünnen Filmen. Die triviale Topologie führt bei diesen Filmen allerdings nicht zur Ausbildung einer Bandlücke bei einer Kopplung beider Zustände, da dies in den Transportmessungen der dünnsten Bismuthfilme eine merkliche Abnahme des Leitwerts mit sich ziehen müsste (vgl. Abschnitt 6.1).

8.1.3 Einfluss der Antimonkonzentration x

In Abbildung 8.5 sind die temperaturabhängigen Leitwerte für 20 BL dicke $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ -Filme mit verschiedener Sb-Konzentration x dargestellt. Zum Vergleich ist eine Messung eines 20 BL dicken Bismuthfilms hinzugefügt. Alle Filme zeigen einen qualitativ ähnlichen Verlauf, wobei der reine Bismuthfilm den aktivierten Beitrag $G_I(T)$ um 30 K nicht aufweist (vgl. 6.2). Der dominante Oberflächenzustand, charakterisiert durch den metallischen Beitrag bei tiefen Temperaturen, ist jedoch in allen Filmen

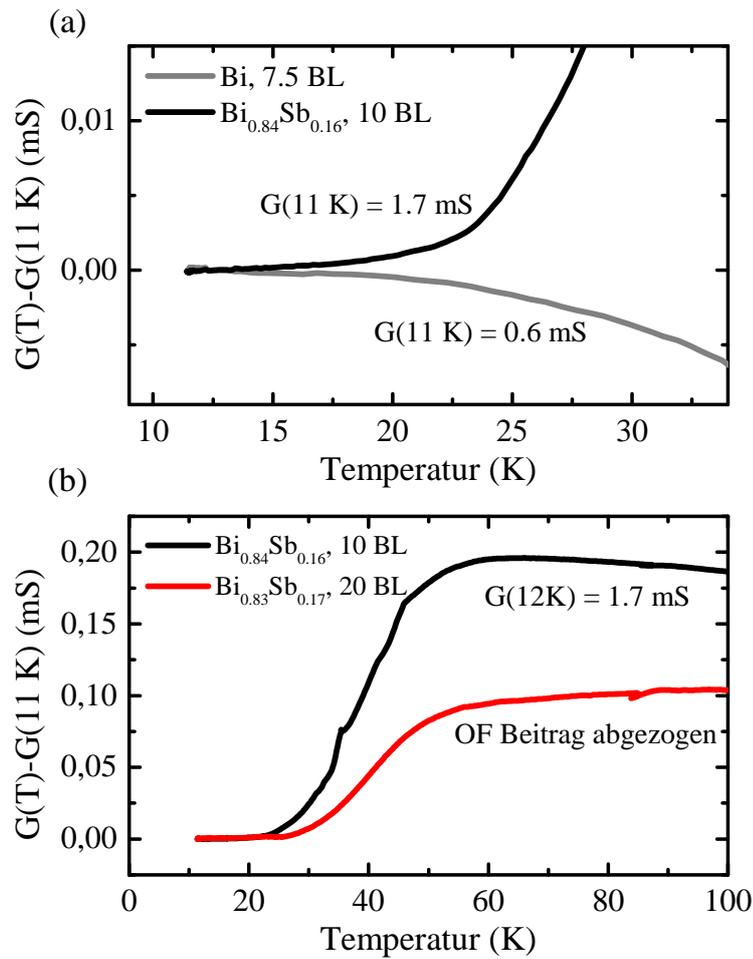


Abbildung 8.4: (a) Änderung des Leitwerts eines 10 BL dicken $\text{Bi}_{0,84}\text{Sb}_{0,16}$ -Films und eines 7,5 BL dicken $\text{Bi}(111)$ -Films. Die metallische Signatur ist im Mischfilm verschwunden, während sie bei einem vergleichbar dicken Bismuthfilm vorhanden ist. (b) Vergleich von ΔG des 10 BL dicken Films mit einem 20 BL Film (Der Oberflächenbeitrag wurde abgezogen). Der Beitrag $G_1(T)$ ist für den dünnen Film etwa doppelt so groß.

vorhanden. Es ist zu erkennen, dass der Leitwert $G(11 \text{ K})$ der Mischfilme mit steigendem x zunimmt, wobei der Leitwert des reinen Films am größten ist. Es ergibt sich damit eine klare Abhängigkeit des Leitwerts $G(11 \text{ K}, x)$: $G(11 \text{ K}, 0) > G(11 \text{ K}, 0,22) > G(11 \text{ K}, 0,17) > G(11 \text{ K}, 0,14) > G(11 \text{ K}, 0,13)$.

Dies ist dahingehend zu verstehen, dass durch die Legierung die kristalline Ordnung und damit die Beweglichkeiten abnehmen (vgl. Abschnitt 8.2), jedoch die Füllung der Oberflächenbänder überproportional zunimmt und mit steigender Sb-Konzentration der Leitwert graduell größer wird. Dies konnten auch Bandstruktur-Messungen mittels ARPES von Benia et al. bestätigen. Der Fermi-Wellenvektor k_F bei $\bar{\Gamma}$

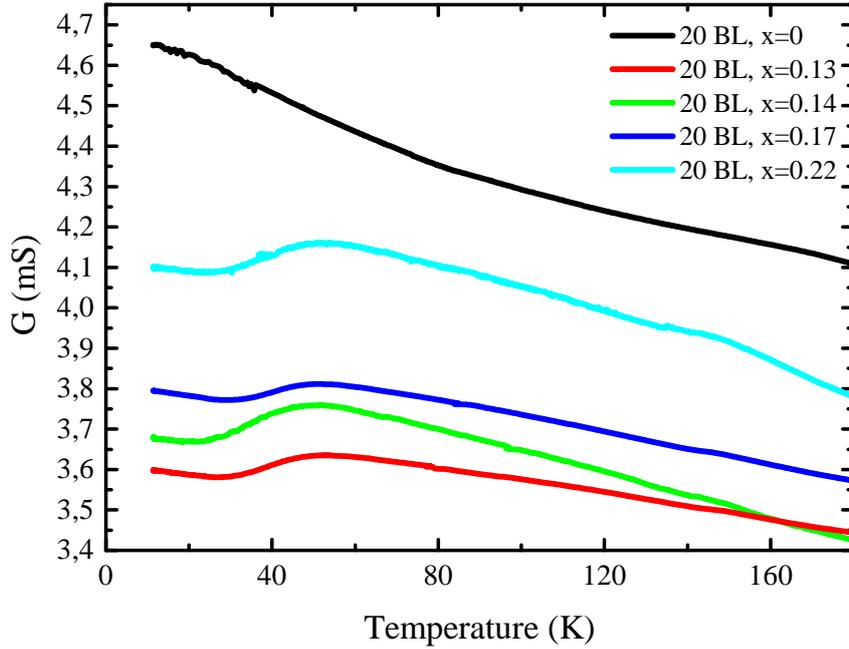


Abbildung 8.5: Änderung des Temperaturabhängigkeit des Leitwerts für 20 BL dicke $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ -Filme als Funktion der Sb-Konzentration x . Mit zunehmendem x steigt der Leitwert der Filme an.

nimmt um ca. 23 % mit zunehmender Sb-Konzentration von $x = 0$ bis $x = 0,25$ isotropisch zu. Als Konsequenz nimmt die Ladungsträgerkonzentration um fast 50 % zu. Zusätzlich wird eine dem überlagerte Abnahme der Ladungsträgerkonzentration um \bar{M} beobachtet, sodass sich eine komplexe Abhängigkeit zwischen Änderung von Ladungsträgerkonzentration und -beweglichkeiten ergibt. Mittels Magnetotransportmessungen, vorgestellt im nächsten Abschnitt, wird ein erster Einblick in diesen Zusammenhang gewährt.

Die Auswertung der $G(T)$ -Messungen in Bezug auf E_g^i zeigen zudem keine klare Abhängigkeit von der Schichtdicke mit Werten um 37 ± 7 meV. Dies unterstützt die Schlussfolgerung in Bezug auf die QSE-induzierte Bandlücke durch den Beitrag E_g^b bei hohen Temperaturen.

8.2 MAGNETOTRANSPORT IN DÜNNEN $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ FILMEN

In diesem Abschnitt werden die Magnetotransport- und Hall-Messungen ultra-dünner $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ -Filme vorgestellt. Dazu wird einerseits der Einfluss der Sb-Konzentration x auf die Streuung der Ladungsträger sowie deren Konzentrationen vorgestellt, um die Beobachtungen aus den vorherigen Abschnitten zu überprüfen. Andererseits kann die Analyse der kohärenten Streuung einen Einblick in die Streumechanismen

geben und anhand dessen die Nichttrivialität der untersuchten Systeme beurteilt werden. Es wird zusätzlich zum normalen MLW auch eine Messung im parallelen Magnetfeld vorgestellt, um die Kopplung zwischen den zum Transport beitragenden Kanälen zu beschreiben. Zuletzt wird auch der Einfluss von magnetischen Verunreinigungen auf die Streumechanismen am Beispiel von Cr Adsorption gezeigt.

8.2.1 Streuverhalten und Ladungsträgerkonzentration

In der Abbildung 8.6 sind die magnetfeldabhängige Leitwerte (a) und die zugehörigen spezifischen Hall-Widerstände (b) für drei 20 BL dicke $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ -Filme der Sb-Konzentrationen 16-, 17- und 18 % bei einer Substrattemperatur von 11 K dargestellt. Der MLW aller Filme zeigt einen parabelförmigen Verlauf mit einem leicht abweichenden Anteil bei kleinen Magnetfeldern. Die quantitativen Verläufe der Kurven sind also vergleichbar mit denen reiner Bismuthfilme (vgl. Abbildung 7.6). Die Amplituden sind jedoch mit 20 – 40 μS deutlich geringer als die hochqualitativer Bismuthfilme gleicher Schichtdicke (50 – 150 μS). Da die Amplitude sehr empfindlich auf die Ladungsträgerbeweglichkeiten reagiert ($\propto \mu^2$), sind μ_n und μ_p also im Vergleich mit $\text{Bi}(111)$ geringer.

Der spezifische Hall-Widerstand ist mit maximal 6 $\text{Ohm}/\text{sq.}$ ebenfalls kleiner als der von reinen Filme. Um quantitative Aussagen zu treffen, wurden die Messkurven mithilfe der bereits in Kapitel 6.2 genutzten Modelle angepasst. In der Abbildung 8.7 sind die daraus erhaltenen Ladungsträgerbeweglichkeiten und -konzentrationen in (a) bzw. (b) dargestellt. Sowohl μ_n als auch μ_p nehmen, wie bereits anhand der MLW-Messungen beurteilt, als Funktion der Sb-Konzentration ab. Die Abnahme von etwa 70 % über den kleinen Konzentrationsbereich ist für beide Ladungsträgerarten sehr drastisch, sodass die Erklärung über eine Zunahme an Unordnung alleine recht unwahrscheinlich scheint. Wie in der Abbildung 8.7 (b) dargestellt, nehmen Elektronen- und Löcherkonzentration ebenfalls mit x zu. Diese steigen von $0,54 \cdot 10^{13}/\text{cm}^2$ auf $0,91 \cdot 10^{13}/\text{cm}^2$ (Elektronen) und von $0,83 \cdot 10^{13}/\text{cm}^2$ auf $1,45 \cdot 10^{13}/\text{cm}^2$ (Löcher). Gemäß $k_F = \sqrt{2\pi n}$ ergeben sich Fermiwellenvektoren zwischen $k_F(x = 0,16) = 5,8 \cdot 10^{-2} \text{ \AA}^{-1}$ und $k_F(x = 0,18) = 7,4 \cdot 10^{-2} \text{ \AA}^{-1}$. Diese Beobachtungen sind in Übereinstimmung mit den von Benia et al. gezeigten Zusammenhängen zwischen k_F und x [34]. Weiterhin zeigen die Autoren, dass die effektiven Massen bei k_F mit der Sb-Konzentration abnehmen, was gemäß $\mu \propto 1/m^*$ zu einer Verringerung der Beweglichkeiten führt. Es handelt sich hierbei also um einen kombinierten Effekt aus einer Erhöhung der Unordnung in den Mischfilmen und einer graduellen Zunahme der effektiven Massen der Oberflächenladungsträger am Fermi-Level und der Sb-Konzentration x . Dies geht einher mit einer Erhöhung der Ladungsträgerkonzentrationen.

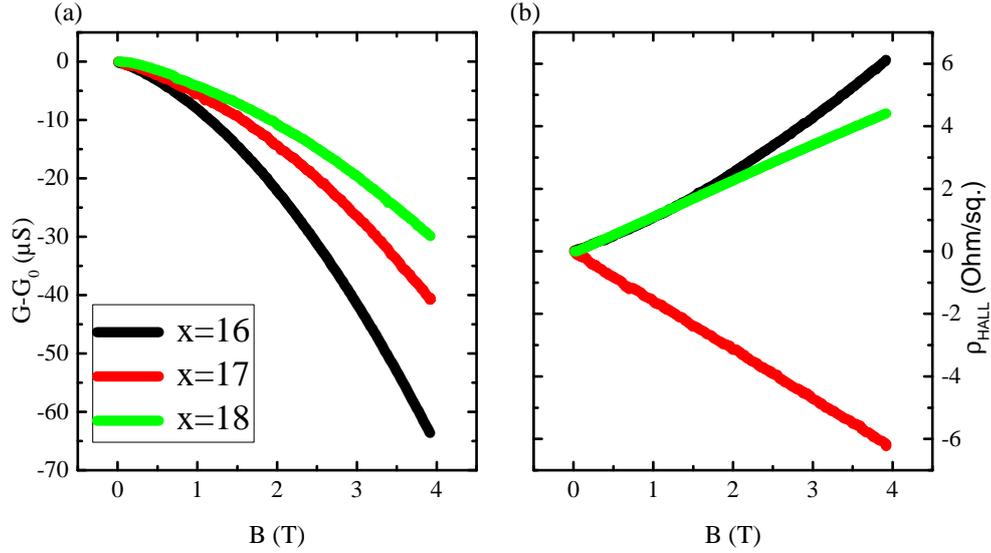


Abbildung 8.6: (a) Änderung des Leitwerts $G - G_0$ als Funktion des Magnetfelds B für drei 20 BL dicke $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ -Filme mit den Sb-Konzentrationen 16 %, 17 % und 18 %. Die Amplitude des MLW nimmt mit zunehmender Sb-Konzentration ab. (b) Spezifischer Hall-Widerstand $\rho_{\text{HALL}}(B)$ derselben Filme.

8.2.2 Kohärente Ladungsträgerstreuung

In der Abbildung 8.8 (a) sind die HLN-Residuen nach Abzug des klassischen MLW's dargestellt. Es ist zu erkennen, dass die Amplitude mit der Sb-Konzentration abnimmt. Alle drei Kurven zeigen eine negative Änderung, daher ist der zugrunde liegende Mechanismus die schwache Antilokalisierung. Die dünneren Linien stellen die Anpassung des Hikami Modells an die Messdaten dar. Die Übereinstimmung zwischen der Messung und dem Modell ist sehr gut. In (c) sind die Fitparameter α und l_ϕ dargestellt. Während die Kohärenzlänge l_ϕ keine Abhängigkeit von der Sb-Konzentration zeigt und etwa 36 nm beträgt, nimmt α geringfügig mit x zu. Die Werte von α sind negativ und bestätigen damit die Beobachtung von WAL. Aufgrund der Größe der α -Werte, die zwischen $-0,11$ und $-0,07$ liegen, handelt es sich hierbei um eine Hybridisierung aus zwei Transportkanälen. Taksin et al. beobachten in ihren Transportmessungen an Bi_2Se_3 Filmen eine Änderung des Parameters α als Funktion der Schichtdicke. Dieser beträgt $-0,5$ für Schichtdicken größer als 5 nm und zeigt für sehr dünne Filme einen rapiden Abfall auf ~ 0 . Die Autoren interpretieren diese Änderung mit der Hybridisierung zwischen Grenzflächen- und Oberflächenzustand, wodurch eine Energielücke am Dirac Punkt entsteht. Diese Lücke überführt die masselose Dirac-Dispersion in eine massive. Dies führt zu einer Änderung in der Berry-Phase, wodurch die schwache Antilokalisierung geschwächt wird [123]. Außerdem zeichnet sich die Phase mit der Energielücke durch spinentartete Oberflächenbänder aus [39] und führt damit zu einer erhöhten Rückstreurate. Aufgrund der vorliegen-

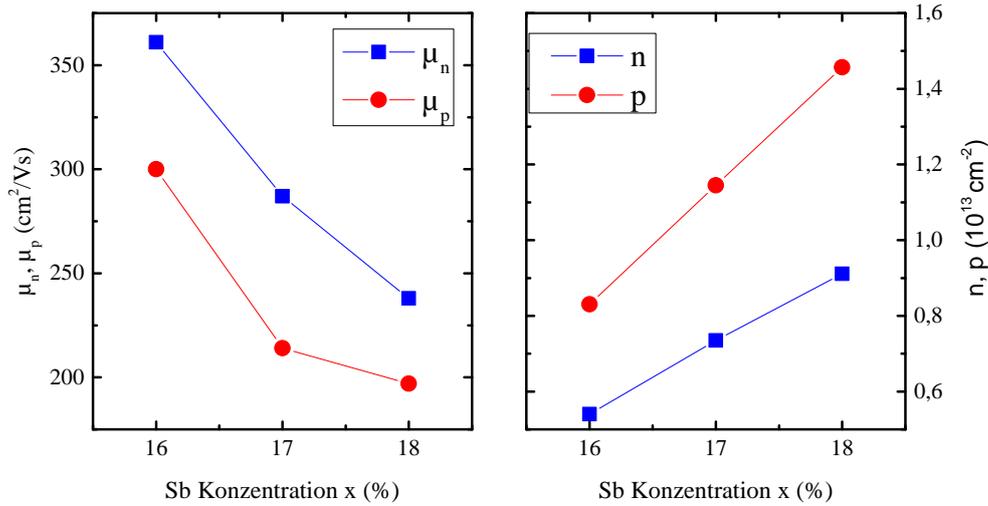


Abbildung 8.7: (a) Aus der Anpassung der Messdaten erhaltene Ladungsträgerbeweglichkeiten als Funktion der Sb-Konzentration. Aufgrund erhöhter Unordnung im System nehmen die Beweglichkeiten mit x ab. (b) Die Ladungsträgerkonzentrationen n und p als Funktion von x .

den Daten des kohärenten Transports und auch aus dem vorherigen Abschnitt liegt nahe, dass sich die hier untersuchten Systeme in einem Schichtdickenbereich zwischen dem Übergang aus topologisch trivialer- zu topologisch nicht trivialer Phase befinden.

Weiterhin sind in der Abbildung 8.8 (b) der longitudinale- und transversale MLW für den Mischfilm mit der Konzentration $x = 18\%$ dargestellt. Diese zeigen im Vergleich zur Analyse der reinen Bismuthfilme eine ähnliche Anisotropie. Die Auswertung mittels Gleichung (2.40) zeigt jedoch große Unterschiede. Die Werte für β betragen bei einem 20 BL $\text{Bi}_{(111)}$ -Film etwa 0,5 und lassen Rückschlüsse auf die Kopplung zwischen Grenzflächen- und Oberflächenzustand zu. Im Fall des $\text{Bi}_{0,82}\text{Sb}_{0,18}$ -Films ist $\beta \sim 0,95$, während sich für α konsistente Werte zum senkrechten Fall finden. Gemäß der Beschreibung in Kapitel 2.2.4.1 ist das untersuchte System im Regime gekoppelter Quantentöpfe einzuordnen (RV-Regime). Die Beschreibung von β im RV-Regime ist über den folgenden Zusammenhang gegeben:

$$\beta = \frac{2(1+s)}{1+2s} - \frac{\ln(1+2s)}{s} \quad (8.2)$$

Dabei ist $s = \tau_\phi/\tau_s$ die Kopplungsstärke zwischen beiden Zuständen. Generell nähert sich β im Fall starker Kopplung 1 und $\tau_\phi \gg \tau_s$. Mithilfe von (8.2) kann also die Streuzeit τ_s , die Tunnelstreuzeit zwischen den Grenzflächen, zu $\tau_s \sim 1,0 \pm 0,5 \text{ fs}$ abgeschätzt werden. Die dabei zugrunde gelegte Streuzeit $\tau_\phi = 100 \text{ fs}$ stammt aus der Analyse der Streuzeiten, dargestellt in der Abbildung 8.8 (d).

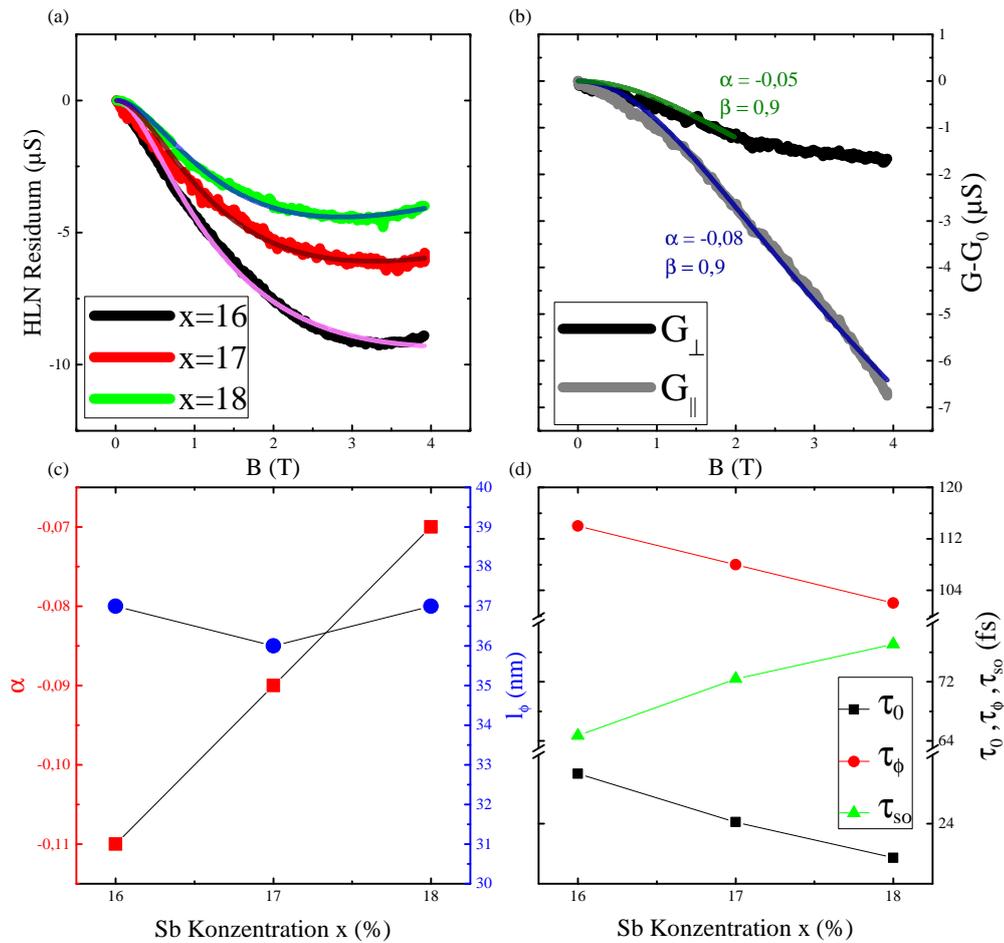


Abbildung 8.8: (a) Kohärenter Anteil der Streuung für die 20 BL dicken Mischfilme der Sb-Konzentrationen 16-, 17- und 18 %. Die überlagerten Linien sind Fits beider Modelle für kohärenten Transport (vgl. Kapitel 2.2.4). (b) Longitudinale und transversale Komponente des parallelen Magnetotransports. (c) Die Fitparameter α und l_{ϕ} als Funktion von x . (d) Entsprechende Streuzeiten als Funktion von x .

8.2.3 Magnetische Adsorbate auf der TI Oberfläche

Um den Einfluss magnetischer Adsorbate auf der TI-Oberfläche zu überprüfen, wurden Cr Atome auf einen $\text{Bi}_{0,82}\text{Sb}_{0,18}$ Film aufgedampft. In der Abbildung 8.9 ist die Änderung des Leitwerts eines 20 BL dicken $\text{Bi}_{0,82}\text{Sb}_{0,18}$ -Films als Funktion der Zusatzbedeckung des Adsorbats Cr dargestellt. Zum Vergleich ist der $G(\delta\theta)$ -Verlauf von Cr auf der reinen Bismuthoberfläche dargestellt. Im Inset ist die Originalmessung des Mischfilms gezeigt. Zur Überprüfung von Extrema im $G(\delta\theta)$ -Verlauf wurde hierbei die Aufdampfrate zunächst sehr gering gewählt und dann schrittweise erhöht. Durch die Anpassung der Zusatzbedeckung in diesen Bereich, konnte daraus die

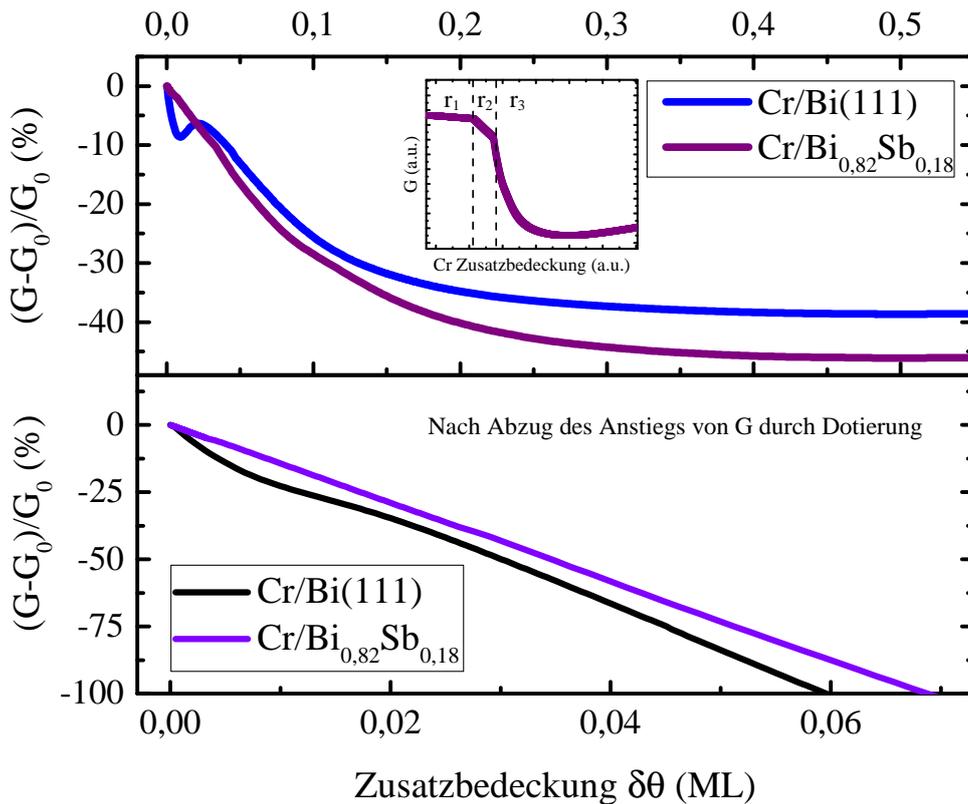


Abbildung 8.9: Oben: Änderung des Leitwerts als Funktion der Adsorbatzusatzbedeckung für Cr auf der Bi(111)-Oberfläche sowie Cr auf einer $\text{Bi}_{0,82}\text{Sb}_{0,18}$ -Oberfläche. Inset: $G(\delta\theta)$ Originaldaten des Mischfilms. Für eine hohe Auflösung wurde die Aufdampfrate im niedrigen Bedeckungsbereich schrittweise erhöht. Unten: Vergleich der $G(\delta\theta)$ -Verläufe des Adsorbats Cr nach Abzug der durch Ladungstransfer induzierten Leitwertsänderung.

gezeigte $G(\delta\theta)$ Kurve dargestellt werden, weist jedoch bei genauer Betrachtung an den zwei Punkten der Ratenerhöhung Unregelmäßigkeiten auf. Diese haben daher keine physikalische Bedeutung. Das lokale Minimum, welches bei Cr/Bi(111) zu erkennen ist, wird im Cr/Bi_{0,82}Sb_{0,18}-System nicht beobachtet. Auffällig ist jedoch die deutlich kleinere Abnahme des Leitwerts im Bereich geringer Zusatzkonzentrationen. Um diesen Unterschied besser herauszuarbeiten, wurde der Zuwachs von G durch den Ladungsübertrag von den Messkurven abgezogen (vgl. Kapitel 7.1). Das Ergebnis ist im unteren Teil der Abbildung dargestellt und zeigt den Einfluss von Cr auf die Ladungsträgerstreuung. Auch bei dem Mischfilm ist der Effekt sehr stark, jedoch etwas geringer im Vergleich zu Cr/Bi(111).

Um einen Einblick in die zugrunde liegenden Streuprozesse und die Änderung der Ladungsträgerkonzentrationen zu erhalten, wurden Cr Atome auf einen $\text{Bi}_{0,82}\text{Sb}_{0,18}$ -Film aufgedampft und Magnetotransportmessungen durchgeführt. In der Abbildung 8.10 sind die MLW (a) und spezifischen Hall-Widerstände (b) des reinen Films sowie

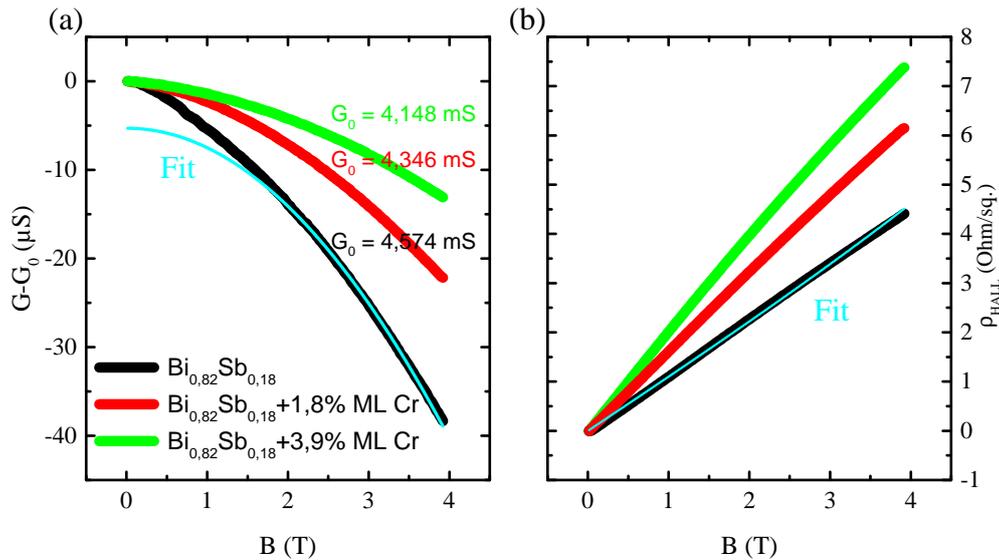


Abbildung 8.10: (a) MLW eines 20 BL dicken $\text{Bi}_{0.82}\text{Sb}_{0.18}$ Films bei der Adsorption von Cr. Die Amplitude des MLW wird mit zunehmender Cr Bedeckung sukzessive kleiner. (b) Zugehörige spezifische Hall-Widerstände. Für alle Zusatzbedeckungen wird eine positive Steigung beobachtet, die mit zunehmender Cr Bedeckung größer wird.

zweier Cr Zusatzbedeckungen von 1,8%- und 3,9% ML bei einer Temperatur von 11 K sowie zwei exemplarische Fits, dargestellt. Für den reinen Film zeigt sich der parabelförmige Verlauf mit einem zusätzlichen WAL-Anteil bei kleinem B . Mit zunehmender Cr-Zusatzbedeckung nimmt die Amplitude der Parabel ab. Die zusätzlichen Streuzentren auf der Oberfläche führen zu einer Abnahme der Ladungsträgerbeweglichkeiten. Der spezifische Hall-Widerstand $\rho_{\text{HALL}}(B)$ des reinen Films zeigt einen linearen Verlauf mit einer positiven Steigung, welche mit zunehmender Zusatzbedeckung zunimmt. Die aus der Anpassung der Messkurven erhaltenen Ladungsträgerbeweglichkeiten und -konzentrationen sind in der Abbildung 8.11 dargestellt.

Die Ladungsträgerbeweglichkeiten μ_n und μ_p betragen für den reinen Film 250 bzw. 191 cm^2/Vs und nehmen mit zunehmender Zusatzbedeckung um bis zu 80% ab. Die Abnahme wird durch die zusätzlichen Streuzentren auf der Oberfläche verursacht. Bemerkenswert ist die Zunahme der Löcherkonzentration als Funktion der Zusatzbedeckung, die um etwa $0,65 h^+/\text{Atom}$ zunimmt, während die Elektronenkonzentration etwa konstant ist. Im Vergleich zu Cr/Bi(111) ist die Zunahme von p hier etwa doppelt so groß und erklärt damit die geringe Abnahme des Leitwerts als Funktion der Zusatzbedeckung in Abbildung 8.9.

In der Abbildung 8.12 (a) sind die kohärenten Anteile der Streuung sowie in (b) die Streuzeiten τ_0 , τ_ϕ und τ_{s0} dargestellt. Der reine Film zeigt einen negativen MLW, also WAL, in Übereinstimmung mit den im vorherigen Abschnitt gezeigten Messungen. Mit zunehmender Cr-Konzentration wird die Amplitude der WAL sukzessive kleiner.

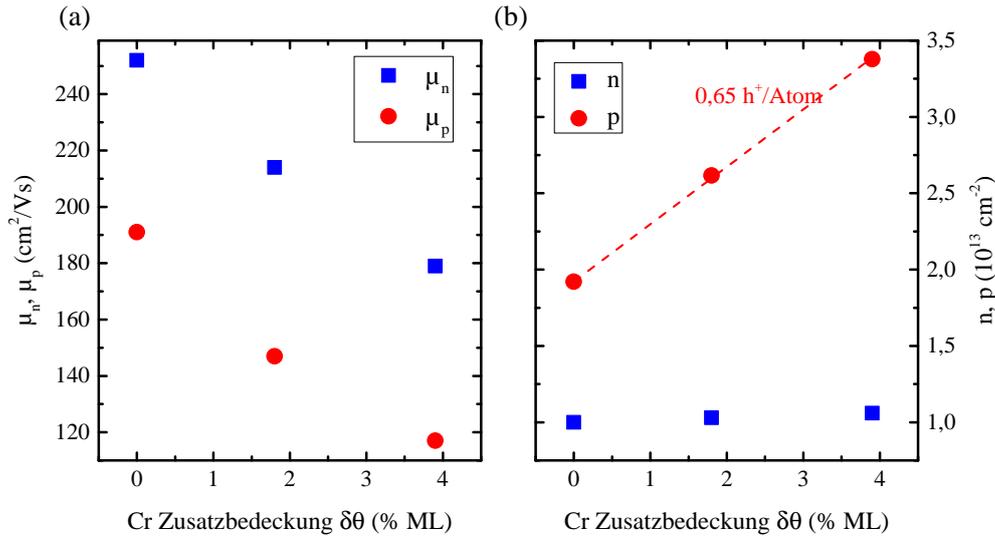


Abbildung 8.11: (a) Ladungsträgerbeweglichkeiten μ_n und μ_p als Funktion der Cr Zusatzbedeckung auf einem $\text{Bi}_{0,82}\text{Sb}_{0,18}$ -Film. Beide nehmen mit zunehmender Cr Bedeckung stark ab. (b) Ladungsträgerkonzentrationen n und p als Funktion der Cr Zusatzbedeckung. Während n kaum merklich ansteigt, nimmt p deutlich zu. Der Ladungsübertrag pro Cr Atom beträgt $\Delta p = 0,65 \text{ h}^+$.

Qualitativ verhält sich der Mischfilm also ähnlich wie dünne Bismuthfilme, sodass auch bei diesem Materialsystem von einem lokalen Bruch der \mathcal{T} -Symmetrie durch das magnetische Adsorbat Cr auszugehen ist. Die Anpassung des Hikami Modells an die Messkurven, dargestellt durch die durchgezogenen Linien in (a), liefern die Streuzeiten in (b). Die inelastische Streuzeit τ_ϕ ist für alle drei Konzentrationen etwa konstant und deutlich größer als beide anderen Streuzeiten. Die elastische Streuzeit τ_0 nimmt mit zunehmender Cr-Konzentration ab. Auch bei diesem Experiment reagiert τ_0 also empfindlich auf die zusätzlichen Streuzentren auf der $\text{Bi}_{0,82}\text{Sb}_{0,18}$ -Oberfläche. Die Abnahme der WAL-Amplitude in (a) ist verknüpft mit einer Zunahme der Spin-Orbit-Streuzeit τ_{so} mit zunehmender Adsorbatkonzentration. Im Fall der höchsten Zusatzbedeckung von 3,9 %, liegt sie nur noch sehr knapp unter τ_ϕ und markiert damit dem Punkt, an dem die WAL durch die magnetischen Adsorbate fast komplett unterdrückt ist. Dies spiegelt sich auch in der mit nur ca. $1 \mu\text{S}$ großen Amplitude der WAL wider. Ein Übergang von WAL zu WL wird in diesem Konzentrationsbereich jedoch noch nicht beobachtet.

Aufgrund der Tatsache, dass der WAL-Beitrag bei dieser Schichtdicke durch die Grenzflächenkopplung bereits gering ist (vgl. Abschnitt 8.2; $\alpha = -0,07$), ist τ_{so} ca 50 fs größer als τ_0 . Die Zunahme der Spin-Orbit-Streuzeit $\tau_{so}(\delta\theta)$ bedeutet, dass alle 3d-Übergangsmetalle starke Spin-Orbit-Streuer sind. An der induzierten Störstelle sind die spinabhängigen Auswahlregeln aufgehoben. Anders ausgedrückt, die Streuprozesse an den magnetischen Störstellen mischen alle Spinkomponenten, sodass der

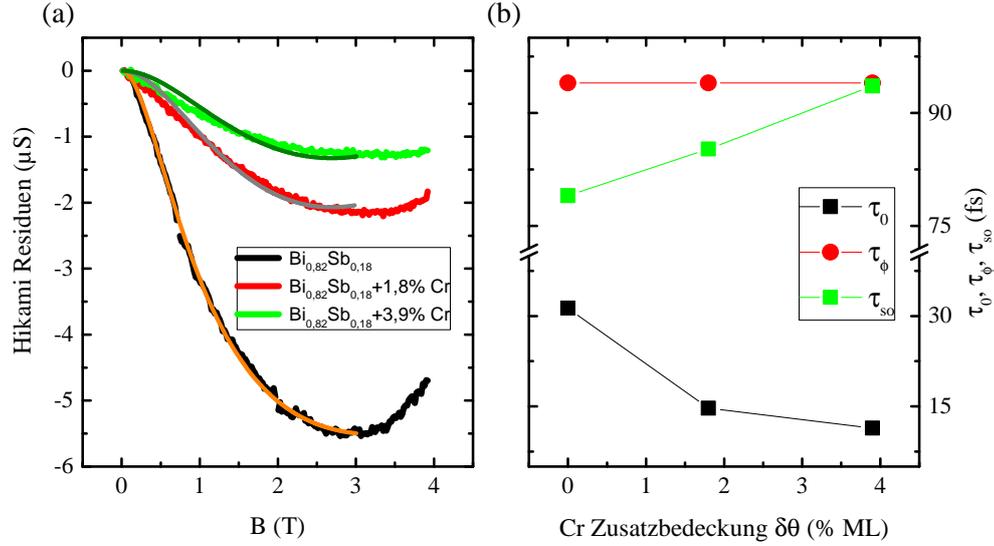


Abbildung 8.12: (a) Kohärenter Anteil der Streuung eines 20 BL dicken $\text{Bi}_{0,82}\text{Sb}_{0,18}$ -Films als Funktion des magnetischen Feldes bei der Adsorption von Cr. (b) τ_0 , τ_ϕ und τ_{so} als Funktion der Zusatzbedeckung.

Spin keine gute Quantenzahl mehr ist. Als Konsequenz tragen die Adsorbate zu einer Verlängerung der Spin-Orbit Streuzeit und der damit verbundenen Aufweichung des Rückstreuverbots aufgrund der \mathcal{T} -Symmetrie bei. Die Änderung von τ_{so} mit der Cr-Zusatzbedeckung beträgt $d\tau_{so}/d\delta\theta = 375 \pm 16 \text{ fs/ML}$ und ist damit um einen Faktor 3 kleiner als im Fall der Cr-Adsorption auf reinen $\text{Bi}(111)$ -Filmen (vgl. Abbildung 7.15). Diese Beobachtung lässt zwei Rückschlüsse auf das Verhalten der Cr Atome auf der TI-Oberfläche zu. Zum einen ist das magnetische Moment des Adsorbats kleiner. Unter der Annahme, dass die Adsorbate ähnliche Adsorptionsplätze wie auf der reinen Bismuthoberfläche annehmen, ist die Koordination der Cr Atome aufgrund der erhöhten Unordnung des Mischfilms gestört. Dies kann zu einer Delokalisierung der für das magnetische Moment verantwortlichen d-Orbitale führen. Somit ist das effektive magnetische Moment und damit die Wirkung auf die Spin-Orbit-Streuzeit kleiner. Zum anderen sind die Zustände robust gegen Störung, wobei die topologischen Zustände unempfindlicher auf die Adsorbate als im Fall der topologisch trivialen Zustände der $\text{Bi}(111)$ -Filme reagieren. Dies spiegelt sich auch in der geringeren Abnahme von Ladungsträgerbeweglichkeiten der TI-Filme im Vergleich mit den Bismuthfilmen wider.

ZUSAMMENFASSUNG

Die Transporteigenschaften des spinpolarisierten Oberflächenzustandes der epitaktischen $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ -Filme wurden anhand systematischer Variationen der Schichtdicke

und Sb-Konzentration untersucht. Der temperaturabhängige Verlauf des Leitwerts lässt auf die Anwesenheit eines metallischen Oberflächenbeitrags sowie aktivierter Volumenbeiträge schließen. Zusätzlich spielt die Aktivierung von Ladungsträgern aus einem Störstellenband eine Rolle. Im Gegensatz zum Volumenkristall ist die Bandlücke durch den *Quanten-Size-Effekt* um einen Faktor fünf vergrößert. Weiterhin zeigen die Messungen an Filmen unterschiedlicher Sb-Konzentration eine Zunahme des Leitwerts, die durch eine zunehmende Füllung der Oberflächenbänder hervorgerufen wird. Dieser Zusammenhang konnte anhand von MLW- und Hall-Messungen durch die beobachtete Zunahme von Ladungsträgerkonzentrationen und -beweglichkeiten bestätigt werden.

Die Analyse der kohärent gestreuten Ladungsträger identifiziert WAL als Transportmechanismus. Die hierbei untersuchte Schichtdicke von 20 BL befindet sich im Bereich der Hybridisierung zwischen Oberflächen- und Grenzflächenzustand. Bei weiterer Verringerung der Schichtdicke öffnet sich eine Bandlücke. Dies kann anhand des geringen Leitwerts eines 10 BL dicken Films beurteilt werden. Zuletzt konnte durch die Adsorption des magnetischen Atoms Cr dessen Einfluss auf die Rückstreuung untersucht werden. Durch einen lokalen Bruch der \mathcal{T} -Symmetrie wird die 180° Rückstreuung ermöglicht. Der Einfluss auf die spinabhängigen Streuprozesse ist dabei im Vergleich zu dünnen Bismuthfilmen um einen Faktor drei kleiner und reflektiert die Tatsache, dass die Oberflächenzustände topologisch geschützt sind.

ZUSAMMENFASSUNG

Die elektronischen Eigenschaften epitaktischer Bismuth- und TI-Filme zeigen großes Potential für die Realisierung von spinpolarisierten Ladungsträgern.

Die Ausbildung des *Quanten-Size-Effect* in ultra-dünnen Bismuthfilmen konnte mittels Transportmessungen nachgewiesen werden, sodass die Kontrolle der Bandlücke sowie Ladungsträgerkonzentrationen mit der Schichtdicke d gegeben ist. Hierbei hat sich herausgestellt, dass die kristalline Qualität der Filme, die eng mit den mittleren freien Weglängen der Ladungsträger l_e verknüpft ist, von entscheidender Bedeutung ist. Nur falls $l_e \ll d$ gilt, kann die Aufspaltung der quantisierten Valenzbänder im makroskopischen Transportexperiment beobachtet werden. Bei tiefen Temperaturen wird der elektrische Strom über die teilgefüllten und durch den Rashba-Effekt spinpolarisierten Oberflächenbänder getragen. Durch eine Temperaturerhöhung können weitere Transportkanäle durch thermische Aktivierung von Ladungsträgern zugeschaltet werden, wodurch die Ladungsträgerkonzentration und damit die Leitfähigkeit des Gesamtsystems erhöht wird.

Interessanterweise deuten viele der vorgestellten Ergebnisse auf einen zweiten Transportkanal an der Grenzfläche zum Silizium hin. Dieser ist ebenfalls spinpolarisiert und weist eine dem Oberflächenzustand entgegengesetzte Polarisation auf, da der Potentialgradient in die entgegengesetzte Richtung zeigen muss. Als Folge können die Rückstreuprozesse, welche maßgeblich durch die \mathcal{T} -Symmetrie bestimmt werden, mithilfe der Schichtdicke und der damit verbundenen Wechselwirkung beider Zustände beeinflusst werden. Für dünner werdende Filme (ab ca. 20 BL) nimmt die Kopplung zwischen beiden Zuständen zu, wodurch die Spinpolarisation abnimmt. Daher wird es ermöglicht einen Bismuthfilm mit beliebiger Spinpolarisation zu erzeugen. In diesem Zusammenhang wären weitere Magnetotransportexperimente sinnvoll, um den Übergangsbereich der Kopplung zwischen den Grenzflächen genauer zu bestimmen.

Die Manipulation der \mathcal{T} -Symmetrie wurde durch gezieltes Aufdampfen kleiner Mengen von 3d-Übergangsmetallen vorgeführt. Hierbei hat sich herausgestellt, dass neben der Änderung der spinabhängigen Streuprozesse und dem damit verbundenen lokalen Bruch der \mathcal{T} -Symmetrie auch parasitäre Effekte wie Ladungstransfer und eine Verringerung der mittleren freien Weglängen der Ladungsträger auftreten.

Nichts desto trotz ermöglichen die 3d-Übergangsmetalle eine gezielte Manipulation der Rückstreuprozesse, die sich in dem Übergang von schwacher Antilokalisierung zu schwacher Lokalisierung widerspiegelt. Der direkte Rückstreukanal von $+\mathbf{k}$ nach $-\mathbf{k}$ wird freigegeben. Darüber hinaus konnten die lokalen magnetischen Ei-

genschaften der Adsorbate anhand von XMCD-Messungen bestimmt werden. Wie vermutet verfügen die Übergangsmetalle über große magnetische Momente. Der Vergleich zwischen der lokalen Messmethode XMCD und der globalen Methode des elektrischen Transports hat gezeigt, dass die Größen von Bahn- und Spinmoment des Adsorbates direkt mit deren Streueigenschaften (elastische- bzw. Spin-Orbit-Streuzeit) verknüpft sind. XMCD zeigt außerdem eine nicht zu vernachlässigende Hybridisierung zwischen Metall- und Bismuthorbitalen, die eine Änderung der Bandstruktur mit sich bringen könnte. Auch dieser Effekt ist mit den Transportmessungen im Einklang, bei denen ein überproportionaler Anstieg der Löcherkonzentration mit zunehmender Adsorbatkonzentration nicht alleine durch eine starre Verschiebung der Bänder erklärt werden kann, sondern zusätzlich eine Änderung des Oberflächenzustandes stattfinden muss. Um diesen Mechanismus im Detail zu untersuchen, könnten ARPES-Messungen der Bismuthoberfläche in Abhängigkeit der 3d-Übergangsmetallkonzentration durchgeführt werden.

Eine weitere offene Frage ist der Einfluss von Adsorbaten auf die Streumechanismen zwischen den Grenzflächen. Während alle Streuprozesse in der Ebene durch WAL dominiert sind, ist die Streuung zwischen den Grenzflächen durch WL dominiert, da beide Zustände entgegengesetzten Spinpolarisation aufweisen und damit die direkte Rückstreuung von $+\mathbf{k}$ nach $-\mathbf{k}$ ermöglichen. Magnetfeldabhängige Messungen mit paralleler und senkrechter Ausrichtung für verschieden dicke Bismuthfilme als Funktion der Zusatzbedeckung könnten Aufschluss über den Kopplungsmechanismus zwischen den Grenzflächen sowie die Adsorbat-Adsorbat Wechselwirkung geben.

Teil III

APPENDIX

ANHANG

A.1 WACHSTUM

In der Abbildung A.1 sind die H(S)-Analysen für einen unterschiedlich lange ausgeheilten Bismuthfilm der Schichtdicke 40 BL dargestellt. Nach der Dauer von einer Stunde (linke Abbildung) bei der Probentemperatur von 450 K beträgt die mittlere Korngröße etwa 30 nm. Nach insgesamt sechs Stunden (rechte Abbildung) beträgt die mittlere Korngröße etwa 50 nm.

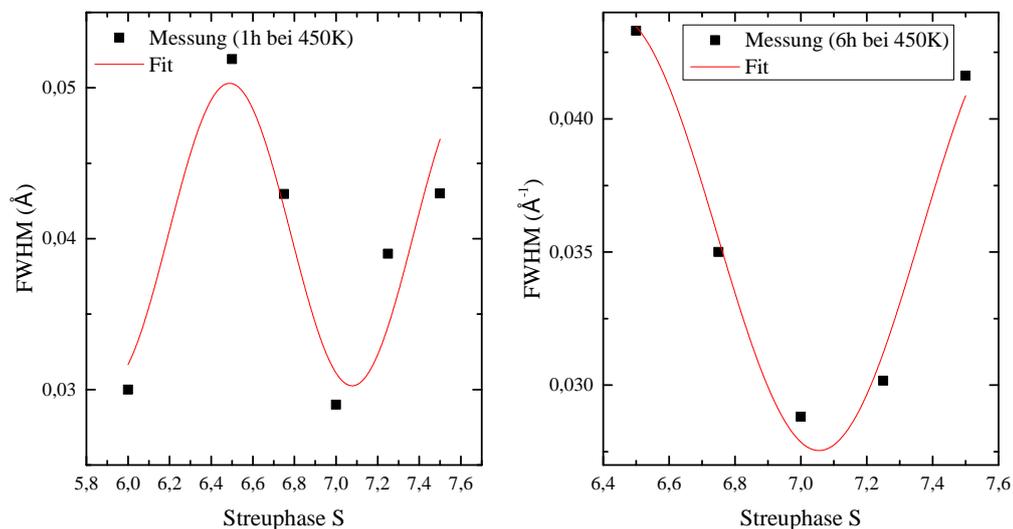


Abbildung A.1: Links: H(S)-Analyse eines 40 BL dicken Bismuthfilms nach dem Ausheilen bei 450 K für eine Stunde. Rechts: H(S)-Analyse desselben Bismuthfilms nach einer Ausheilzeit von sechs Stunden.

A.2 G(T) ANPASSUNGEN

In den Abbildungen A.2 und A.3 sind die Anpassungen der G(T)-Verläufe eines 45 BL bzw. 80 BL dicken Bismuthfilms dargestellt. Hierzu wird das Modell (6.1) verwendet:

$$G(T) = G_{\text{OF}}(T) + G_{\text{Vol}}(T) = \frac{1}{1/g_0 + \alpha T} + g_1 \cdot \exp\left(-\frac{E_g}{2k_B T}\right) \quad (\text{A.1})$$

Die Anpassung verläuft dabei in drei Schritten. Zuerst wird der metallische Anteil bei tiefen Temperaturen angepasst. Anschließend wird der aktivierte Anteil für hohe

Temperaturen hinzugefügt und angepasst, während die Parameter des metallischen Anteils festgehalten werden. Zuletzt werden alle Parameter beider Anteile freigegeben und erneut angepasst. In den beiden Abbildungen A.2 und A.3 sind jeweils in (a) die daraus resultierenden Anpassungen des metallischen Oberflächenanteils G_{OF} und in (b) die aktivierten Beiträge G_V nach Abzug des metallischen Anteils ($G - G_{\text{OF}}$) dargestellt. Es wird eine gute Übereinstimmung zwischen Messdaten und Modell beobachtet.

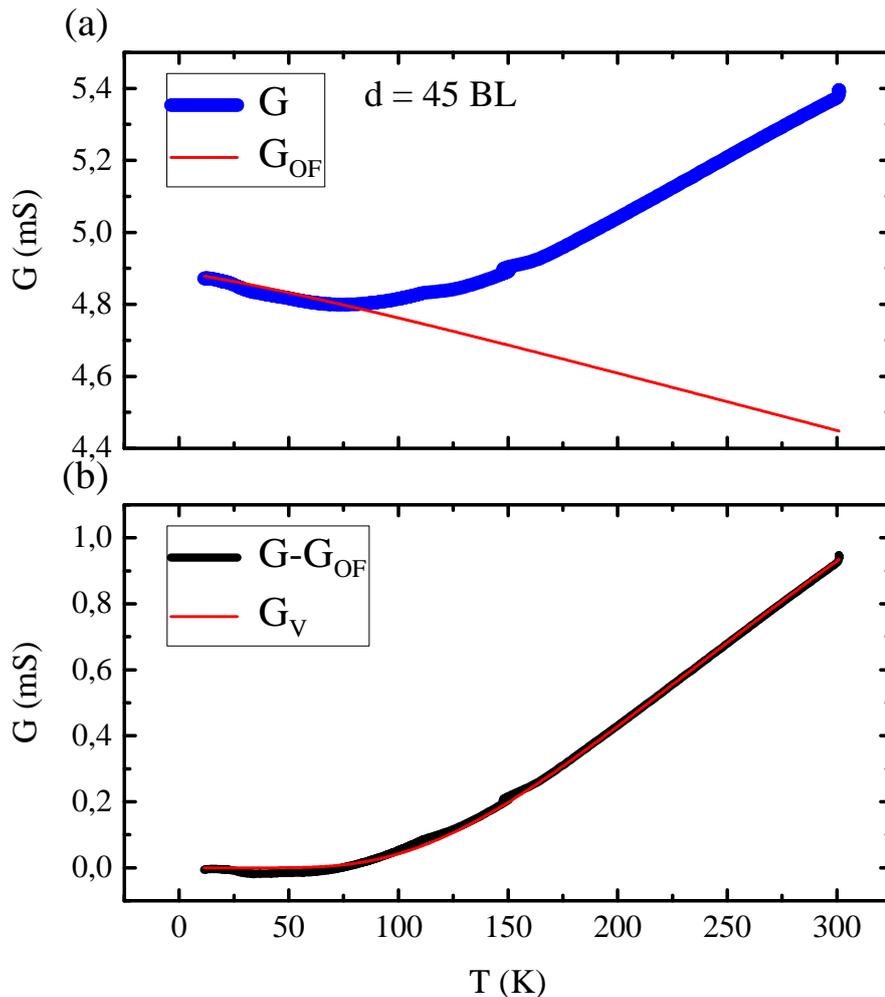


Abbildung A.2: (a) $G(T)$ -Verlauf eines 45 BL dicken Bismuthfilms und metallischer Beitrag (rote Kurve), der für kleine Temperaturen angepasst wurde. (b) Nach Abzug des metallischen Beitrages aus (a) bleibt der aktivierte Anteil des $G(T)$ -Verlaufs übrig, und kann angepasst werden. Im Anschluss an diesen Fitprozess werden alle Parameter der beiden Beiträge frei gelassen und eine erneute Anpassung durchgeführt, um die bestmögliche Übereinstimmung zwischen dem Experiment und dem Modell zu erhalten.

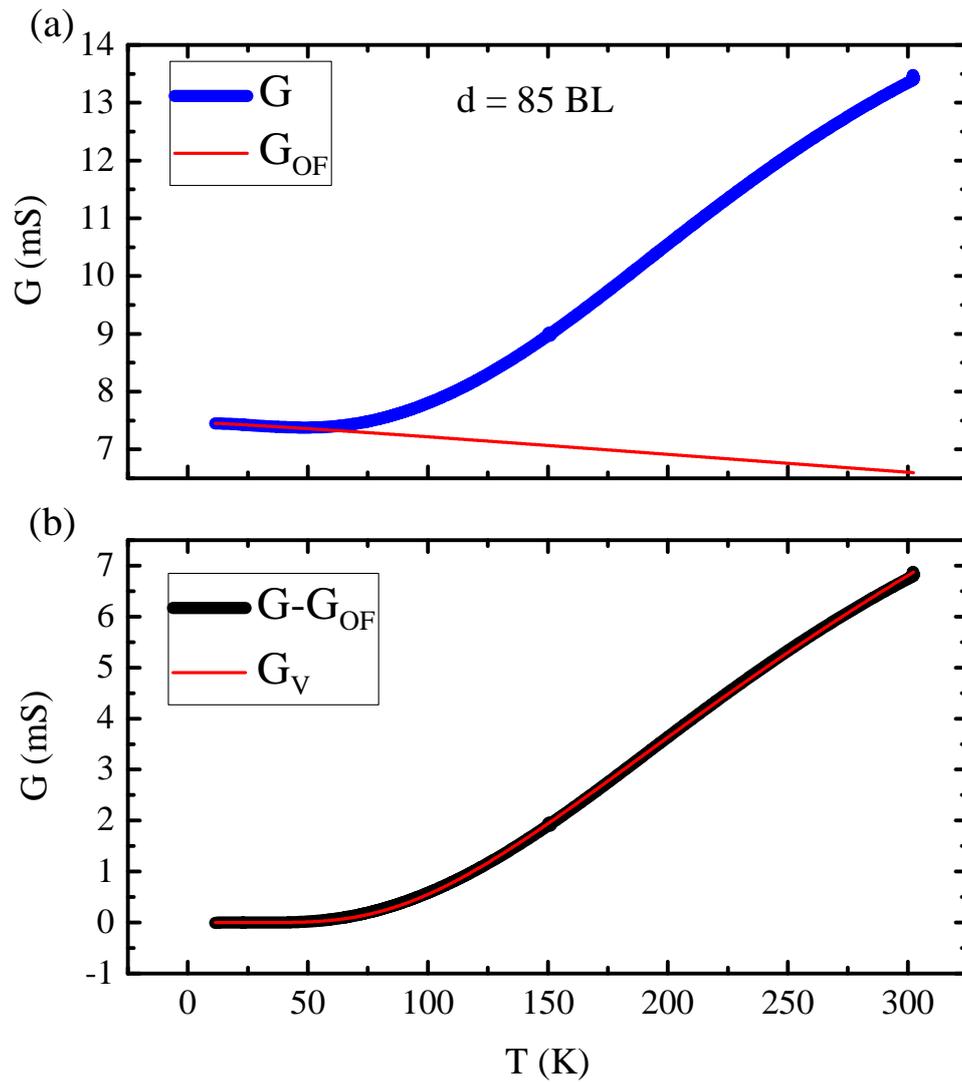


Abbildung A.3: (a) $G(T)$ -Verlauf eines 85 BL dicken Bismuthfilms und metallischer Beitrag (rote Kurve), der für kleine Temperaturen angepasst wurde. (b) Nach Abzug des metallischen Beitrages aus (a) bleibt der aktivierte Anteil des $G(T)$ -Verlaufs übrig, und kann angepasst werden.

A.3 DIFFUSER TRANSPORT - ANPASSUNGEN

In der Abbildung A.4 ist die Entwicklung des spezifischen Hall-Widerstandes bei der Mn-Adsorption dargestellt. Für den reinen Bismuthfilm ist die Steigung negativ, klappt dann bei einer Bedeckung von 0,015 ML Mn um und nimmt für die nächste höhere Bedeckung wieder ab. Dieser Verlauf ist qualitativ identisch zu dem bei der Cr-Adsorption (Abbildung 7.6 (b)). Verglichen mit der in (d) gezeigten Messung ist der Verlauf linear.

Um einen Einblick in die möglichen Verläufe des spezifischen Hall-Widerstandes zu erhalten, wurden Simulationen des Zweiband-Modells

$$\rho_{\text{HALL}}(B) = -\frac{B}{ne} \frac{\mu_n^2 - c\mu_p^2 + (1-c)\mu_n^2\mu_p^2 B^2}{(\mu_n + c\mu_p)^2 + (1-c)^2\mu_n^2\mu_p^2 B^2} \quad (\text{A.2})$$

erstellt. Diese sind in der Abbildung A.5 dargestellt. Für $\mu_n B \ll 1$ und $\mu_p B \ll 1$ folgt aus $d\rho_{\text{HALL}}(B)/dB = 0$, dass $c = \mu_n^2/\mu_p^2$. Daher weist $\rho_{\text{HALL}}(B)$ eine positive (negative) Steigung falls c größer (kleiner) als μ_n^2/μ_p^2 ist. Trivialerweise folgt die Kompensation des Leiters für $\mu_n/\mu_p = \sqrt{c}$. Aufgrund der Annahme $\mu_n B \ll 1$ und $\mu_p B \ll 1$ verschwindet der Hall-Effekt nur für kleine Magnetfelder. Für größere Felder dominiert die quadratische Magnetfeldabhängigkeit, sodass ein gekrümmter Verlauf entsteht. Die Krümmung ist dabei positiv, falls $\mu_n > \mu_p$ und $p > n$ oder negativ, falls $\mu_p > \mu_n$ und $n > p$. In der Abbildung A.5 (a) sind Simulationen für feste Werte von $c = 0,7(\sqrt{c} = 0,833)$, $n = 3 \cdot 10^{12} \text{cm}^{-2}$ und $\mu_n = 0,03$ dargestellt. μ_p wurde in engen Grenzen variiert, sodass das Umklappen der Steigung gut beobachtet werden kann. Bei größer werdender Abweichung von der Kompensationsbedingung wird der lineare Anteil des $\rho_{\text{HALL}}(B)$ -Verlaufes zunehmend dominanter. Das gleiche gilt für positiv gekrümmte Verläufe, dargestellt in (b).

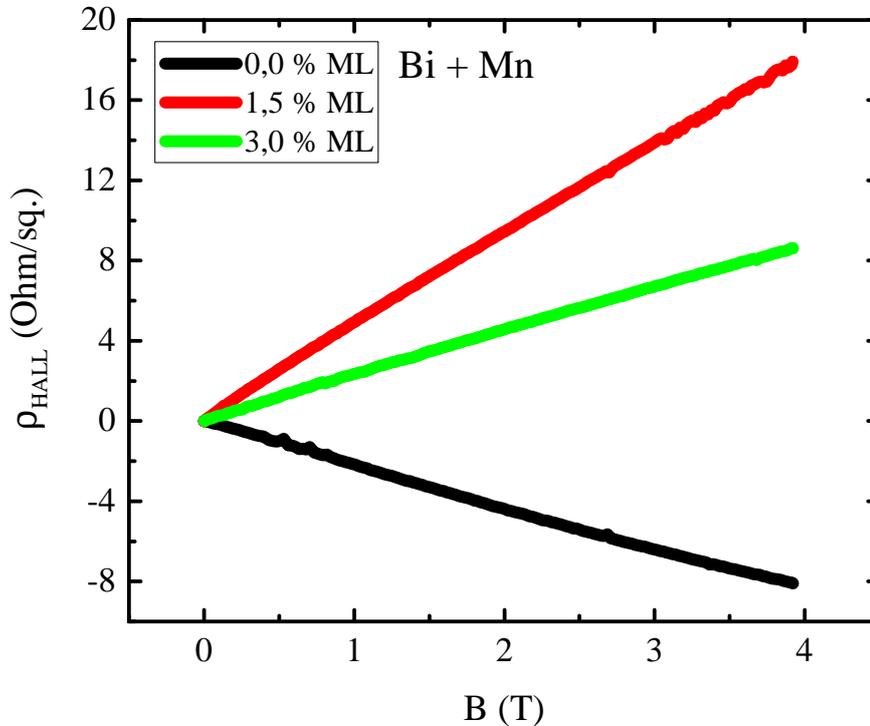


Abbildung A.4: Spezifischer Hall-Widerstand bei der Mn Adsorption.

Bei allen Auswertungen der MLW- und Hall-Daten wurden als Randbedingung der Anpassung zum einen die Bedingung $\mu_n > \mu_p$ und zum anderen $n \sim 5 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ gewählt. Dies resultiert aus ARPES-Messungen, die belegen, dass die Bandkrümmung der Elektronen und damit deren Beweglichkeiten größer als die der Löcher ist [3, 4]. Weiterhin gilt

$$\mu_H = r_H \mu. \quad (\text{A.3})$$

Dabei ist μ_H die Hall-Beweglichkeit, die sich von der Driftbeweglichkeit μ um den Hall-Faktor r_H unterscheidet [153]. Der Hall-Faktor ist durch

$$r_H = \frac{\langle \tau^2 / (m^*)^2 \rangle}{\langle \tau / m^* \rangle^2} \quad (\text{A.4})$$

gegeben [154], wobei τ die energieabhängige Relaxationszeit der Boltzmann-Gleichung ist und $\langle \dots \rangle$ das Mittel der Fermi-Dirac-Statistik, gewichtet über die Verteilung der freien Ladungsträger bezeichnet. r_H kann Werte zwischen 1 und 2 annehmen. Bei

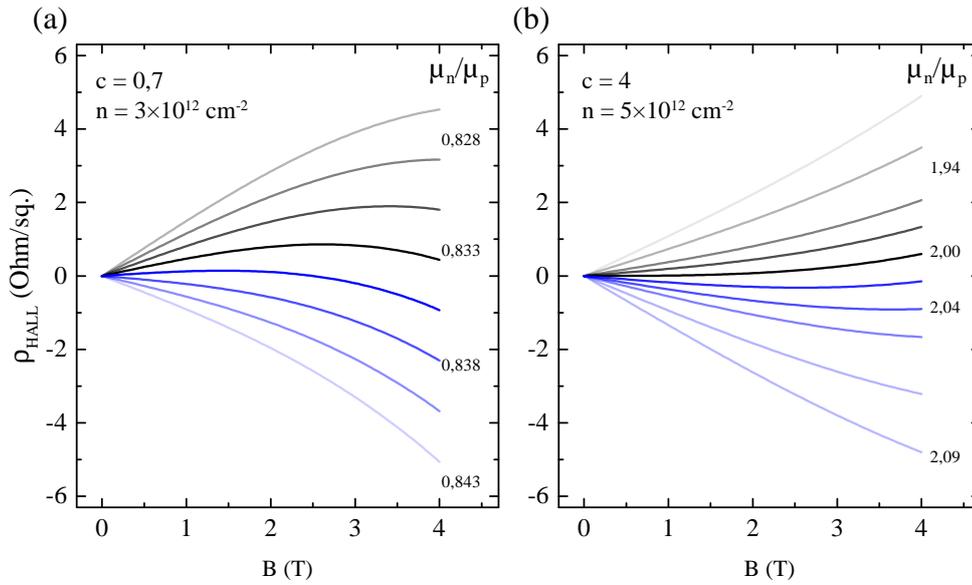


Abbildung A.5: Zweiband-Modell Simulationen. (a) Negativ gekrümmter Verlauf, (b) positiv gekrümmter Verlauf.

der Auswertung der MLW- und Hall-Daten fließt dieser Zusammenhang als weitere Nebenbedingung über $\sigma_H = r_H \sigma$ ein.

Bei der Auswertung der gekrümmten Verläufe des spezifischen Hall-Widerstands für die Mn- und Fe-Messreihe ist dieser Zusammenhang von entscheidender Bedeutung. Bei der Fe-Adsorption widerspricht die negative Krümmung von $\rho_{\text{HALL}}(B)$ den ARPES-Messungen aus der Literatur, da $\mu_p > \mu_n$ und $n > p$ gelten müsste. Zum anderen wird bei der Anpassung beider Datensätze unter Berücksichtigung der Randbedingungen nur schlechte Übereinstimmung, sowie $\sigma_{\text{HALL}} \ll \sigma$ gefunden.

Die Ursache des gekrümmten Hall-Widerstandes ist also nicht die Nähe zum Kompensationsbereich. Selbiges gilt für die Mn-Messreihe. Aus diesem Grund wird zur Anpassung nur der lineare Anteil der Messkurve verwendet.

A.4 KOHÄRENTER TRANSPORT - ANPASSUNGEN

In der Abbildung A.6 (oben) ist der Anteil des kohärenten Transports eines 40 BL dicken Bismuthfilms dargestellt. Um die Sicherheit der extrahierten Parameter bei der Anpassung des Modells (2.39) zu überprüfen, wurden feste Werte für den Parameter α zwischen -1 und -0,3 gewählt, während l_ϕ frei bleibt. Hierbei ist deutlich zu erkennen, dass die Anpassung für $\alpha = -1$ die beste Übereinstimmung liefert. Dies zeigt sich besonders deutlich in den Residuen der Anpassung, die im unteren Teil der Abbildung dargestellt sind.

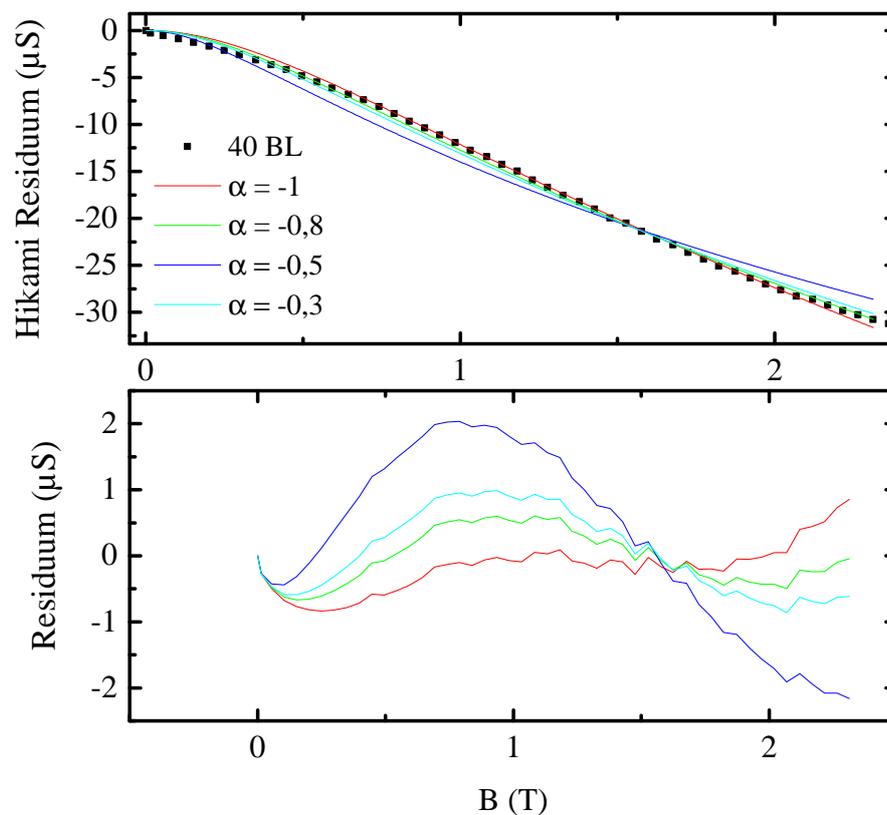


Abbildung A.6: Überprüfung des Modells für senkrechten MLW, Gleichung (2.39). Die Messung des 40 BL dicken Bismuthfilms wird für verschiedene Parameter α zwischen -1 und -0,3 angepasst. In den Residuen (unten) ist deutlich zu erkennen, dass $\alpha = -1$ den besten Fit liefert.

Um weiterhin sicherzustellen, dass sich durch den Abzug des klassischen Anteils kein Fehler ergibt, wurde die Änderung des Leitwerts der reinen Messkurve im Bereich kleiner Magnetfelder mit demselben Modell angepasst. Dies ist in der Abbildung A.7 dargestellt. Die Ergebnisse der Anpassung unterscheiden sich nicht von denen, die nach dem klassischen Abzug erhalten werden. α beträgt -1 und l_ϕ 26 nm.

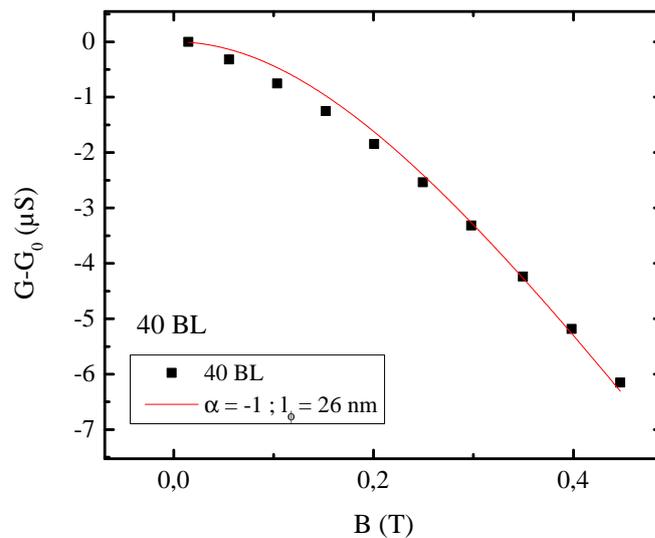


Abbildung A.7: Änderung des Leitwerts eines 40 BL dicken Bismuthfilms ohne Subtraktion des klassischen Anteils als Funktion des Magnetfelds und Anpassung von Modell (2.39).

Etwas komplizierter wird die Situation bei den Anpassungen der Leitwertsänderung im parallelen Feld. Zunächst wird der longitudinale Fall (G_{\parallel}) betrachtet. In der Abbildung A.8 (oben) ist die Leitwertsänderung des 40 BL dicken Bismuthfilms dargestellt. Die Anpassungen des Modells (2.40) wurde feste α zwischen -1 und -0,1 durchgeführt, während β frei bleibt. Die Phasenkohärenzlänge l_{ϕ} wurde aus der senkrechten Messung übernommen. Es wird deutlich, dass die Messdaten durch verschiedene Parameterkombinationen gut beschrieben werden können, wobei sich anhand der Residuen, dargestellt im unteren Bereich der Abbildung, nur minimale Unterschiede in der Qualität des Fits beobachten lässt.

Um trotzdem verlässliche Trends aus den Datensätzen zu erhalten, wurde ein Wert für β abgeschätzt (vgl. Kapitel 6.3.1) und als Randbedingung in der Anpassung verwendet. Für den 40 BL dicken Bismuthfilm beträgt β etwa 0,022. Wird dieser bei der Anpassung festgesetzt, ergibt sich $\alpha = -0,91$. Da es sich bei der Bestimmung von β um eine Abschätzung handelt, wird dieser um 100% variiert und jeweils ein zugehöriges α bestimmt. Damit wird eine obere und untere Grenze für α abgeschätzt, die als Fehlerbalken in der Abbildung 6.16 dargestellt ist.

Die Messung des transversalen Falls (G_{\perp}) ist in der Abbildung A.9 (oben) dargestellt. Es ist zu erkennen, dass β kleine Änderungen für großer Werte von α aufweist. Dadurch ergibt sich eine größere Unsicherheit für α .

Der 20 BL dicke Film stellt eine Ausnahme dar, da der abgeschätzte Wert für β unter keinen Umständen zu einem konvergenten Fit führt. Beispielhafte Anpassungen sind in der Abbildung A.10 dargestellt. Daher wurden für diese Messung α und β

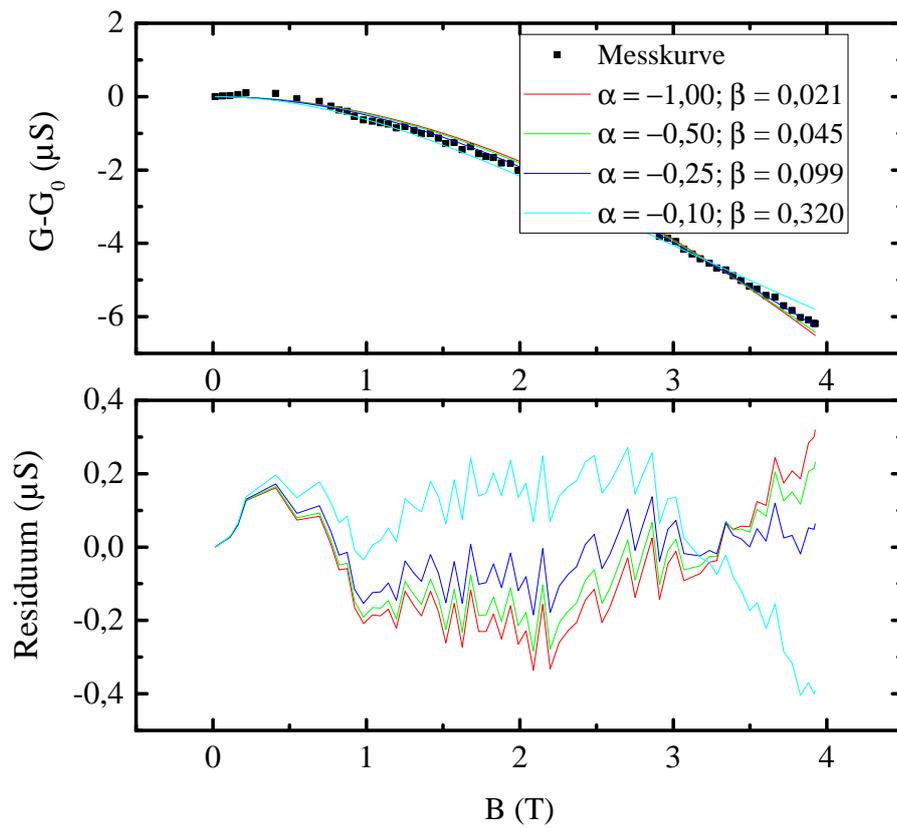


Abbildung A.8: Überprüfung des Modells für parallelen MLW, Gleichung (2.40). Die Messung G_{\parallel} des 40 BL dicken Bismuthfilms wird für verschiedene Parameter α zwischen -1 und -0,1 angepasst.

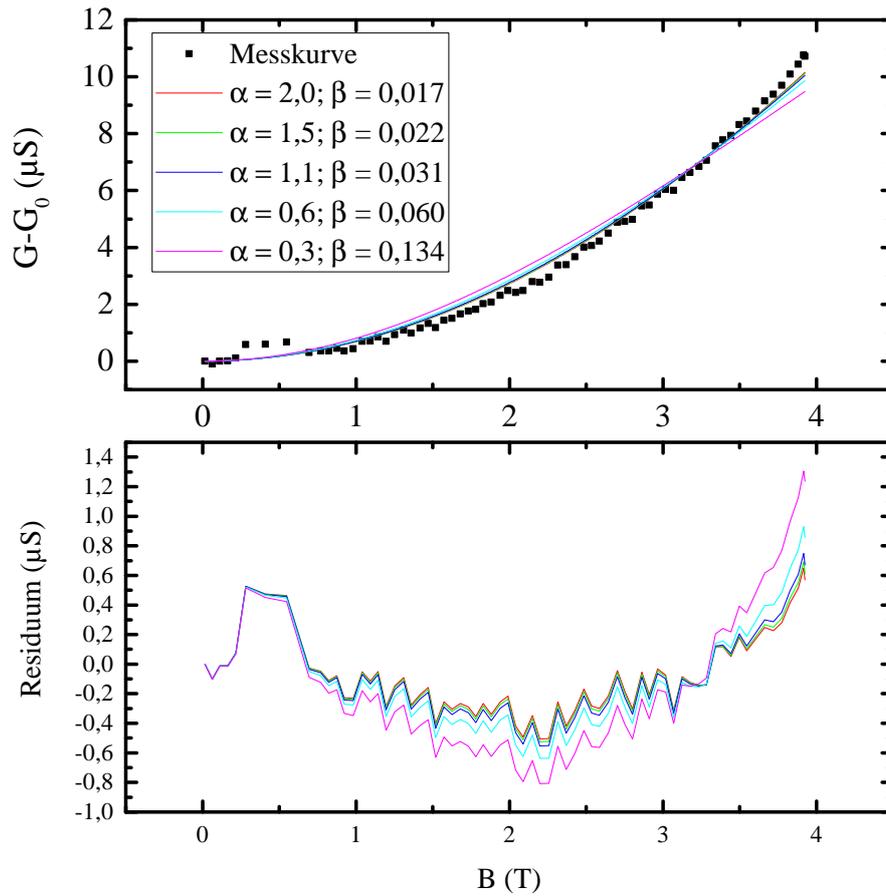


Abbildung A.9: Überprüfung des Modells für parallelen MLW, Gleichung (2.40). Die Messung G_{\perp} des 40 BL dicken Bismuthfilms wird für verschiedene Parameter α zwischen 2 und 0,3 angepasst.

als freie Parameter gewählt und als Nebenbedingung die Erkenntnis aus Kapitel 6.2.2 verwendet: Die Transportkanäle sind gekoppelt, sodass α deutlich von -1 verschieden sein muss.

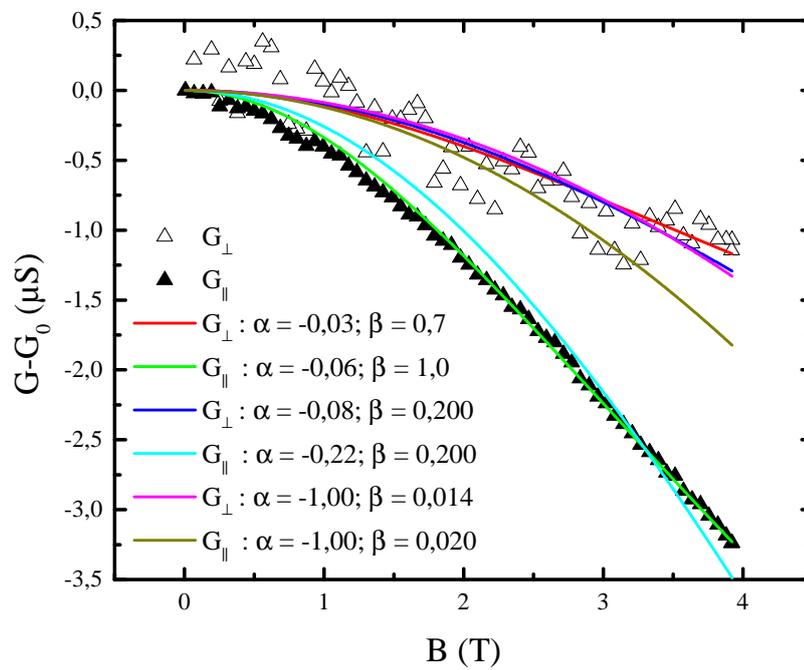


Abbildung A.10: Die Messung G_{\parallel} und G_{\perp} des 40 BL dicken Bismuthfilms wird für verschiedene Parameter α zwischen -1 und -0,03 angepasst.

A.5 XMCD

In der Abbildung A.11 sind die XAS- und XMCD-Messungen an den Fe $L_{2/3}$ -Kanten für normalen Einfall (a) und streifenden Einfall (b) dargestellt. Die Fe-Zusatzbedeckung beträgt 1 % ML.

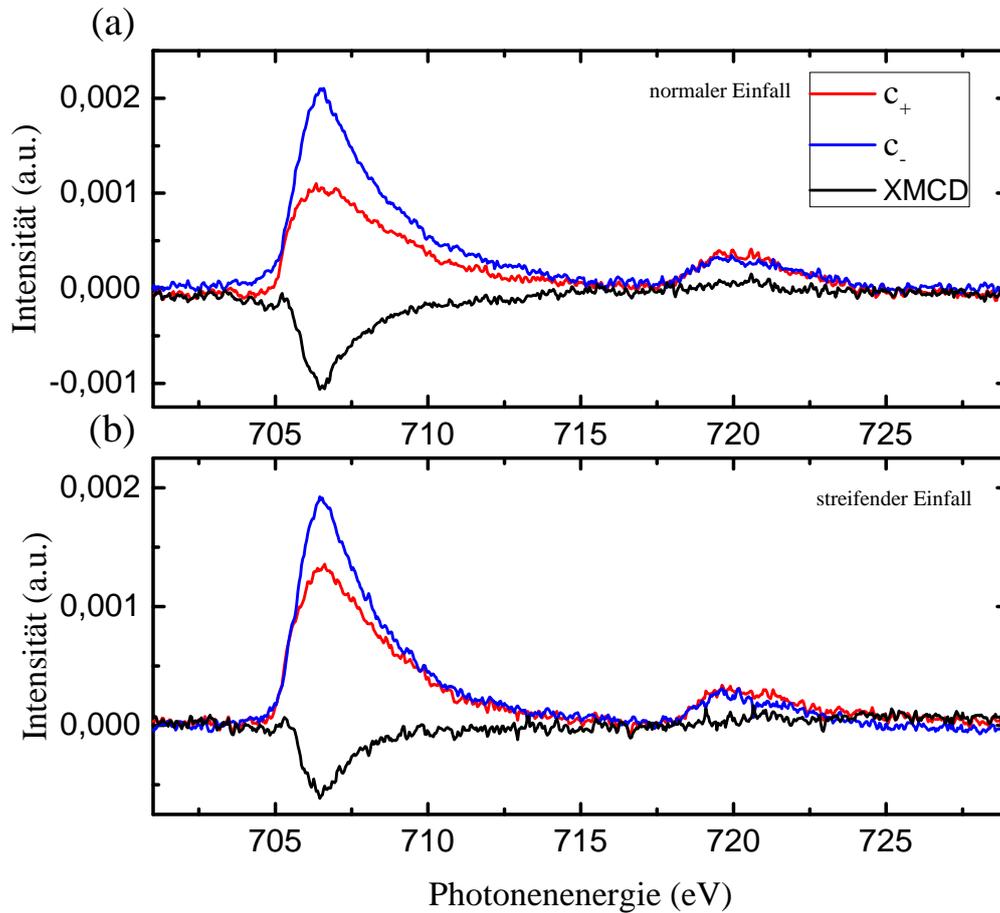


Abbildung A.11: (a) XAS/XMCD Messungen in einem externen magnetischen Feld der Stärke 6,8 T parallel zum einfallenden Röntgenstrahl der Fe $L_{2/3}$ -Kanten bei (a) normalem- und (b) streifendem Einfall. Die Zusatzbedeckung 1 %.

LITERATUR

1. Hofmann, P. The surfaces of bismuth: Structural and electronic properties. *Progress in Surface Science* **81**, 191–245 (Jan. 2006).
2. Sandomirkii, V. Quantum Size Effect in a Semimetal Film. *Soviet Journal of Experimental and Theoretical Physics Letters* **25**, 101 (1967).
3. Hirahara, T. *u. a.* Role of Spin-Orbit Coupling and Hybridization Effects in the Electronic Structure of Ultrathin Bi Films. *Physical Review Letters* **97**. doi:10.1103/physrevlett.97.146803 (Okt. 2006).
4. Ast, C. R. & Höchst, H. Fermi Surface of Bi(111) Measured by Photoemission Spectroscopy. *Physical Review Letters* **87**. doi:10.1103/physrevlett.87.177602 (Okt. 2001).
5. Ast, C. R. & Höchst, H. Indication of Charge-Density-Wave Formation in Bi(111). *Physical Review Letters* **90**. doi:10.1103/physrevlett.90.016403 (Jan. 2003).
6. Aitani, M. *u. a.* In-situ Magnetotransport Measurements in Ultrathin Bi Films: Evidence for Surface-Bulk Coherent Transport. *Physical Review Letters* **113**. doi:10.1103/physrevlett.113.206802 (Nov. 2014).
7. Xiao, S., Wei, D. & Jin, X. Bi(111) Thin Film with Insulating Interior but Metallic Surfaces. *Physical Review Letters* **109**. doi:10.1103/physrevlett.109.166805 (Okt. 2012).
8. Hirahara, T. *u. a.* Large surface-state conductivity in ultrathin Bi films. *Applied Physics Letters* **91**, 202106 (Jan. 2007).
9. Lükermann, D. *u. a.* Sensing surface states of Bi films by magnetotransport. *Physical Review B* **83**. doi:10.1103/physrevb.83.245425 (Juni 2011).
10. Jnawali, G. *u. a.* Manipulation of Electronic Transport in the Bi(111) Surface State. *Physical Review Letters* **108**. doi:10.1103/physrevlett.108.266804 (Juni 2012).
11. Miyata, N. *u. a.* Development of a Surface Magneto-Transport Measurement System with Multi-Probes and the In situ Measurement of Bi Nanofilms Prepared on Si (111) 7x7. *Japanese Journal of Applied Physics* **50**, 036602 (2011).
12. Takayama, A. *u. a.* Giant Out-of-Plane Spin Component and the Asymmetry of Spin Polarization in Surface Rashba States of Bismuth Thin Film. *Physical Review Letters* **106**. doi:10.1103/physrevlett.106.166401 (Apr. 2011).
13. Takayama, A. *u. a.* Tunable Spin Polarization in Bismuth Ultrathin Film on Si(111). *Nano Letters* **12**, 1776–1779 (Apr. 2012).

14. Takayama, A. *u. a.* One-Dimensional Edge States with Giant Spin Splitting in a Bismuth Thin Film. *Physical Review Letters* **114**. doi:10.1103/physrevlett.114.066402 (Feb. 2015).
15. Cottin, M. C. *u. a.* Anisotropic scattering of surface state electrons at a point defect on Bi(111). *Applied Physics Letters* **98**, 022108 (Jan. 2011).
16. Miao, L. *u. a.* Evolution of the electronic structure in ultrathin Bi(111) films. *Physical Review B* **91**. doi:10.1103/physrevb.91.205414 (Mai 2015).
17. Drozdov, I. K. *u. a.* One-dimensional topological edge states of bismuth bilayers. *Nature Physics* **10**, 664–669 (Aug. 2014).
18. Yang, F. *u. a.* Spatial and Energy Distribution of Topological Edge States in Single Bi(111) Bilayer. *Physical Review Letters* **109**. doi:10.1103/physrevlett.109.016801 (Juli 2012).
19. Hirahara, T. *u. a.* Interfacing 2D and 3D Topological Insulators: Bi(111) Bilayer on Bi₂Te₃. *Physical Review Letters* **107**. doi:10.1103/physrevlett.107.166801 (Okt. 2011).
20. Wada, M. *u. a.* Localized edge states in two-dimensional topological insulators: Ultrathin Bi films. *Physical Review B* **83**. doi:10.1103/physrevb.83.121310 (März 2011).
21. Liu, Z. *u. a.* Stable Nontrivial Z₂ Topology in Ultrathin Bi (111) Films: A First-Principles Study. *Physical Review Letters* **107**. doi:10.1103/physrevlett.107.136805 (Sep. 2011).
22. Murakami, S. Quantum Spin Hall Effect and Enhanced Magnetic Response by Spin-Orbit Coupling. *Physical Review Letters* **97**. doi:10.1103/physrevlett.97.236805 (Dez. 2006).
23. V. Klitzing, K., Dorda, G. & Pepper, M. New Method for High-Accuracy Determination of the Fine-Structure Constant Based on Quantized Hall Resistance. *Physical Review Letters* **45**, 494–497 (Aug. 1980).
24. Thouless, D. J. *u. a.* Quantized Hall Conductance in a Two-Dimensional Periodic Potential. *Physical Review Letters* **49**, 405–408 (Aug. 1982).
25. König, M. *u. a.* Quantum Spin Hall Insulator State in HgTe Quantum Wells. *Science* **318**, 766–770 (Nov. 2007).
26. Hsieh, D. *u. a.* A topological Dirac insulator in a quantum spin Hall phase. *Nature* **452**, 970–974 (Apr. 2008).
27. Fu, L. & Kane, C. L. Topological insulators with inversion symmetry. *Physical Review B* **76**. doi:10.1103/physrevb.76.045302 (Juli 2007).
28. Chang, C.-Z. *u. a.* High-precision realization of robust quantum anomalous Hall state in a hard ferromagnetic topological insulator. *Nature materials* **14**, 473–477 (2015).

29. Partin, D. *u. a.* Growth and characterization of epitaxial bismuth films. *Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics Processing and Phenomena* **7**, 348–353 (1989).
30. Heremans, J. *u. a.* Cyclotron resonance in epitaxial Bi_{1-x}Sb_x films grown by molecular-beam epitaxy. *Physical Review B* **48**, 11329 (1993).
31. Tang, S. & Dresselhaus, M. S. Phase diagrams of Bi_{1-x}Sb_x thin films with different growth orientations. *Physical Review B* **86**, 075436 (2012).
32. Kuroda, K. *u. a.* Experimental verification of the surface termination in the topological insulator TlBiSe₂ using core-level photoelectron spectroscopy and scanning tunneling microscopy. *Physical Review B* **88**, 245308 (2013).
33. Pielmeier, F. *u. a.* Response of the topological surface state to surface disorder in TlBiSe₂. *New Journal of Physics* **17**, 023067 (2015).
34. Benia, H. M. *u. a.* Surface band structure of Bi_{1-x}Sb_x (111). *Physical Review B* **91**, 161406 (2015).
35. Taskin, A., Segawa, K. & Ando, Y. Oscillatory angular dependence of the magnetoresistance in a topological insulator Bi_{1-x}Sb_x. *Physical Review B* **82**, 121302 (2010).
36. Lenoir, B. *u. a.* Transport properties of Bi-rich Bi-Sb alloys. *Journal of Physics and Chemistry of Solids* **57**, 89–99 (1996).
37. Linder, J., Yokoyama, T. & Sudbø, A. Anomalous finite size effects on surface states in the topological insulator Bi₂Se₃. *Physical review B* **80**, 205401 (2009).
38. Zhang, Y. *u. a.* Crossover of the three-dimensional topological insulator Bi₂Se₃ to the two-dimensional limit. *Nature Physics* **6**, 584–588 (2010).
39. Lu, H.-Z. *u. a.* Massive Dirac fermions and spin physics in an ultrathin film of topological insulator. *Physical review B* **81**, 115407 (2010).
40. Nagao, T. *u. a.* Nanofilm Allotrope and Phase Transformation of Ultrathin Bi Film on Si (111)-7×7. *Physical review letters* **93**, 105501 (2004).
41. Lin, C. J. *u. a.* Parallel field magnetoresistance in topological insulator thin films. *Physical Review B* **88**. doi:10.1103/physrevb.88.041307 (Juli 2013).
42. Stróżecka, A., Eiguren, A. & Pascual, J. I. Quasiparticle Interference around a Magnetic Impurity on a Surface with Strong Spin-Orbit Coupling. *Physical Review Letters* **107**. doi:10.1103/physrevlett.107.186805 (Okt. 2011).
43. Xia, Y. *u. a.* Electrons on the surface of Bi₂Se₃ form a topologically-ordered two dimensional gas with a non-trivial Berry's phase. *arXiv preprint arXiv:0812.2078* (2008).
44. Hsieh, D. *u. a.* Observation of Unconventional Quantum Spin Textures in Topological Insulators. *Science* **323**, 919–922 (Feb. 2009).

45. Chang, J. *u. a.* Intrinsic and extrinsic perturbations on the topological insulator Bi₂Se₃ surface states. *arXiv preprint arXiv:1012.2927* (2010).
46. Wray, L. A. *u. a.* A topological insulator surface under strong Coulomb, magnetic and disorder perturbations. *Nature Physics* **7**, 32–37 (2011).
47. Klein, C. *u. a.* Barrier-free subsurface incorporation of 3d metal atoms into Bi(111) films. *Physical Review B* **91**. doi:10.1103/physrevb.91.195441 (Mai 2015).
48. Doniach, S. The Kondo lattice and weak antiferromagnetism. *Physica B+ C* **91**, 231–234 (1977).
49. Seah, M. P. & Dench, W. Quantitative electron spectroscopy of surfaces: a standard data base for electron inelastic mean free paths in solids. *Surface and interface analysis* **1**, 2–11 (1979).
50. Von Hoegen, M. H. Growth of semiconductor layers studied by spot profile analysing low energy electron diffraction – Part I. *Zeitschrift für Kristallographie - Crystalline Materials* **214**. doi:10.1524/zkri.1999.214.10.591 (Jan. 1999).
51. Lükermann, D. *Spin-Bahn-Kopplung in niedrigdimensionalen Strukturen auf Oberflächen – Wachstum und elektronischer Transport* Diss. (Fakultät für Mathematik und Physik der Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover, 2013).
52. Lent, C. & Cohen, P. Diffraction from stepped surfaces: I. Reversible surfaces. *Surface science* **139**, 121–154 (1984).
53. Henzler, M. Quantitative evaluation of random distributed steps at interfaces and surfaces. *Surface Science* **73**, 240–251 (1978).
54. Meyer zu Heringdorf, F.-J. & Horn-von Hoegen, M. Reciprocal space mapping by spot profile analyzing low energy electron diffraction. *Review of scientific instruments* **76**, 085102 (2005).
55. Ibach, H. & Lüth, H. *Festkörperphysik* doi:10.1007/978-3-662-35366-0 (Springer Berlin Heidelberg, 1990).
56. Grüneisen, E. & Reddemann, H. Elektronen- und Gitterleitung beim Wärme- fluß in Metallen. *Annalen der Physik* **412**, 843–877 (1934).
57. Bergmann, G. Physical interpretation of weak localization: A time-of-flight experiment with conduction electrons. *Physical Review B* **28**, 2914–2920 (Sep. 1983).
58. Bergmann, G. Weak localization in thin films. *Physics Reports* **107**, 1–58 (Mai 1984).
59. Hikami, S., Larkin, A. I. & Nagaoka, Y. Spin-Orbit Interaction and Magnetoresistance in the Two Dimensional Random System. *Progress of Theoretical Physics* **63**, 707–710 (Feb. 1980).
60. Steinberg, H. *u. a.* Electrically tunable surface-to-bulk coherent coupling in topological insulator thin films. *Physical Review B* **84**. doi:10.1103/physrevb.84.233101 (Dez. 2011).

61. Chen, J. *u. a.* Tunable surface conductivity in Bi₂Se₃ revealed in diffusive electron transport. *Physical Review B* **83**. doi:10.1103/physrevb.83.241304 (Juni 2011).
62. Kim, D. *u. a.* Coherent topological transport on the surface of Bi₂Se₃. *Nature communications* **4**. doi:10.1038/ncomms3040 (2013).
63. B. L-Al'tshuler, A. G. A. Magnetoresistance of thin films and wires in a longitudinal magnetic field. *JETP Letters* **33**, 515–518 (Feb. 1981).
64. Maekawa, S. & Fukuyama, H. Magnetoresistance in Two-Dimensional Disordered Systems: Effects of Zeeman Splitting and Spin-Orbit Scattering. *Journal of the Physical Society of Japan* **50**, 2516–2524 (Aug. 1981).
65. Beenakker, C. W. J. & van Houten, H. Boundary scattering and weak localization of electrons in a magnetic field. *Physical Review B* **38**, 3232–3240 (Aug. 1988).
66. Raichev, O. E. & Vasilopoulos, P. Weak-localization corrections to the conductivity of double quantum wells. *Journal of Physics: Condensed Matter* **12**, 589–600 (Jan. 2000).
67. Der Pauw, L. J. V. A method of measuring the resistivity and Hall coefficient on lamellae of arbitrary shape. *Philips Technical Review* **20**, 220–224 (1958).
68. Rashba, E. I. Properties of semiconductors with an extremum loop. 1. Cyclotron and combinational resonance in a magnetic field perpendicular to the plane of the loop. *Sov. Phys. Solid State* **2**, 1109–1122 (1960).
69. Dil, J. H. Spin and angle resolved photoemission on non-magnetic low-dimensional systems. *Journal of Physics: Condensed Matter* **21**, 403001 (2009).
70. Moore, J. E. The birth of topological insulators. *Nature* **464**, 194–198 (2010).
71. Ando, Y. Topological insulator materials. *Journal of the Physical Society of Japan* **82**, 102001 (2013).
72. Hasan, M. Z. & Kane, C. L. Colloquium: Topological insulators. *Reviews of Modern Physics* **82**, 3045–3067 (Nov. 2010).
73. Stöhr, J. & Siegmann, H. C. *Magnetism: From Fundamentals to Nanoscale Dynamics* doi:10.5860/choice.44-4514 (Springer, 2006).
74. Stöhr, J. Exploring the microscopic origin of magnetic anisotropies with X-ray magnetic circular dichroism (XMCD) spectroscopy. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* **200**, 470–497 (Okt. 1999).
75. Carra, P. *u. a.* X-ray circular dichroism and local magnetic fields. *Physical Review Letters* **70**, 694–697 (Feb. 1993).
76. Crocombette, J., Thole, B. & Jollet, F. The importance of the magnetic dipole term in magneto-circular x-ray absorption dichroism for 3d transition metal compounds. *Journal of Physics: Condensed Matter* **8**, 4095 (1996).

77. Thole, B. T. *u. a.* X-ray circular dichroism as a probe of orbital magnetization. *Physical Review Letters* **68**, 1943–1946 (März 1992).
78. Chelikowsky, J. R. & Cohen, M. L. Nonlocal pseudopotential calculations for the electronic structure of eleven diamond and zinc-blende semiconductors. *Physical Review B* **14**, 556–582 (Juli 1976).
79. Takayanagi, K. *u. a.* Structure analysis of Si(111)-7 × 7 reconstructed surface by transmission electron diffraction. *Surface Science* **164**, 367–392 (Dez. 1985).
80. Cucka, P. & Barrett, C. S. The crystal structure of Bi and of solid solutions of Pb, Sn, Sb and Te in Bi. *Acta Crystallographica* **15**, 865–872 (Sep. 1962).
81. Mayrhofer-Reinhartshuber, M. *u. a.* Helium atom scattering investigation of the Sb(111) surface. *Journal of Physics: Condensed Matter* **25**, 395002 (Aug. 2013).
82. Liu, Y. & Allen, R. E. Electronic structure of the semimetals Bi and Sb. *Physical Review B* **52**, 1566–1577 (Juli 1995).
83. Dismukes, J. P. *u. a.* Lattice parameter and density in bismuth-antimony alloys. *Journal of Chemical & Engineering Data* **13**, 317–320 (Juli 1968).
84. Komnik, I. F. & Andrievskii, V. Kinetic properties of bismuth thin films. *Fizika Nizkikh Temperatur* **1**, 104–119 (1975).
85. Jezequel, G. *u. a.* Electronic structure of the Bi(111) surface. *Physical Review B* **33**, 4352–4355 (März 1986).
86. Tanaka, A. *u. a.* Bulk and surface electronic structures of the semimetal Bi studied by angle-resolved photoemission spectroscopy. *Physical Review B* **59**, 1786–1791 (Jan. 1999).
87. Ast, C. R. & Höchst, H. Two-dimensional band structure and self-energy of Bi (111) near the Gamma point. *Physical Review B* **66**, 125103 (2002).
88. Koroteev, Y. M. *u. a.* Strong Spin-Orbit Splitting on Bi Surfaces. *Physical Review Letters* **93**. doi:10.1103/physrevlett.93.046403 (Juli 2004).
89. Hirahara, T. *u. a.* Origin of the surface-state band-splitting in ultrathin Bi films: from a Rashba effect to a parity effect. *New Journal of Physics* **10**, 083038 (Aug. 2008).
90. Hirahara, T. *u. a.* Direct observation of spin splitting in bismuth surface states. *Physical Review B* **76**. doi:10.1103/physrevb.76.153305 (Okt. 2007).
91. Kimura, A. *u. a.* Strong Rashba-Type Spin Polarization of the Photocurrent from Bulk Continuum States: Experiment and Theory for Bi(111). *Physical Review Letters* **105**. doi:10.1103/physrevlett.105.076804 (Aug. 2010).
92. Guo, H. *u. a.* Evolution of surface states in Bi_{1-x}Sb_x alloys across the topological phase transition. *Physical Review B* **83**. doi:10.1103/physrevb.83.201104 (Mai 2011).

93. Nishide, A. *u. a.* Direct mapping of the spin-filtered surface bands of a three-dimensional quantum spin Hall insulator. *Physical Review B* **81**. doi:10.1103/physrevb.81.041309 (Jan. 2010).
94. Nakamura, F. *u. a.* Topological transition in Bi_{1-x}Sb_x studied as a function of Sb doping. *Physical Review B* **84**. doi:10.1103/physrevb.84.235308 (Dez. 2011).
95. Zhang, H.-J. *u. a.* Electronic structures and surface states of the topological insulator Bi_{1-x}Sb_x. *Physical Review B* **80**. doi:10.1103/physrevb.80.085307 (Aug. 2009).
96. Sauerbrey, G. Verwendung von Schwingquarzen zur Wägung dünner Schichten und zur Mikrowägung. *Zeitschrift für Physik* **155**, 206–222 (Apr. 1959).
97. Jnawali, G. *u. a.* Homoepitaxial growth of Bi(111). *Physical Review B* **78**. doi:10.1103/physrevb.78.035321 (Juli 2008).
98. Piamonteze, C. *u. a.* X-Treme beamline at SLS: X-ray magnetic circular and linear dichroism at high field and low temperature. *Journal of Synchrotron Radiation* **19**, 661–674 (Juli 2012).
99. Kammler, M. & von Hoegen, M. H. Low energy electron diffraction of epitaxial growth of bismuth on Si(111). *Surface Science* **576**, 56–60 (Feb. 2005).
100. Nagao, T. *u. a.* Strong lateral growth and crystallization via two-dimensional allotropic transformation of semi-metal Bi film. *Surface Science* **590**, 247–252 (Sep. 2005).
101. Yaginuma, S. *u. a.* Origin of flat morphology and high crystallinity of ultrathin bismuth films. *Surface Science* **601**, 3593–3600 (Sep. 2007).
102. Yang, F. Y. Large Magnetoresistance of Electrodeposited Single-Crystal Bismuth Thin Films. *Science* **284**, 1335–1337 (Mai 1999).
103. Walker, E. S. *u. a.* Large-Area Dry Transfer of Single-Crystalline Epitaxial Bismuth Thin Films. *Nano Letters* **16**, 6931–6938 (Nov. 2016).
104. Ahn, Y. *u. a.* Thickness dependent surface microstructure evolution of bismuth thin film prepared by molecular beam deposition method. *Current Applied Physics* **12**, 1518–1522 (Nov. 2012).
105. Rudolph, M. & Heremans, J. J. Electronic and quantum phase coherence properties of bismuth thin films. *Applied Physics Letters* **100**, 241601 (Juni 2012).
106. Jnawali, G. *u. a.* Two-Dimensional Electron Transport and Scattering in Bi(111) Surface States. *e-Journal of Surface Science and Nanotechnology* **8**, 27–31 (2010).
107. Ke, C. *u. a.* Thickness-Induced Metal-Insulator Transition in Sb-doped SnO₂ Ultrathin Films: The Role of Quantum Confinement. *Scientific reports* **5**. doi:10.1038/srep17424 (2015).
108. Berchtold, K. & Huber, D. Transport Properties of Indium Antimonide Thin Films. *physica status solidi (b)* **33**, 425–429 (1969).

109. Marcano, N. *u. a.* Role of the surface states in the magnetotransport properties of ultrathin bismuth films. *Physical Review B* **82**. doi:10.1103/physrevb.82.125326 (Sep. 2010).
110. Volmers, N. J. *Influence of spin-orbit coupling on the electronic structure of low-dimensional systems* Diss. (Department Physik der Fakultät für Naturwissenschaften, Universität Paderborn, 2016).
111. Hirahara, T. *u. a.* Quantum well states in ultrathin Bi films: Angle-resolved photoemission spectroscopy and first-principles calculations study. *Physical Review B* **75**. doi:10.1103/physrevb.75.035422 (Jan. 2007).
112. Patthey, F., Schneider, W.-D. & Micklitz, H. Photoemission study of the Bi(111) surface. *Physical Review B* **49**, 11293–11296 (Apr. 1994).
113. Zhu, K. *u. a.* Quantum transport in the surface states of epitaxial Bi (111) thin films. *Physical Review B* **94**, 121401 (2016).
114. Zhang, H. B. *u. a.* Weak localization bulk state in a topological insulator Bi₂Te₃ film. *Physical Review B* **86**. doi:10.1103/physrevb.86.075102 (Aug. 2012).
115. Bian, G., Miller, T. & Chiang, T.-C. Passage from Spin-Polarized Surface States to Unpolarized Quantum Well States in Topologically Nontrivial Sb Films. *Physical Review Letters* **107**. doi:10.1103/physrevlett.107.036802 (Juli 2011).
116. Wu, L. *u. a.* A sudden collapse in the transport lifetime across the topological phase transition in (Bi_{1-x}In_x)₂Se₃. *Nature Physics* **9**, 410–414 (Juni 2013).
117. Hirahara, T. The Rashba and quantum size effects in ultrathin Bi films. *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena* **201**, 98–104 (Mai 2015).
118. Hirahara, T. *u. a.* Role of Quantum and Surface-State Effects in the Bulk Fermi-Level Position of Ultrathin Bi Films. *Physical Review Letters* **115**. doi:10.1103/physrevlett.115.106803 (Sep. 2015).
119. Kröger, P. *u. a.* Scattering of charge carriers by Cr impurities in magnetotransport on a Bi(111) ultra-thin film. *Journal of Physics: Condensed Matter* **26**, 225002 (Mai 2014).
120. Cottin, M. C. *u. a.* Interplay between Forward and Backward Scattering of Spin–Orbit Split Surface States of Bi(111). *Nano Letters* **13**, 2717–2722 (Juni 2013).
121. Schlenk, T. *u. a.* Controllable Magnetic Doping of the Surface State of a Topological Insulator. *Physical Review Letters* **110**. doi:10.1103/physrevlett.110.126804 (März 2013).
122. Scholz, M. R. *u. a.* Tolerance of Topological Surface States towards Magnetic Moments: Fe on Bi₂Se₃. *Physical Review Letters* **108**. doi:10.1103/physrevlett.108.256810 (Juni 2012).

123. Lu, H.-Z. & Shen, S.-Q. Weak localization of bulk channels in topological insulator thin films. *Physical Review B* **84**. doi:10.1103/physrevb.84.125138 (Sep. 2011).
124. Sologub, S. *u. a.* Diffusing magnetic Tb impurities and magnetotransport in strongly spin-polarized Bi films. *Physical Review B* **88**. doi:10.1103/physrevb.88.115412 (Sep. 2013).
125. Matetskiy, A. *u. a.* Adsorbate-induced modification of electronic band structure of epitaxial Bi(111) films. *Applied Surface Science* **406**, 122–127 (Juni 2017).
126. Ikeda, S. *u. a.* A perpendicular-anisotropy CoFeB–MgO magnetic tunnel junction. *Nature Materials* **9**, 721–724 (Juli 2010).
127. Cubukcu, M. *u. a.* Spin-orbit torque magnetization switching of a three-terminal perpendicular magnetic tunnel junction. *Applied Physics Letters* **104**, 042406 (Jan. 2014).
128. Rau, I. G. *u. a.* Reaching the magnetic anisotropy limit of a 3d metal atom. *Science* **344**, 988–992 (Mai 2014).
129. Weller, D. *u. a.* Microscopic Origin of Magnetic Anisotropy in Au/Co/Au Probed with X-Ray Magnetic Circular Dichroism. *Physical Review Letters* **75**, 3752–3755 (Nov. 1995).
130. Gambardella, P. *u. a.* Ferromagnetism in one-dimensional monatomic metal chains. *Nature* **416**, 301–304 (2002).
131. Miyamachi, T. *u. a.* Stabilizing the magnetic moment of single holmium atoms by symmetry. *Nature* **503**, 242–246 (Nov. 2013).
132. Gambardella, P. Giant Magnetic Anisotropy of Single Cobalt Atoms and Nanoparticles. *Science* **300**, 1130–1133 (Mai 2003).
133. Brune, H. & Gambardella, P. Magnetism of individual atoms adsorbed on surfaces. *Surface Science* **603**, 1812–1830 (Juni 2009).
134. Vondráček, M. *u. a.* Nickel: The time-reversal symmetry conserving partner of iron on a chalcogenide topological insulator. *Physical Review B* **94**. doi:10.1103/physrevb.94.161114 (Okt. 2016).
135. Shelford, L. R. *u. a.* Electronic structure of Fe and Co magnetic adatoms on Bi₂Te₃ surfaces. *Physical Review B* **86**. doi:10.1103/physrevb.86.081304 (Aug. 2012).
136. Eelbo, T. *u. a.* Strong out-of-plane magnetic anisotropy of Fe adatoms on Bi₂Te₃. *Physical Review B* **89**. doi:10.1103/physrevb.89.104424 (März 2014).
137. Stöhr, J & König, H. Determination of spin-and orbital-moment anisotropies in transition metals by angle-dependent X-ray magnetic circular dichroism. *Physical review letters* **75**, 3748 (1995).

138. Oguchi, T. & Shishidou, T. Anisotropic property of magnetic dipole in bulk, surface, and overlayer systems. *Physical Review B* **70**, 024412 (2004).
139. Piamonteze, C., Miedema, P. & de Groot, F. M. F. Accuracy of the spin sum rule in XMCD for the transition-metal L edges from manganese to copper. *Physical Review B* **80**. doi:10.1103/physrevb.80.184410 (Nov. 2009).
140. Teramura, Y., Tanaka, A. & Jo, T. Effect of Coulomb Interaction on the X-Ray Magnetic Circular Dichroism Spin Sum Rule in 3d Transition Elements. *Journal of the Physical Society of Japan* **65**, 1053–1055 (Apr. 1996).
141. Goering, E. X-ray magnetic circular dichroism sum rule correction for the light transition metals. *Philosophical Magazine* **85**, 2895–2911 (Sep. 2005).
142. Scherz, A. *u. a.* Limitations of integral XMCD sum-rules for the early 3d elements. *Physica Scripta* **2005**, 586 (2005).
143. Koch, J. *u. a.* Surface state conductivity in epitaxially grown Bi_{1-x}Sb_x (111) films. *New Journal of Physics* **18**, 093012 (2016).
144. R. Gross, A. M. *Solid States Physics* (Gruyter Oldenbourg, 2012).
145. Cho, S. *u. a.* Transport properties of Bi_{1-x}Sb_x alloy thin films grown on CdTe (111) B. *Physical Review B* **59**, 10691 (1999).
146. Jain, A. L. Temperature dependence of the electrical properties of bismuth-antimony alloys. *Physical Review* **114**, 1518 (1959).
147. Morelli, D., Partin, D. & Heremans, J. Galvanomagnetic properties of single-crystal bismuth-antimony thin films. *Semiconductor Science and Technology* **5**, S257 (1990).
148. Will, C. *u. a.* Effect of nanostructuring on the band structure and the galvanomagnetic properties in Bi_{1-x}Sb_x alloys. *Journal of Applied Physics* **114**, 193707 (2013).
149. Yim, W. & Amith, A. Bi_{1-x}Sb_x alloys for magneto-thermoelectric and thermomagnetic cooling. *Solid-State Electronics* **15**, 1141 (1972).
150. Shklovskii, B. I. & Efros, A. L. *Electronic properties of doped semiconductors* doi:10.1007/978-3-662-02403-4 (Springer Science & Business Media, 2013).
151. Thompson, N. The electrical resistance of bismuth alloys. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences* **155**, 111–123 (1936).
152. Landolt, G. *u. a.* Spin Texture of Bi₂Se₃ Thin Films in the Quantum Tunneling Limit. *Physical review letters* **112**, 057601 (2014).
153. Sze, S. & Ng, K. K. *Physics of Semiconductor Devices* doi:10.1002/0470068329 (John Wiley & Sons, Inc., Apr. 2006).
154. Songprakob, W. *u. a.* Infrared studies of hole-plasmon excitations in heavily-doped p-type MBE-grown GaAs:C. *Physical Review B* **62**, 4501–4510 (Aug. 2000).

SELBSTSTÄNDIGKEITSERKLÄRUNG

Hiermit erkläre ich die Dissertation selbst verfasst zu haben, keine Textabschnitte von Dritten oder eigener Prüfungsarbeiten ohne Kennzeichnung übernommen und alle benutzten Hilfsmittel und Quellen in der Arbeit angegeben zu haben.

Philipp Constantin Kröger

2017

LEBENS LAUF

Persönliche Angaben:

Geburtsdatum: 24.09.1985
Geburtsort: Bad-Driburg
Familienstand: ledig
Staatsangehörigkeit: Deutsch

Ausbildung:

Seit 09/2012 Promotion Physik, Leibniz Universität Hannover
10/2009 - 04/2012 Masterstudium Physik, Universität Paderborn
10/2006 - 09/2009 Bachelorstudium Physik, Universität Paderborn
06/1996 - 06/2006 Abitur an der Gesamtschule Elsen

Akademische Abschlüsse:

04/2012 Master of Science
Abschlussarbeit *Epitaktische ZnO-Schichten auf strukturierten Silizium-Oberflächen*
09/2009 Bachelor of Science,
Abschlussarbeit *Herstellung und Charakterisierung von Mikromembranen auf der Basis von II-VI Halbleitern*

PUBLIKATIONSLISTE

P. Kröger, M. Ruth, N. Weber and C. Meier *Carrier localization in ZnO quantum wires*, Appl. Phys. Lett. **100**, 263114 (2012) doi: 10.1063/1.4731767

P. Kröger, S. Sologub, C. Tegenkamp, H. Pfnür: *Scattering of charge carriers by Cr impurities in magnetotransport on a Bi(111) ultra-thin film*, J. Phys.: Condens. Matter **26** 225002 (2014) doi: 10.1088/0953-8984/26/22/225002

J. Koch, P. Kröger, H. Pfnür and C. Tegenkamp: *Surface state conductivity in epitaxially grown Bi_{1-x}Sb_x (111) films*, New J. Phys. **18** (2016) doi: 10.1088/1367-2630/18/9/093012

DANKSAGUNGEN

Das Beste kommt bekanntlich zum Schluss. Daher möchte ich an dieser Stelle allen Menschen die mich während meiner Promotion unterstützt haben Danke sagen.

Vielen Dank Herr Prof. Dr. Herbert Pfnür für die Möglichkeit meine Promotion an Ihrem Lehrstuhl durchführen zu dürfen, für die zahlreichen wissenschaftlichen Diskussionen und Ihre konstruktive Kritik, die mir oft neue Sichtweisen auf die Interpretation von Messdaten und auch Denkanstöße für weitere Experimente aufgezeigt hat. An zweiter Stelle, doch nicht weniger maßgeblich an dem Erfolg dieser Arbeit beteiligt, danke ich Prof. Dr. Christoph Tegenkamp. Für den angenehmen Führungsstil und die fruchtbaren wissenschaftlichen Diskussionen, die nicht selten dazu führten, aus jedem Messergebnis noch den letzten Rest an Informationen zu extrahieren.

Dr. Sergii Sologub danke ich für die erfolgreiche Zusammenarbeit, aus der eine schöne Veröffentlichung hervorgegangen ist.

Dr. Jan Nowakowski und dem gesamten PSI Team unter der Führung von Prof. Dr. Thomas Jung möchte ich für die Zusammenarbeit an der Swiss Light Source danken. Für die sehr gastfreundliche Atmosphäre und die gemeinsame wissenschaftliche Arbeit, die hoffentlich bald mit einer Publikation belohnt wird.

Vielen Dank auch an alle Bachelor und Master Studenten für die durchweg erfolgreichen Arbeiten in meinem Labor. Dazu zählen: Julian Koch, Haiyue Liu, Marianna Siemens und aktuell Marvin Detert, der seine Arbeit sicherlich in naher Zukunft abschließt.

Natürlich möchte ich auch allen Mitarbeiter des Instituts für Festkörperphysik der Abteilung ATMOS für die angenehme Arbeitsatmosphäre sowie allen Mitarbeitern der Werkstatt für die reibungslose Zusammenarbeit danken.

Besonderer Dank gilt der Expertenrunde: Johannes Aprojanz, Tammo Block, Monika Jäger, Thomas Langer, Daniel Lükermann und natürlich meinem langjährigen Büro-buddy Timo Lichtenstein, ohne den der Alltag sicher nur halb so witzig gewesen wäre.

Meiner Mutter Barabara Kröger, meinem Bruder Alexander Kröger und meiner Schwester Julia Marina Kröger danke ich für den Rückhalt nicht nur während der Promotion, sondern auch während des gesamten Studiums. Mama bald sind wir alle Doktoren, darauf kannst du wirklich stolz sein.

Zuletzt gilt mein Dank meiner Freundin Alexandra Genz, die mich eine lange Zeit meiner Promotion begleitet, mir immer Rückhalt gegeben und meine Macken, vor allem während der letzten sechs Monate, ertragen hat.