Transportuntersuchungen an magnetischen Halbleitern

Diplomarbeit
von
Marcus Oettinger

Universität Ulm
Abteilung Halbleiterphysik

Februar 2002

Eingereicht am:

bei der Fakultät für Naturwissenschaften der Universität Ulm

1. Gutachter: Prof. Dr. Andreas Waag

2. Gutachter: Prof. Dr. Hartmut Jex

Inhaltsverzeichnis

1 Einleitung **5**

2 Allgemeine Eigenschaften von GaMnAs und GaMnNAs **9**
2.1 Gitterstruktur 9
2.2 Bandstruktur 10
2.3 Magnetische Eigenschaften 11
2.4 Ferromagnetismus in GaMnAs 12
2.5 Stickstoffeinbau 14

3 Transportuntersuchungen an $Ga_{1-x}Mn_xAs$ **17**
3.1 Elektrischer Widerstand 17
3.2 Der Hall-Effekt 19
3.3 Anomaler Hall-Effekt 19
3.4 Transportmessungen 22
3.5 Bestimmung der Curie-Temperatur 39
3.6 Bestimmung der Ladungsträgerdichte 42
3.6.1 Abschätzung bei tiefer Temperatur 42
3.6.2 Abschätzung bei Raumtemperatur 47
3.6.3 Abschätzung der Beweglichkeit aus dem Schichtwiderstand 49
3.6.4 Bestimmung der Ladungsträgerdichte über Ramanstreuung 50
3.6.5 Zusammenfassung zur Bestimmung der Ladungsträgerdichte 51
3.7 Aufbau eines Magnetsystems für Transportuntersuchungen bei hohen Magnetfeldern 53

4 Injektion spinpolarisierter Ströme in Halbleiter **55**
4.1 Spinpolarisation mit der Esaki-Diode 55
4.2 Abschätzung der zu erwartenden Spinpolarisation 56
4.3 Nachweis der Spinpolarisation 61

5 Zusammenfassung und Ausblick **71**

Kapitel 1

Einleitung

Herkömmliche Elektronik funktioniert auf der Basis von Strömen, sie nutzt die Ladung von Elektronen. Elektronen tragen aber nicht nur Ladung, sondern besitzen darüberhinaus noch einen Eigendrehimpuls, den Spin, und ein damit verbundenes magnetisches Moment. Im Rahmen eines relativ neuen Forschungsgebietes, der Magneto- oder Spinelektronik (kurz Spintronic), wird inzwischen versucht, auch den Spin der Elektronen bzw. Löcher zu manipulieren, um so die magnetischen und die elektrischen Eigenschaften der Ladungsträger zu kombinieren. Spinabhängige Transportphänomene werden bereits in Leseköpfen für Festplatten ausgenutzt, in Zukunft sind auch Elemente wie Spintransistoren oder Speicherelemente, die auf magnetischer Basis funktionieren, denkbar [6, 37, 15].

Die Grundvoraussetzungen für die Entwicklung von Spintronic-Bauelementen sind zwei wichtige Punkte. Zunächst benötigt man die Möglichkeit der Injektion von spinpolarisierten Ladungsträgern, also Ladungsträgern mit einer ausgezeichneten Spineinstellung, in Halbleiter. Die in den Halbleiter injizierten spinpolarisierten Ladungsträger müssen dann über eine genügend lange Zeit und eine genügend lange Strecke erhalten bleiben, um in einem Bauelement verarbeitet zu werden. Aus diesen Gründen beschäftigt sich heute weltweit eine wachsende Zahl von Forschungsgruppen mit der Herstellung und Untersuchung von Materialien, die es erlauben, spinpolarisierte Ströme mit genügend großer Kohärenzlänge in Halbleiter zu injizieren [17, 34, 25]. Dazu werden hauptsächlich mangandotierte II-VI oder III-V Halbleiterverbindungen, aber auch Raumtemperaturferromagnete, beispielsweise Eisen [13], benutzt. Halbleitermaterialien bieten dabei den Vorteil, daß sie sich leichter in bestehende Halbleitertechnologie integrieren lassen. Speziell das ferromagnetische, p-leitende $Ga_{1-x}Mn_xAs$ eignet sich aufgrund seiner Leitfähigkeit und des einfachen Einbaus in GaAs-Heterostrukturen zur Untersuchung von Tranportphänomenen und der Injektion spinpolarisierter Ströme in Halbleiter. Die Spinkohärenz in

n-dotiertem GaAs wurde zuerst von einer amerikanischen Gruppe um D. D. Awshalom über zeitaufgelöste Faraday-Rotation (TRFR[1]) untersucht. Dabei wird über die Spinpräzession die zeitliche Konstanz einer festen Phasenbeziehung der Spins gemessen [27, 2]. Die längste Lebensdauer für ausgerichtete Spins, mehr als 100ns, ergibt sich aus den Experimenten bei einer Dotierung von $n = 1 \cdot 10^{16}$ 1/cm^3. Durch Anlegen einer Spannung an das zu untersuchende System läßt sich neben der Lebensdauer eines ausgerichteten Spins auch die Strecke bestimmen, die er im Material zurücklegen kann. Sie ergab sich aus den durchgeführten Experimenten zu 100μm, lang genug, um die Spins in Bauelementen verarbeiten zu können. Obwohl die Löcher im p-dotierten GaMnAs wegen ihrer stärkeren Wechselwirkung mit dem sie umgebenden Kristallgitter schneller dephasieren, kann wegen des niedrigen Mangan-Gehalts davon ausgegangen werden, daß sich die Spinlebensdauer auch hier in einem für Anwendungen nutzbaren Rahmen befindet.

Da zukünftige Bauelemente auf der Basis von Spins möglichst bei Raumtemperatur einsetzbar sein sollten, ist neben der Ladungsträgerdichte auch die Curietemperatur der verwendeten Materialien von besonderer Bedeutung. Da sich in Ferromagneten beide Größen aus Magnetotransportmessungen bestimmen lassen, scheint die Messung des Hall-Effekts auch für magnetische Halbleiter eine Möglichkeit für ihre Bestimmung. Hallmessungen werden in magnetischen Halbleitern allerdings durch das Auftreten des anomalen Halleffekts erschwert, speziell die Bestimmung der Ladungsträgerdichte wird dadurch sehr schwierig.

In Kapitel 2 soll zunächst auf die allgemeinen Eigenschaften der Materialsysteme $Ga_{1-x}Mn_xAs$ und $Ga_{1-x-y}Mn_xN_yAs$ eingegegangen werden. Dabei wird ein qualitativer Überblick über die Gitter- und Bandstruktur des Materials gegeben und danach auf die magnetischen Eigenschaften wie das Zustandekommen des Ferromagnetismus in GaMnAs und seinen Einfluß auf Magnetotransportmessungen eingegangen.

Kapitel 3 beschäftigt sich mit dem Hauptthema dieser Diplomarbeit, Transportmessungen an den zu Verfügung stehenden Materialien. Neben der technischen Beschreibung der verwendeten Apperaturen und der durchgeführten Messungen wird eine Methode vorgestellt, allein aus Halleffekt- und Schichtwiderstandsmessungen die Curietemperatur T_C der gemessenen Schichten zu bestimmen. Weiterhin wird versucht, mit den aufgenommenen Meßreihen die Ladungsträgerdichte p und die Beweglichkeit μ abzuschätzen, was sich aber durch das Auftreten des anomalen Halleffekts in GaMnAs als schwierig erweist.

[1] *T*ime *R*esolved *F*araday *R*otation

In Kapitel 4 soll beleuchtet werden, wie mit einer Esaki-Diode ein Strom von Elektronen mit ausgezeichneter Spineinstellung in Halbleiter injiziert werden kann. Es wird versucht, eine Abschätzung des maximal zu erwartenden Polarisationsgrades für eine Struktur durchzuführen, die im Rahmen dieser Arbeit vermessen wurde. Die Ergebnisse der Messungen zu Injektion eines spinpolarisierten Stromes werden im selben Kapitel vorgestellt.

Schließlich werden die erreichten Ergebnisse in Kapitel 5 zusammengefaßt. Dabei soll zum Schluß auch ein Ausblick gegeben werden, wie die erreichten Ergebnisse verbessert werden können.

Kapitel 2

Allgemeine Eigenschaften von GaMnAs und GaMnNAs

Zunächst sollen die grundlegenden Eigenschaften des Materialsystems GaMn(N)As vorgestellt werden.

2.1 Gitterstruktur

$Ga_{1-x}Mn_xAs$ (im Folgenden kurz GaMnAs genannt) gehört zur Klasse der verdünnten magnetischen Halbleiter (Diluted Magnetic Semiconductors, kurz DMS), Legierungen eines nichtmagnetischen Halbleiterkristalls (GaAs) mit magnetischen Ionen (Mn). GaMnAs kristallisiert dabei wie der Wirtskristall GaAs in einer Zinkblendestruktur (s. Abbildung 2.1). Die Zink-

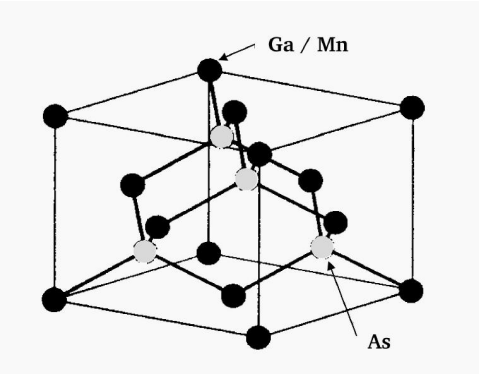


Abbildung 2.1: Gitterstruktur von GaMnAs und GaMnNAs. Die gefüllten Kreise symbolisieren die Ga-Atome, von denen einige durch Mangan bzw. Stickstoff ersetzt sind.

blendestruktur besteht aus jeweils einem kubisch flächenzentrierten (fcc[1]) Gitter für die beiden Atomsorten (Ga und As), die um jeweils $\frac{1}{4}$ der Raumdiagonale gegeneinander verschoben sind. Die Herstellung von $Ga_{1-x}Mn_xAs$ erfolgt mittels Molekularstrahlepitaxie (MBE[2]) im Ultrahochvakuum. Dabei

[1] engl.: *f*ace *c*entered *c*ubic
[2] engl.: *M*olecular *B*eam *E*pitaxy

besetzen die Manganatome bei geringen Mn-Konzentrationen im GaMnAs zufällig über den Kristall verteilt Galliumplätze im Gitter [10], bei Konzentrationen über etwa 10% ist kein epitaktisches Wachstum mehr möglich [35]. Das Problem bei der Herstellung war bis vor etwa 6 Jahren, daß sich bei der optimalen Wachstumstemperatur für GaAs (Substrattemperatur $T_S \approx 600°C$) nur wenige magnetische Ionen in das Wirtsgitter einbauen lassen, da die Löslichkeit der Mn-Atome in GaAs unter diesen Bedingungen nur etwa 10^{18} Atome/cm^3 beträgt. Wenn mehr Mangan zur Verfügung gestellt wird, so bildet sich eine energetisch günstigere zweite Phase, MnAs, die zur Bildung von MnAs-Komplexen in der wachsenden Schicht führt. Damit erhält man bei HT-Wachstum (Hochtemperatur-Wachstum) keine homogene ternäre Schicht mehr. Um eine höhere Mangankonzentration zu erreichen, wird das Material heute über LT-MBE (Low Temperature MBE) bei Substrattemperaturen von etwa 250° C unter Nichtgleichgewichstsbedingungen gewachsen. Dabei steht nicht genügend thermische Energie zur Verfügung, um die MnAs-Phase auszubilden, es kann kristallines GaMnAs mit einer Mn-Konzentration bis zu etwa 10% gewachsen werden. Das LT-Wachstum von GaMnAs wurde erstmals von H. Ohno 1996 durchgeführt [32].

2.2 Bandstruktur

Bei LT-GaMnAs handelt es sich um einen hochdotierten kompensierten Halbleiter, der aufgrund des Tieftemperaturwachstums im Nichtgleichgewicht viele Punktdefekte aufweist. Dadurch ist die Bandstruktur des Materials sehr kompliziert. Eine theoretische Beschreibung existiert bislang noch nicht, so daß die Bandstruktur nur qualitativ vorgestellt werden kann.

Um diese qualitative Vorstellung der Bandstruktur zu erhalten, kann davon ausgegangen werden, daß sich im Gegensatz zu HT-GaMnAs kein isoliertes Manganniveau mehr ergibt, sondern ein verbreitertes Mn-Akzeptorband. Man nimmt an, daß die Mitte dieses Akzeptorbands der Aktivierungsenergie des isolierten Mn-Niveaus

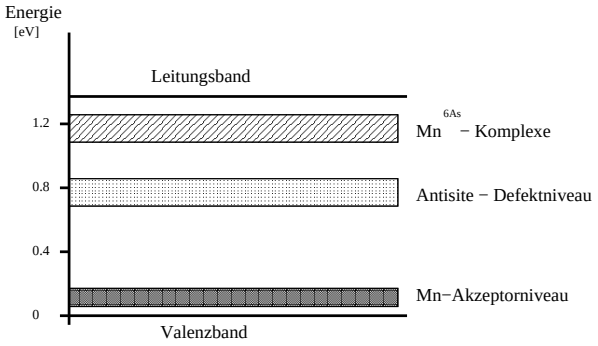


Abbildung 2.2: Schematische Bandstruktur von GaMnAs.

in HT-GaMnAs von $E_A \approx 113$meV entspricht [24]. Während des Wachstums baut sich bei LT-GaMnAs durch den Überschuß von Arsen ein gewisser Teil der As-Atome als Punktdefekte auf Ga-Gitterplätzen ein, die ein tiefes donatorartiges Störstellenband (As_i) in der Mitte der Bandlücke von 1.36eV bei Raumtemperatur bilden und die Löcher im Material teilweise kompensieren [31].

2.3 Magnetische Eigenschaften

Die Mn^{++}-Ionen, die im GaAs-Gitter die Plätze einiger Atome des Gallium (III. Hauptgruppe) besetzen, bilden im Material einen Akzeptor, da ihnen ein Elektron fehlt, um die Bindungen in GaAs vollständig abzusättigen. Diese Akzeptoren überkompensieren die durch das LT-Wachstum vorhandenen Antisite-Donatoren. Es bildet sich ein Mn-Loch-Komplex mit dem Gesamtdrehimpuls $J = (S+j) = 1$. Der Grundzustand ergibt sich aus einer antiferromagnetischen Kopplung zwischen dem Spin des Mangankerns $S = \frac{5}{2}$ und dem Spin eines schweren Loches $j = \frac{3}{2}$ [10]. Wenn die Austauschkopplung mit ε bezeichnet wird, ergeben sich bei den Energien 2ε, 5ε und 9ε angeregte Zustände mit den Drehimpulsen J =2, 3 und 4 [10]. Die einzelnen Niveaus spalten im magnetischen Feld in jeweils $2(J+1)$ Energieniveaus auf, wobei sich die Niveaus mit Drehimpuls $J = 1$ und $J = 2$ bei etwa 48T kreuzen. Die Abhängigkeit der Niveaus vom angelegten Magnetfeld ist in Abbildung 2.3 dargestellt.

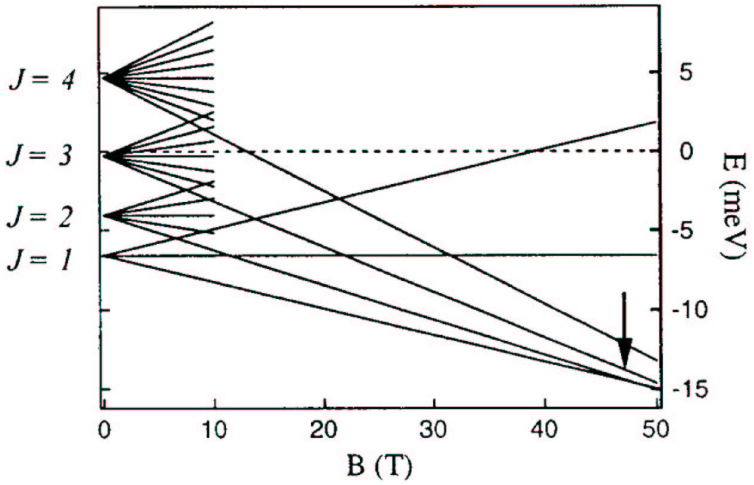


Abbildung 2.3: Aufspaltung der Energieniveaus eines isolierten Mn-Loch-Komplexes im Magnetfeld (aus [10])

Dabei kann angenommen werden, daß bei niedrigen Temperaturen der Zustand $J = 1$ als Einziger einen Einfluß auf das Verhalten von GaMnAs hat [10].

2.4 Ferromagnetismus in GaMnAs

Unterhalb der Curie-Temperatur T_C zeigen Messungen der spontanen Magnetisierung an GaMnAs mittels SQUID (Superconducting Quantum Interference Device) einen steilen Anstieg mit sinkender Temperatur, der auf eine Änderung des magnetischen Verhaltens der Probe schliessen läßt. Abbildung 2.4 zeigt eine SQUID-Messung an einer Probe aus Ulm mit 1.36% Mn und 0.8% N. Anders als bei II-VI-Halbleitern, bei denen ein spin-glass-Übergang beobachtet wird [14], wird GaMnAs unterhalb der Curie-Temperatur ferromagnetisch, was die für ferromagnetische Materialien typische Hysteresekurve einer GaMnAs-Schicht mit einem Mangangehalt von 3.5% in Abbildung 2.5 zeigt. Durch Messung der

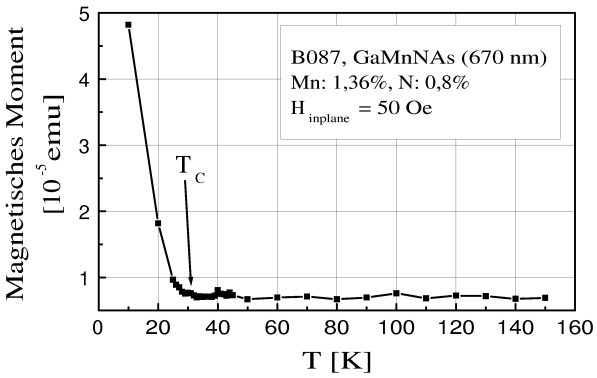


Abbildung 2.4: Magnetisierungsmessungen der Probe B087 mit 1.36% Mn und 0.79% N mittels SQUID.

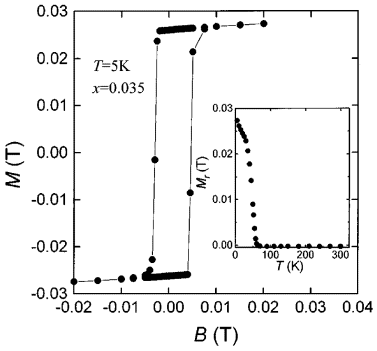


Abbildung 2.5: Hysteresekurve einer Probe mit 3.5% Mangangehalt (aus [32]).

spontanen Magnetisierung mit einem einen SQUID erhält man eine einfache Möglichkeit zur Bestimmung der Curietemperatur T_{C} . Sie kann wie in Abbildung 2.4 dargestellt bei Auftragung des magnetischen Moments gegen die Temperatur direkt aus dem Kurvenverlauf abgelesen werden.

Qualitativ läßt sich der Mechanismus des ferromagnetischen Übergangs in GaMnAs mit Hilfe des Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida-Modells (RKKY) verstehen. Die ferromagnetische Ordnung in GaMnAs beruht auf der indirekten Kopplung der magnetischen Momente der magnetischen Ionen über freie Ladungsträger. In GaMnAs existieren zwei Arten der Austauschwechselwirkung, die Wechselwirkung zwischen zwei Manganspins und die Wechselwirkung zwischen den Spins der Löcher und den Spins lokalisierter Mn-Kerne. Die Wechselwirkung zwischen zwei Mn-Atomen an den Orten r_{i} und r_{j} mit den Spins S_{i} und S_{j} läßt sich dem Hamilton-Operator

$$H_{\mathrm{ij}} = -J_{\mathrm{ij}}\, S_{\mathrm{i}}\, S_{\mathrm{j}} \tag{2.1}$$

beschreiben. Der Hamilton-Operator für die Austauschwechselwirkung zwischen Spin s der Löcher und dem Spin S der Mangan-Kerne lautet

$$H_{\mathrm{i}} = -Is \cdot S\delta(R - R_{\mathrm{i}}) \tag{2.2}$$

Das Austauschintegral I beschreibt die Kopplung der beteiligten Spins. Diese Wechselwirkung zwischen einem Loch und einem Mn-Atom ist antiferromagnetischer Natur. Da sich die spinpolarisierten Löcher jedoch durch den Kristall bewegen und dabei mit weiteren Mn-Atomen wechselwirken können, kommt es zur Parallelstellung der einzelnen Mn-Spins, wenn die postitive Dotierung hoch genug ist. Mit Hilfe der Ladungsträgerdichte an der Fermi-Kante [19]

$$\rho_{\mathrm{d}}(\varepsilon_{\mathrm{F}}) = \pi^{1-d}\left(\frac{2}{\pi}\right)^{(d-2)(d-3)/2} m^{*}\frac{k_{\mathrm{F}}^{(d-2)}}{\hbar^{2}} \tag{2.3}$$

(d: Zahl der Dimensionen, m^*: effektive Masse der Ladungsträger, k_{F} : Fermi-Vektor) kann die Curietemperatur folgendermassen geschrieben werden [19]:

$$\Theta_{\mathrm{C}} \propto S(S+1)N_0 I^2 \rho_{\mathrm{d}}(\varepsilon_{\mathrm{F}}) \tag{2.4}$$

In der obigen Gleichung bedeutet S wieder den Spin der Mn-Atome, I das Austauschintegral, ε_{F} die Fermi-Energie und N_0 die Konzentration der magnetischen Ionen. Daraus läßt sich ablesen, daß sich die Curietemperatur direkt proportional zur effektiven Masse m^* der Löcher und zur Ladungsträgerdichte $\rho_{\mathrm{d}}(\varepsilon_{\mathrm{F}})$ verhält.

Die Magnetisierung M wird in der Molekularfeldtheorie durch die äußere Feldstärke H und die durch die Ladungsträger selbst induzierte Feldstärke

H^* verursacht und läßt sich durch eine modifizierte Brillouinfunktion B_S beschreiben [19]:

$$M(T,H) = g\mu_\mathrm{B}\, N_0 S B_\mathrm{S}\,(T + T_0, H + H^*) \tag{2.5}$$

Da für diese modifizierte Brillouinfunktion bei hohen Feldstärken H eine Sättigung erwartet wird, wird angenommen, daß die Magnetisierung für hohe Felder eine Sättigung erfährt.

2.5 Stickstoffeinbau

Mit einer von Zener entwickelten [39], auf Doppelaustausch beruhenden Theorie wurden von Dietl et al. die Curietemperaturen verschiedener manganhaltiger magnetischer Halbleiter errechnet [20]. Für GaMnAs ergibt sich eine Curietemperatur von $T_\mathrm{C} = 120\mathrm{K}$, was gut mit dem bisher höchsten erreichten Wert von $T_\mathrm{C} = 110\mathrm{K}$ [33] übereinstimmt. Das Modell nach

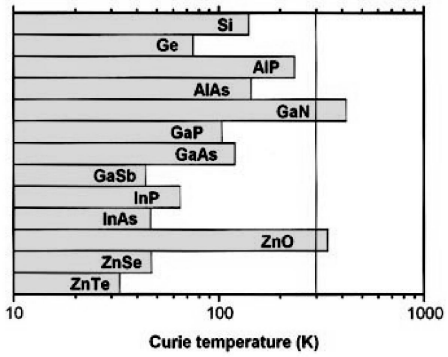


Abbildung 2.6: Berechnete Curietemperaturen verschiedener manganhaltiger Halbleiter (aus [20]).

Zener berücksichtigt die Austauschwechselwirkung zwischen den einzelnen nicht vollständig besetzten d-Schalen der Mn-Atome, die Wechselwirkung zwischen Spins der Mn-Atome und den Austausch zwischen einzelnen Ladungsträgern. Wenn dabei die Austauschwechselwirkung zwischen den Spins der Mn-Kerne und den Spins der Ladungsträger überwiegt, ergibt sich ferromagnetisches Vehalten. Die berechnete Curietemperatur T_C ist nach der Theorie proportional zur effektiven Konzentration der magnetischen Ionen $x_\mathrm{eff}\, N_0$, zur Zustandsdichte der Ladungsträger an der Fermi-Kante ρ_d nach Gleichung (2.3) und zum Betrag des Austauschintegrals zwischen den Spins der Mn-Kerne und der Ladungsträger I [19].

Die von Dietl benutzte Theorie gründet wieder auf der RKKY-Methode, die die Existenz der Fermi-Fläche voraussetzt, was bedeutet, daß das chemi-

sche Potential im Band liegt. Weiter wird die Mean-Field-Näherung benutzt, die auf Fälle beschränkt ist, in denen die Reichweite der Wechselwirkung zwischen den einzelnen Spins groß gegen ihren mittleren Abstand ist. Für Proben mit niedrigen Ladungsträgerdichten kann nicht davon ausgegangen werden, daß die Fermi-Fläche existiert, bei höher dotierten Proben ist die Reichweite der Wechselwirkung durch das Ansteigen von Gitterfehlern zu sehr beschränkt, um die Voraussetzungen zu erfüllen. V.I. Litvinov et al. berechneten deshalb die Curietemperaturen für eine Reihe von III-V Halbleitern über eine Theorie, die sich auf virtuelle Übergänge zwischen Akzeptorniveau und Valenzband stützt [22]. Auch hier ergibt sich ein Ansteigen der Curietemperatur bei Verbindungen, die Stickstoff enthalten (in Abbildung 2.7).

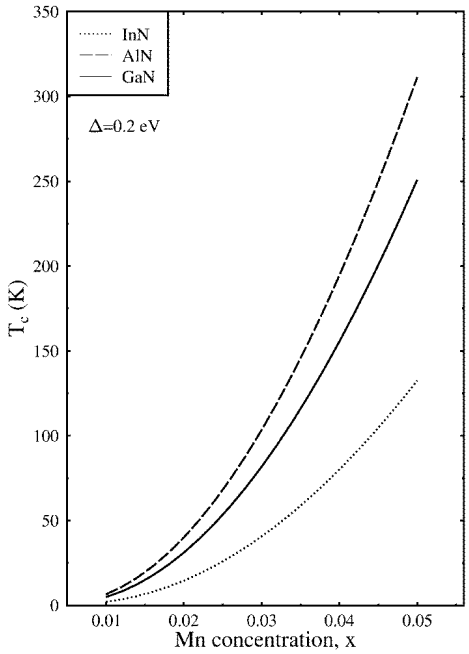


Abbildung 2.7: Berechnete Curietemperaturen verschiedener manganhaltiger III-N Halbleiter (aus [22]).

Aus der Theorie läßt sich ablesen, daß sich für Verbindungen leichter Elemente wie GaN, InN oder ZnO bereits bei Raumtemperatur Ferromagnetismus ergeben müßte, wenn die Verbindungen genügend hoch p-dotierbar sind und sich auch genügend Mangan einbauen läßt. Die Curietemperatur steigt bei leichteren Elementen aus den folgenden Gründen:

- Mit der stärkeren Bindung in Verbindungen leichter Elemente ist die effektive Masse größer. Damit steigt die Zustandsdichte der Spins ρ_S an.

- Durch die kleinere Gitterkonstante bei fester Mn-Konzentration im Material ergibt sich eine größere effektive Dichte der magnetischen Ionen $x_{\text{eff}}\, N_0$.

Dietl berechnete für den ternären Halbleiter GaMnN mit einer Mangankonzentration von $x = 5\%$ eine Curietemperatur von etwa 400K [20]. Dabei wurde allerdings eine p-Dotierung über 10^{20} $1/\text{cm}^3$ angenommen. Da positiv dotiertes GaN aber schwierig zu wachsen ist und hier nur die Auswirkungen des Einbaus von Stickstoff in einen magnetischen Halbleiter untersucht werden sollten, wurde in Ulm GaMnAs mit Stickstoff kombiniert [28].

Kapitel 3

Transportuntersuchungen an $Ga_{1-x}Mn_xAs$

Der Hauptteil dieser Arbeit befaßt sich mit Transportmessungen an GaMnAs, also Messungen des Schichtwiderstands und des Halleffekts im Magnetfeld. Dabei wurde eine Reihe von Proben mit unterschiedlichem Mangangehalt bei magnetischen Feldern bis zu 22T untersucht. Aus den gesammelten Daten konnten für die untersuchten Schichten die Curietemperaturen bestimmt werden, weiter wurde mit mehreren Methoden versucht, die Ladungsträgerdichten zu bestimmen.

3.1 Elektrischer Widerstand

Die elektrischen Eigenschaften von LT-GaMnAs hängen stark vom Mangangehalt x ab. Der elektrische Widerstand einer Schicht mit Mn-Gehalt x ergibt sich für Temperaturen weit oberhalb der Curietemperatur im Modell der Spin-disorder-Streuung zu [11, 33]

$$\rho = 2\pi^2 \frac{k_\mathrm{F}}{pe^2} \frac{(m^*)^3 J_\text{p-d}}{h^3} x \left(S(S+1) - < S >^2 \right) \tag{3.1}$$

Hier bedeuten k_F den Fermi-Wellenvektor, m^* die effektive Masse der Ladungsträger, $J_\text{p-d}$ das p-d-Austauschintegral und $< S >$ den thermischen Mittelwert der Mn-Spins S. Bei niedrigem Mangangehalt bis etwa 0.03 zeigt das Material isolierendes Verhalten, bei mittlerem Mangangehalt (0.03 $< x <$ 0.055) metallisches [36]. Isolierend bedeutet dabei, daß die Probe eine exponentiell mit der Temperatur ansteigende Leitfähigkeit besitzt, im metallischen Fall ist die Leitfähigkeit wie bei Metallen nur noch schwach temperaturabhängig. Dieses Verhalten ist in Abb. 3.2 gut zu erkennen.

Qualitativ läßt sich dieser Isolator-Metall-Übergang dadurch erklären, daß

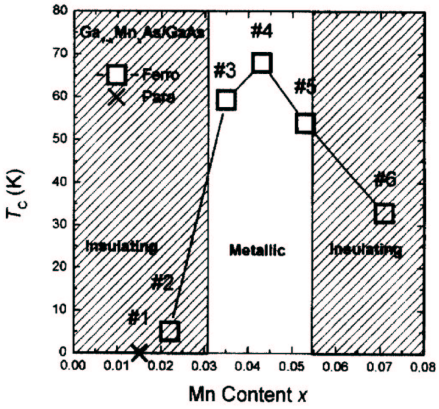


Abbildung 3.1: Isolator-Metall-Isolator Übergang in $Ga_{1-x}Mn_xAs$ (aus [36])

die Zustände im Defektband je nach Dotierung und Kompensation lokalisiert oder delokalisiert sind. Liegt die Fermi-Kante im Bereich der lokalisierten Zustände, so erfolgt die Leitung bei tiefen Temperaturen über den Mechanismus des 'carrier-hopping', was zur exponentiell mit der Temperatur ansteigenden Leitfähigkeit führt. Im zweiten Fall, mit der Fermikante im Bereich delokalisierter Zustände, ändert sich die Leitfähigkeit nur wenig mit der Temperatur, das Material verhält sich metallisch [10]. Bei noch größeren Mn-Konzentrationen verhält es sich wieder isolierend, was sich durch die Kompensation der Löcher durch vermehrt auftretende Mn^{6As} -Komplexe erklären läßt.

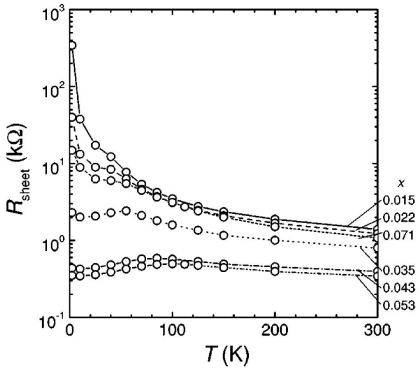


Abbildung 3.2: Temperaturabhängige Widerstandsmessungen an GaMnAs-Schichten mit unterschiedlichem Mangangehalt (aus [34])

Die Widerstandskurven verhalten sich nichtmonoton, weil der ferromagnetische Phasenübergang bei der Curietemperatur die Streumechanismen der Ladungsträger verändert. Die spinabhängige Streuung der Löcher, als 'spin disorder scattering' bezeichnet, wird bei paralleler Spinausrichtung im ferromagnetischen Zustand reduziert, was sich in Abbildung 3.2 als Maximum im Verlauf des Widerstands bemerkbar macht [10, 33]. Die Maxima liegen etwa bei der ferromagnetischen Übergangstemperatur T_C , mit zuneh-

mendem magnetischem Feld verschieben die Maxima leicht zur unteren Temperaturgrenze hin. Bei Temperaturen unter 10K ergibt sich eine Änderung im Leitungsmechanismus aufgrund von Lokalisierungseffekten, und damit auch ein steiler Anstieg des Widerstandes [33]. Die Änderungen im Leitungsmechanismus treten je nach Mangangehalt der Proben bei unterschiedlichen Temperaturen auf, mit fallender Mangankonzentration verschiebt sich das Maximum immer weiter nach links, bis es schließlich nicht mehr erkennbar ist.

3.2 Der Hall-Effekt

Wird eine dünne leitende Platte der Dicke d von einem gleichmäßig über ihren Querschnitt verteilten Strom I durchflossen, so ergibt sich zwischen zwei gegenüberliegenden Punkten am Rand der Platte noch keine Potentialdifferenz. Wird allerdings ein Magnetfeld vom Betrag B senkrecht zur Platte angelegt, werden die Bahnen der Ladungsträger in der Platte durch die Lorentzkraft senkrecht zu den Magnetfeldlinien und zur eigenen Bewegungsrichtung zu einer der Kanten hin verschoben. Die daraus resultierende Potentialdifferenz zwischen gegenüberliegenden Punkten an den Kanten der Platte wird als Hallspannung U_{H} bezeichnet.

$$U_{\mathrm{H}} = R_{\mathrm{H}} \frac{BI}{d} \ . \tag{3.2}$$

Mit der Stromdichte $J = nev_{\mathrm{el}}$ und der quer zur Platte wirkenden, durch das magnetische Feld verursachten Kraft auf die Ladungsträger eBv_{el}, die durch die elektrische Kraft der Potentialdifferenz U_{H} kompensiert wird, ergibt sich für die Hallkonstante der folgende Ausdruck (e bezeichnet die Elementarladung):

$$R_{\mathrm{H}} = \frac{r}{ne} \tag{3.3}$$

womit sich sich die Ladungsträgerdichte n aus der recht einfach meßbaren Hallkonstante bestimmen läßt. r bezeichnet den Hall-Faktor, eine vom Streumechanismus und der Größe des elektrischen und magnetischen Feldes abhängige Konstante. Da die Streumechanismen in GaMnAs bisher nicht erforscht sind, wird im Folgenden ein Hallfaktor von r=1 angenommen.

3.3 Anomaler Hall-Effekt

Wegen der Magnetisierung des Materials im äußeren Magnetfeld setzt sich der Hallwiderstand im magnetischen Halbleiter R_{Hall} allgemein aus einem Beitrag des normalen Halleffekts und einem Beitrag des anomalen Halleffekts zusammen [35]:

$$R_{\mathrm{Hall}} = \frac{R_{\mathrm{H}}}{d} B + \frac{R_{\mathrm{S}}}{d} M, \tag{3.4}$$

wobei der anomale Hallkoeffizient R_S mit dem Längswiderstand R_{xx} zusammenhängt [35]:

$$R_S \propto R_{xx}^{\gamma} \quad . \tag{3.5}$$

Der Exponent γ hängt vom Mechanismus der für den betrachteten Effekt verantwortlichen spinabhängigen Streuung ab. Dabei kommen zwei Mechanismen der Streuung von spinpolarisierten freien Ladungsträgern in Betracht:

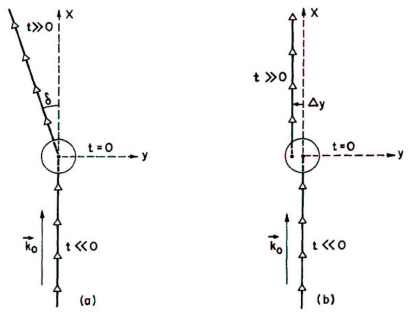


Abbildung 3.3: Prinzipielle Darstellung von 'skew scattering' und 'side jump' (aus [3]).

- Als 'skew scattering' wird eine Spin-Spin Streuung von spinpolarisierten freien Ladungsträgern an ortsfesten spinpolarisierten Ionen im Gitter bezeichnet. Die Bewegungsrichtung vor und nach der Streuung schließt einen Winkel δ ein (s. Abbildung 3.3(a)). Der Beitrag dieser Streuung zu R_S ist proportional zur Magnetisierung M, für γ ergibt sich 1.

- 'side jump': Die Streuung läßt sich nur quantenmachanisch verstehen, das Massenzentrum des betrachteten Teilchens erfährt dabei eine Ablenkung, ohne daß sich der Weg des einfallenden und des auslaufenden Teilchens kreuzen (s.Abbildung 3.3(b)). Die Hallkonstante ist hier proportional zum Quadrat des Schichtwiderstands ($\gamma = 2$) [5, 3].

In magnetischen Halbleitern, also auch im hier betrachteten GaMnAs, kann davon ausgegangen werden, daß der Mechanismus des skew scattering dominiert und somit der anomale Hallkoeffizient proportional zum Schichtwiderstand ist.

Abbildung 3.4 und 3.5 zeigen Magnetisierungs- und Hallmessungen einer Probe mit Mangangehalt $x = 0.053$ bei einer Reihe von Temperaturen. Aus der Ähnlichkeit der Meßreihen kann geschlossen werden, daß sich der Hallwiderstand R_{Hall} bei den betrachteten Feldern bis hin zu Raumtemperatur proportional zur Magnetisierung M verhält [35].

$$R_{\mathrm{Hall}} \propto M \tag{3.6}$$

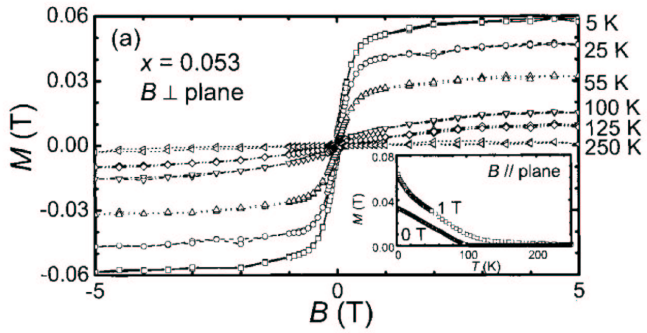


Abbildung 3.4: Magnetisierung einer GaMnAs-Probe mit 5.3% Mn im Magnetfeld bei verschiedenen Temperaturen. Gemessen mittels SQUID (aus [35])

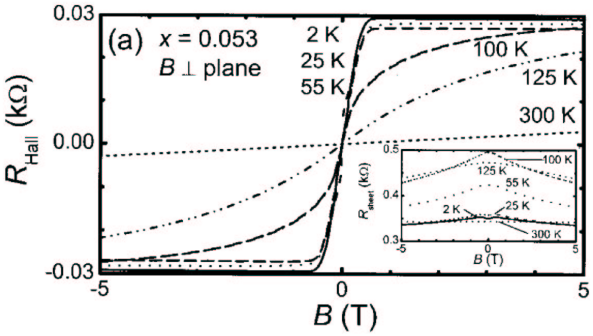


Abbildung 3.5: Hallwiderstand der Probe aus Abb. 3.4 im Magnetfeld (aus [35])

Damit und mit den Gleichungen (3.4) und (3.5) kann der Hallkoeffizient mit der temperaturunabhängigen Konstanten c in guter Näherung als

$$R_{\text{Hall}} \approx c R_{\text{xx}} M \tag{3.7}$$

geschrieben werden. Aus der letzten Gleichung ist sofort ersichtlich, daß die Größe

$$\frac{R_{\text{Hall}}}{R_{\text{xx}}} \propto M \tag{3.8}$$

ein Maß für die Magnetisierung M des Systems darstellt.

3.4 Transportmessungen

Für die Transportmessungen an GaMnAs- und GaMnNAs-Proben wurde ein magnetooptischer Kryostat der Firma Oxford benutzt, der es ermöglicht, die Längs- und Querspannung der zu untersuchenden Proben bei Magnetfeldern von -6T bis 6T im Temperaturbereich von 4.2K bis etwa 150K zu messen.

Abbildung 3.6 zeigt einen Schnitt durch den benutzten Oxford-Kryostaten. Der Dewar besitzt innerhalb des Isolationsvakuums einen äußeren Wärmeschild, der mit flüssigem Stickstoff gefüllt wird. Dieser dient zur Vorkühlung des Kryostaten, um den Heliumverbrauch zu minimieren. Unterhalb des Stickstofftanks befindet sich das Heliumreservoir, in dem im unteren Teil die supraleitenden Magnetspulen in Helmholtz-Anordnung (split-coil) untergebracht sind. Die Stromversorgung erfolgt durch ein Netzteil mit eingebautem elektromechanischem Sweep-Generator, mit dem das Magnetfeld rechnergesteuert stufenlos verstellt werden kann. Leider ist es mit dem verwendeten Netzteil nicht möglich, die Feldrichtung durch Umpolen des Stromes im Netzteil zu ändern, weshalb für die Messungen mit negativen Feldern die Leitungen vom Netzteil zum Kryostaten vertauscht werden mußten. Die Probenkammer befindet sich innerhalb des Heliumreservoirs, der Probenhalter kann von oben auch bei abgekühltem Magnet ein- und ausgebaut werden. Das Innere der Probenkammer ist über ein Nadelventil in einem Kapillarrohr mit dem Heliumreservoir verbunden.

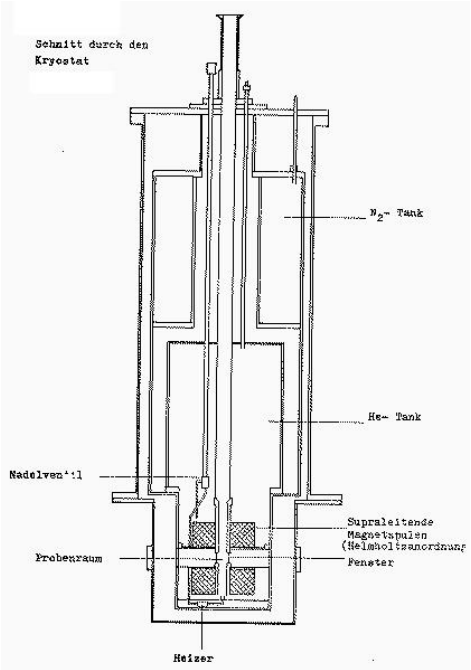


Abbildung 3.6: Schnitt durch den Oxford 6T Magnetkryostaten.

Die Kühlung der Probe erfolgt, indem mit einer Heliumpumpe, an der die Pumpleistung mit einem Nadelventil eingestellt werden kann, kaltes He-Gas aus dem Reservoir durch den Probenraum gezogen wird. Bis

knapp über 4.2K erfolgt die Kühlung der Probe durch das Vorbeifließen des kalten Gases, die Temperatur wird dabei durch die Einstellung des Nadelventils von Hand möglichst konstant gehalten. Bei vollständig geöffnetem Nadelventil kann die Probenkammer mit flüssigem Helium gefüllt werden, wodurch dann die Temperatur des flüssigen Heliums erreicht wird. Durch Abpumpen kann die Probenkammer weiter gekühlt werden. Man erreicht dadurch Temperaturen knapp über 2K, wobei allerdings der Heliumverbrauch deutlich ansteigt. Die Temperatur der Probe wird über einen Kohlewiderstand wenige mm über der Probe auf dem Probenhalter gemessen.

Mit der beschriebenen Apparatur wurden für die einzelnen Proben magnetfeldabhängige Messungen (B = $0T \rightarrow 5T \rightarrow 0T \rightarrow -5T \rightarrow 0T$) bei einer Reihe von Temperaturen durchgeführt, wobei jeweils der Längswiderstand R_{xx} und der Querwiderstand R_{xy} der Proben aufgenommen wurde. Da die Probengeometrie Einfluß auf die Ergebnisse der Widerstandsmessungen hat, wurden sämtliche Messungen an doppelkreuzförmigen Strukturen, als Hallbars bezeichnet, durchgeführt, die über Photolithographie hergestellt wurden. Die prozessierten Proben wurden in nichtmagnetische Goldsockel (16-polige DIL-Sockel) geklebt und mit feinen Golddrähten gebondet. In Abb. 3.7 ist das prinzipielle Aussehen einer solchen Hallbar dargestellt. Um möglichst störungsfrei kleine Signale messen zu können, sind die elektrischen Kontakte im Probenspieß mit Koaxialkabeln ausgeführt, außerhalb des Probenhalters wurden sogar Triaxialkabel verwendet. Zur Bestimmung der Widerstände R_{xx} und R_{xy} wird an die Probe ein konstanter Gleichstrom in Längsrichtung I_{x} und ein Magnetfeld vom Betrag B senkrecht zur Probe angelegt und die Längs- und Querspannung an den jeweiligen Kontakten abgenommen. Man erhält eine Spannung, die sich aus der jeweiligen Längs-

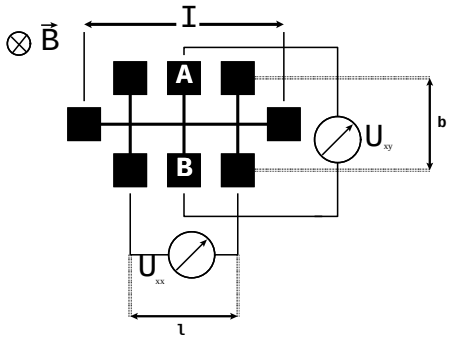


Abbildung 3.7: Prinzip der Halleffekt- und Magnetotransportmessungen. Die Abbildung ist nicht maßstabsgetreu.

bzw. Querspannung und einer Reihe von Störeffekten zusammensetzt. Um Verfälschungen der Messung aufgrund der Probengeometrie, beispielsweise den Einfluß asymmetrischer Hallkontakte, weiter zu minimieren, wurden die Spannungen über zwei entgegengesetzte Stromrichtungen gemittelt, was in

der Apparatur computergesteuert durch eine Relaismatrix geschieht. Für die Querspannung gilt dann:

$$\overline{U_{\mathrm{xy}}} = \frac{1}{2}\left(U_{\mathrm{xy}}^{\mathrm{A}\,\rightarrow\,\mathrm{B}}\left(I_{\mathrm{x}}\right) - U_{\mathrm{xy}}^{\mathrm{A}\,\rightarrow\,\mathrm{B}}\left(-I_{\mathrm{x}}\right)\right) \tag{3.9}$$

Ähnlich kann die Längsspannung $\overline{U_{\mathrm{xx}}}$ bestimmt werden, indem über die Beträge der beiden gemessenen Spannungen bei unterschiedlichen Stromrichtungen gemittelt wird. Eine weitere Methode zur Elimination von Störeffekten in der Querspannung ist die Mittelung über die Werte aus Messungen bei unterschiedlichen Feldrichtungen, wie sie in Abschnitt 3.6 für Hochfeldmessungen durchgeführt wurde. Wurden die Querspannung $\overline{U_{\mathrm{xy}}}$ und die Längsspannung $\overline{U_{\mathrm{xx}}}$ gemessen, so können damit die beiden Widerstände bestimmt werden:

$$R_{\mathrm{xy}}\left(B\right) = \frac{\overline{U_{\mathrm{xy}}\left(B\right)}}{I_{\mathrm{x}}} \tag{3.10}$$

$$R_{\mathrm{xx}}\left(B\right) = \frac{\overline{U_{\mathrm{xx}}\left(B\right)}}{I_{\mathrm{x}}} = \frac{\rho_{\mathrm{xx}}\left(B\right)}{d}\frac{l}{b} \tag{3.11}$$

Der spezifische Widerstand ρ_{xx} der Proben berechnet sich dabei aus dem Längswiderstand R_{xx}, der Schichtdicke d und dem Verhältnis l/b der Längen, über die die Hallspannung und die Längsspannung gemessen werden (für den verwendeten Maskensatz gilt $l/b = 2$, siehe Abb. 3.7).

Die gemessenen Widerstände R_{xx} und R_{xy} in Abhängigkeit des Magnetfeldes B und jeweils für eine Reihe von Temperaturen sind in den Abbildungen 3.8 bis 3.18 aufgetragen.

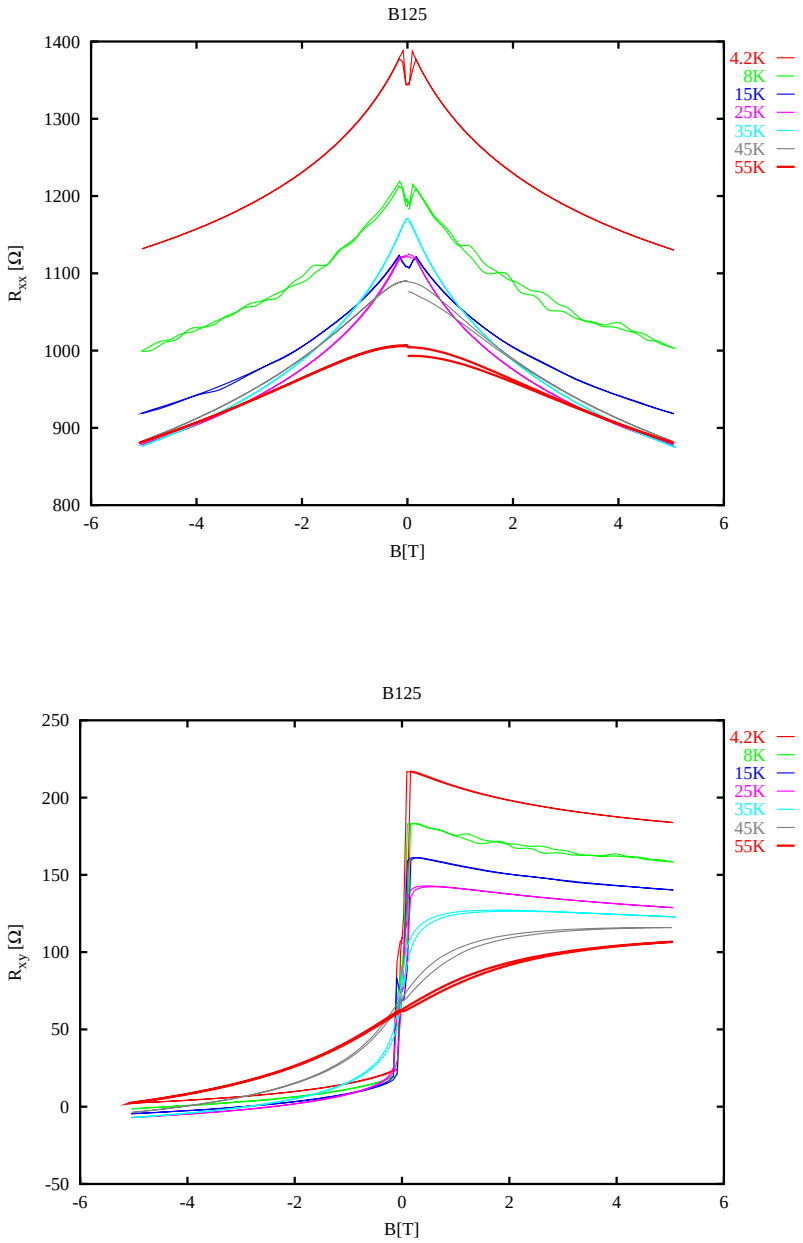
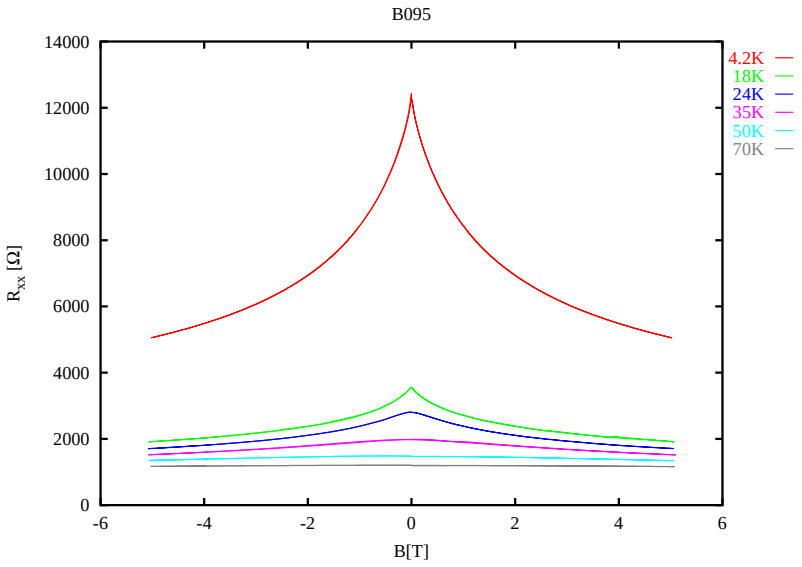


Abbildung 3.8: Schicht- und Hallwiderstand für die GaMnAs-Probe B125 mit 0.94% Mn.



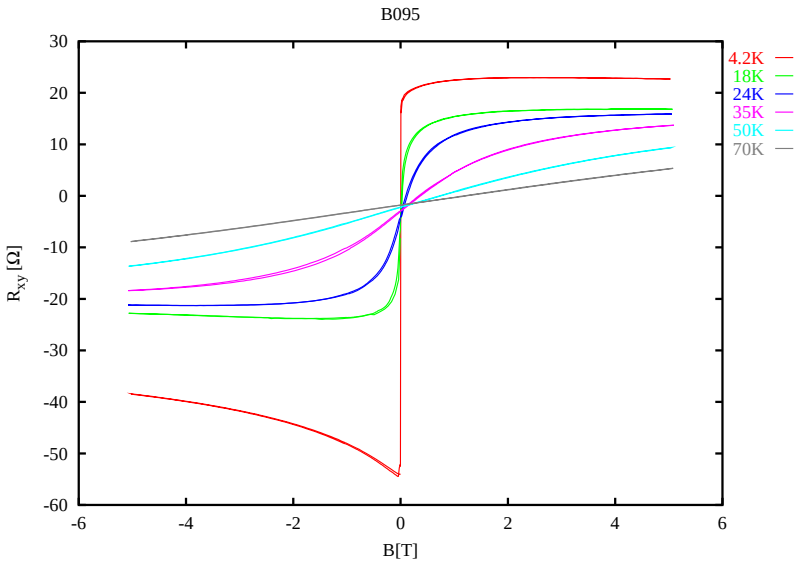


Abbildung 3.9: Schicht- und Hallwiderstand für die GaMnAs-Probe B095 mit 0.97 % Mn.

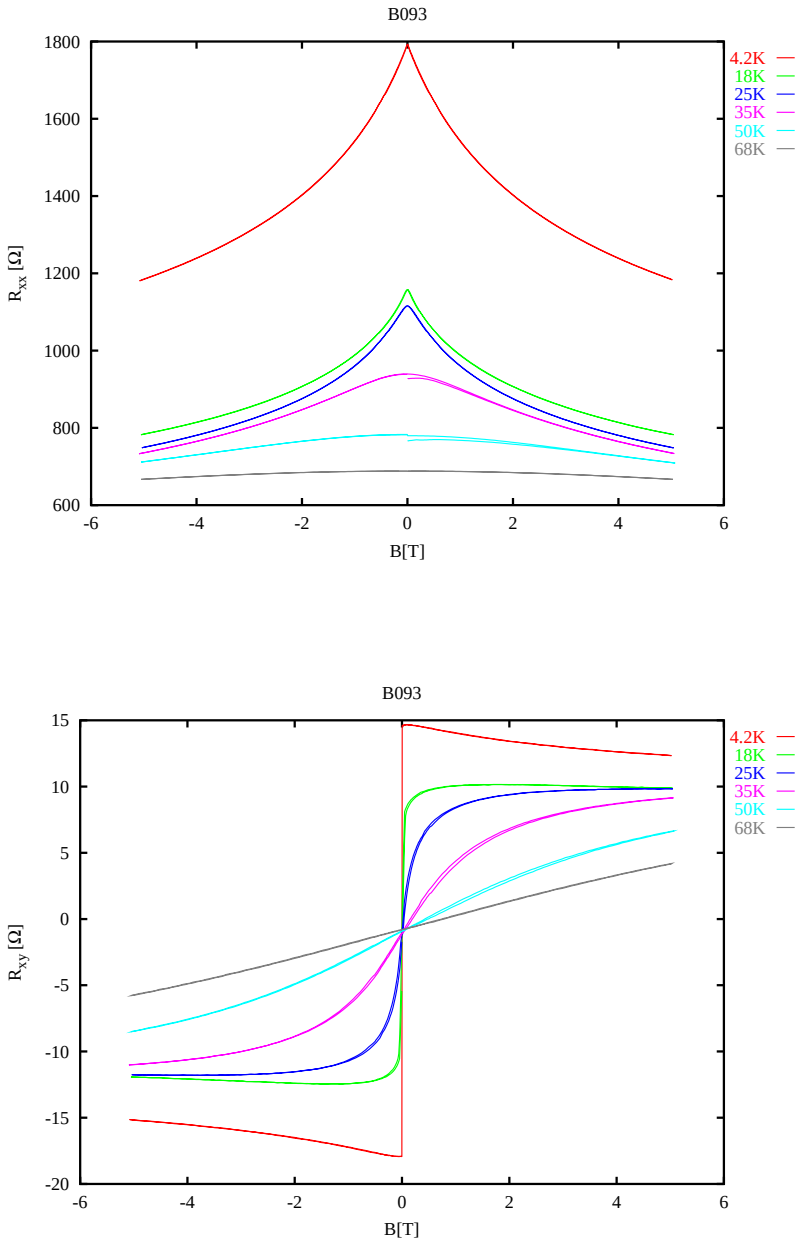


Abbildung 3.10: Schicht- und Hallwiderstand für die GaMnAs-Probe B093 mit 1.23 % Mn.

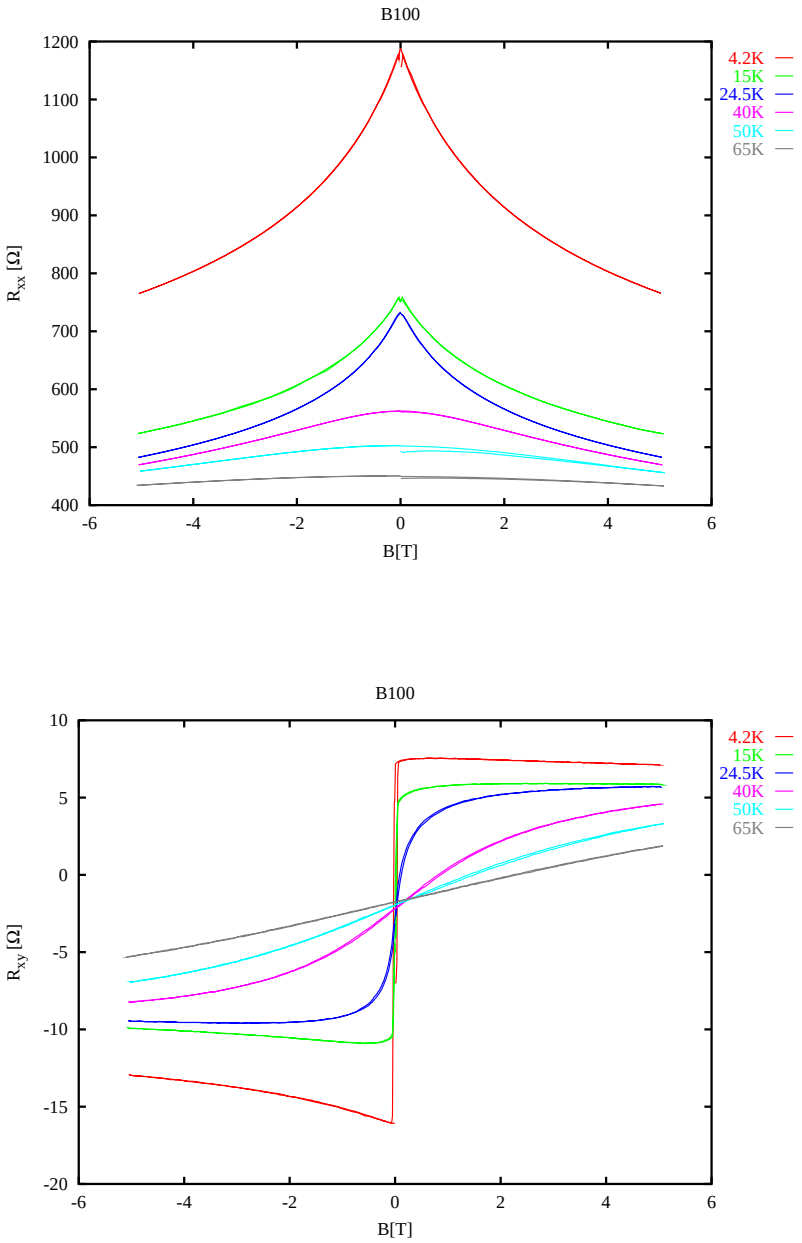


Abbildung 3.11: Schicht- und Hallwiderstand für die GaMnAs-Probe B100 mit 1.23 % Mn.

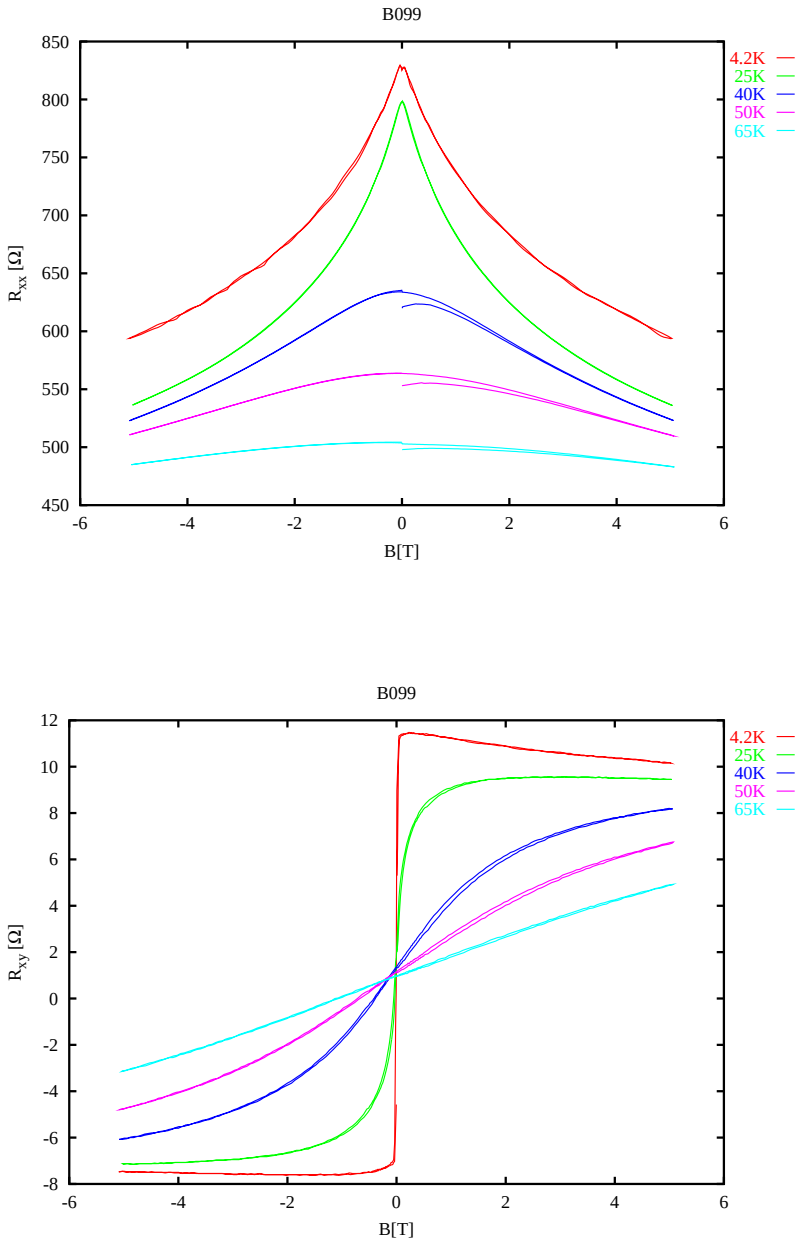
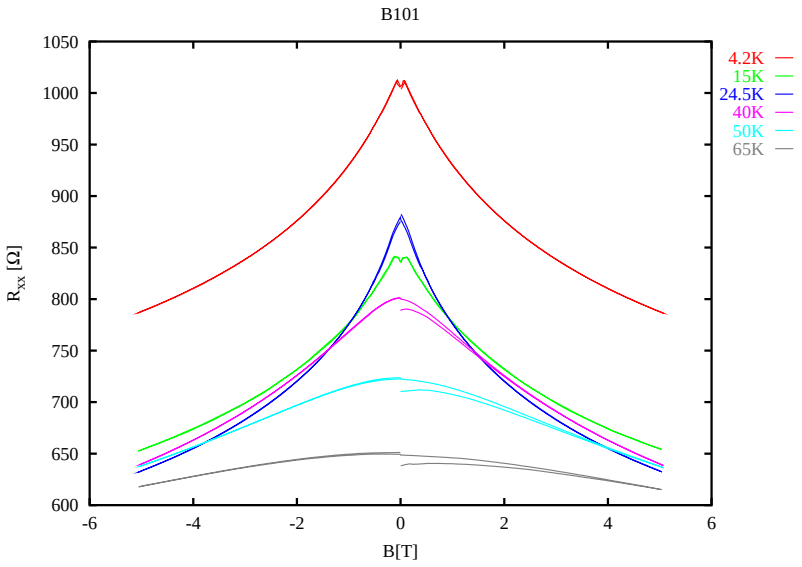


Abbildung 3.12: Schicht- und Hallwiderstand für die GaMnAs-Probe B099 mit 1.39 % Mn.



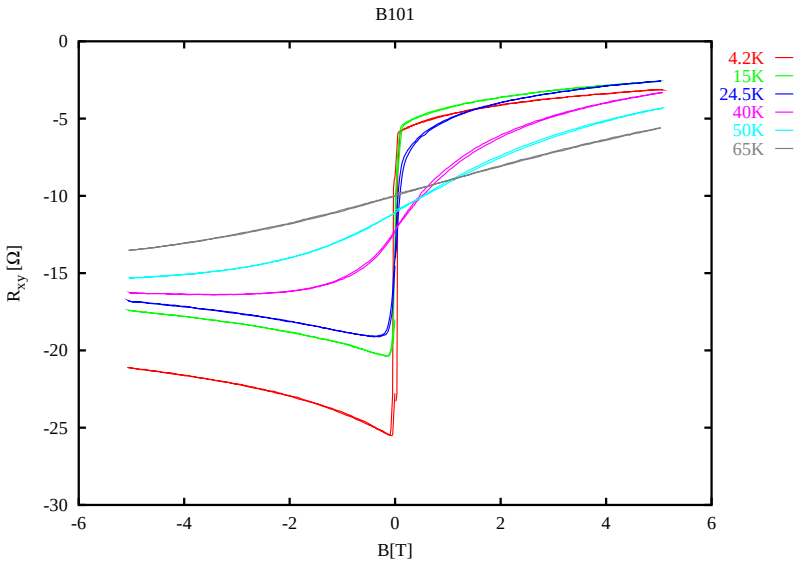


Abbildung 3.13: Schicht- und Hallwiderstand für die GaMnAs-Probe B101 mit 1.89% Mn.

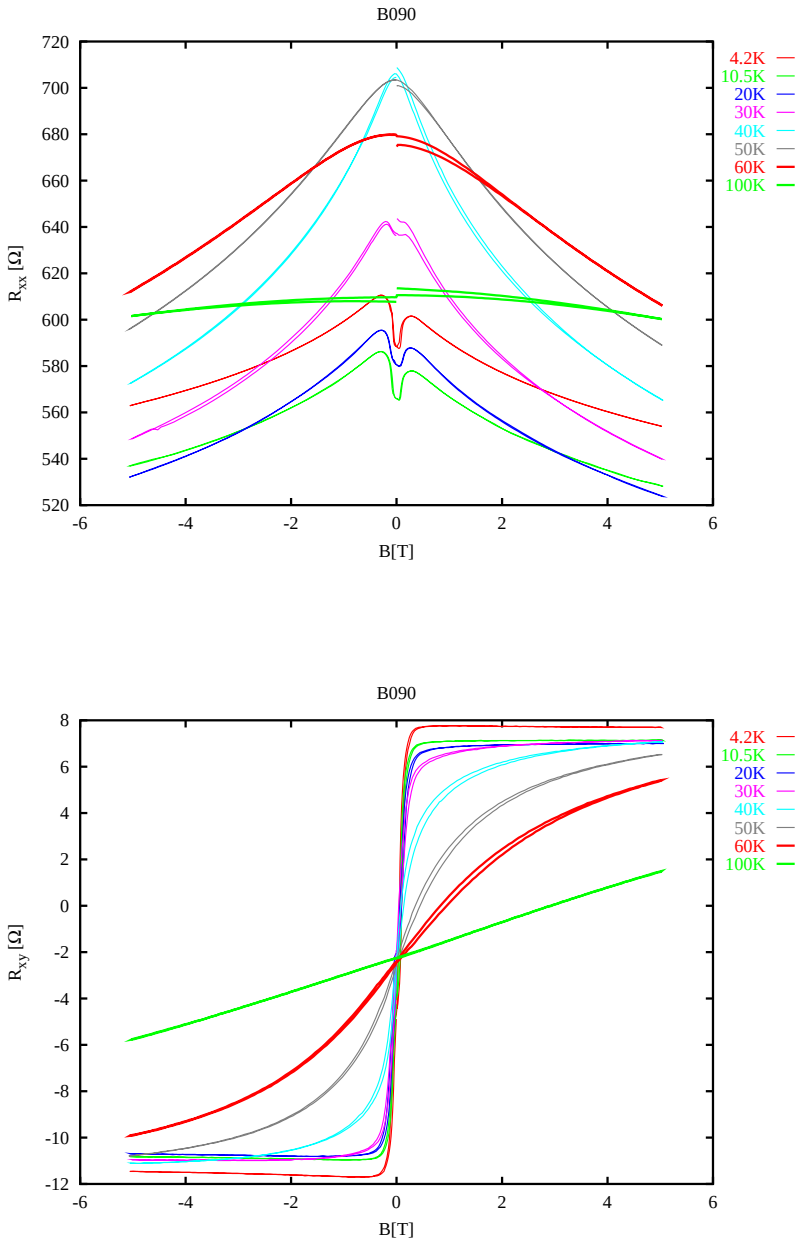
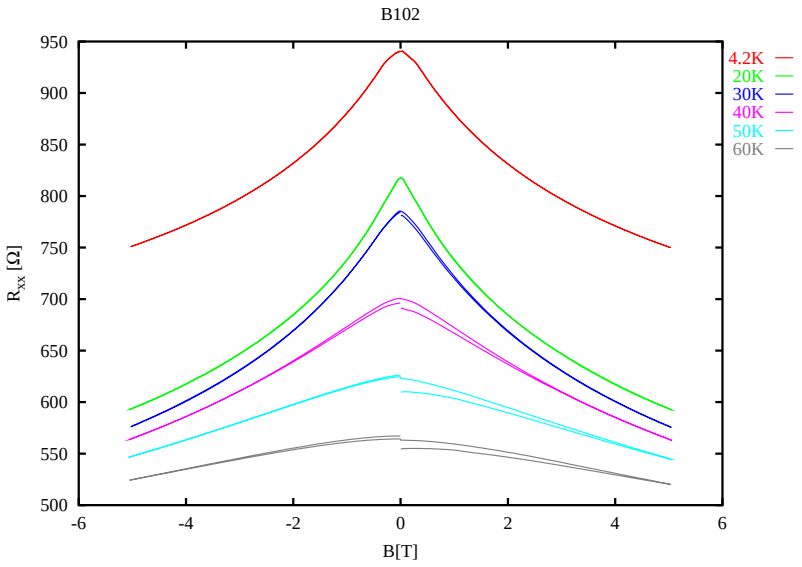


Abbildung 3.14: Schicht- und Hallwiderstand für die GaMnAs-Probe B090 mit 2.22 % Mn.



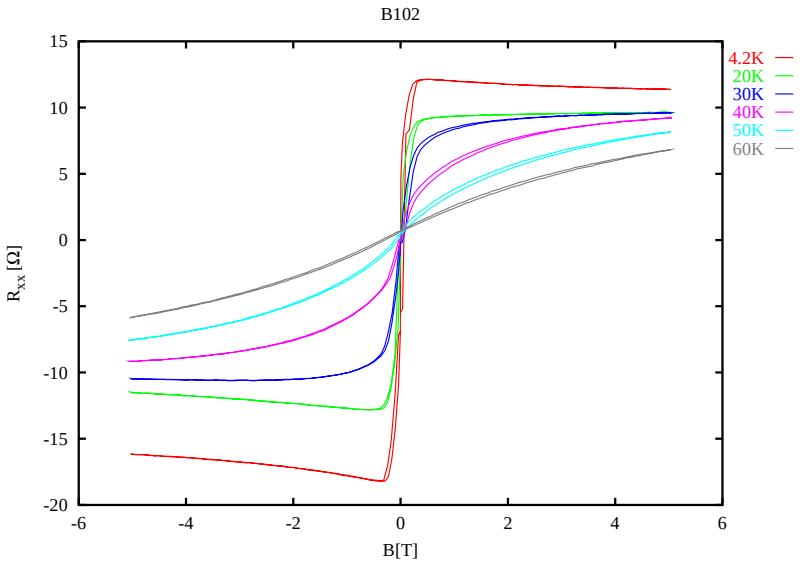


Abbildung 3.15: Schicht- und Hallwiderstand für die GaMnAs-Probe B102 mit 2.7% Mn.

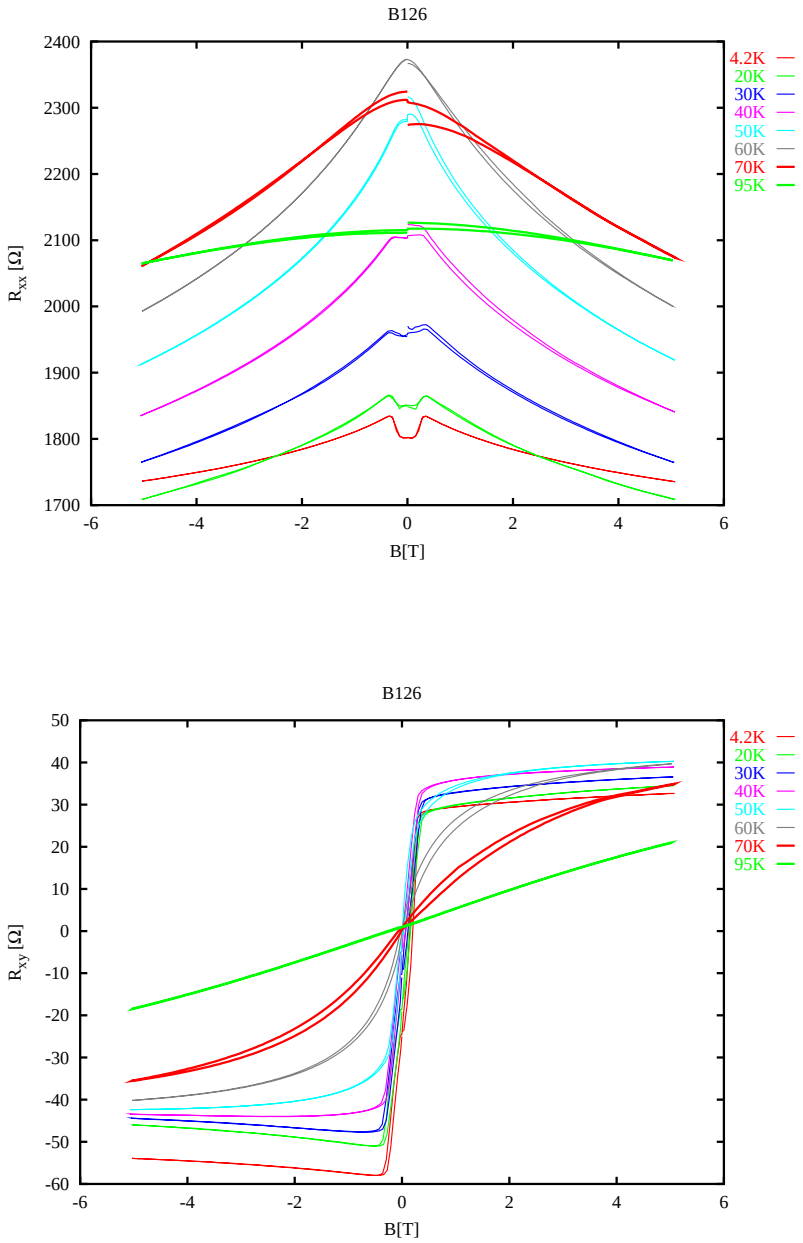
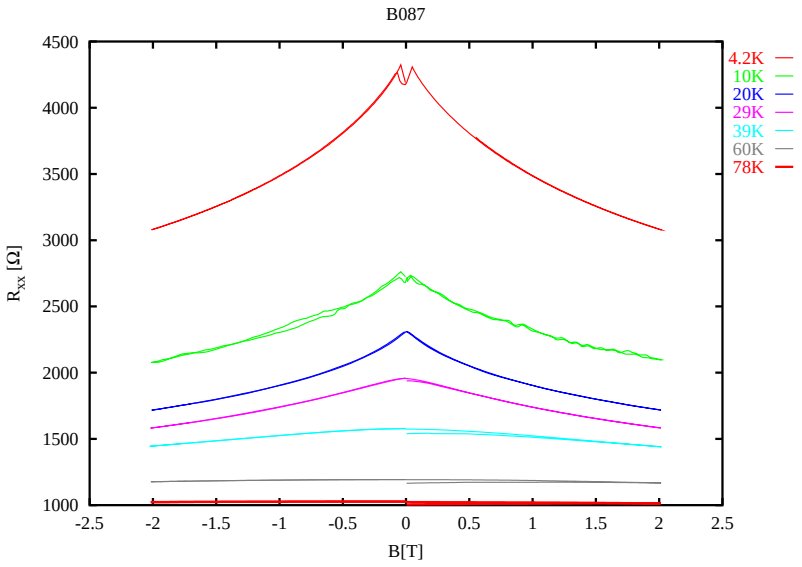


Abbildung 3.16: Schicht- und Hallwiderstand für die GaMnAs-Probe B126 mit 3.4% Mn.



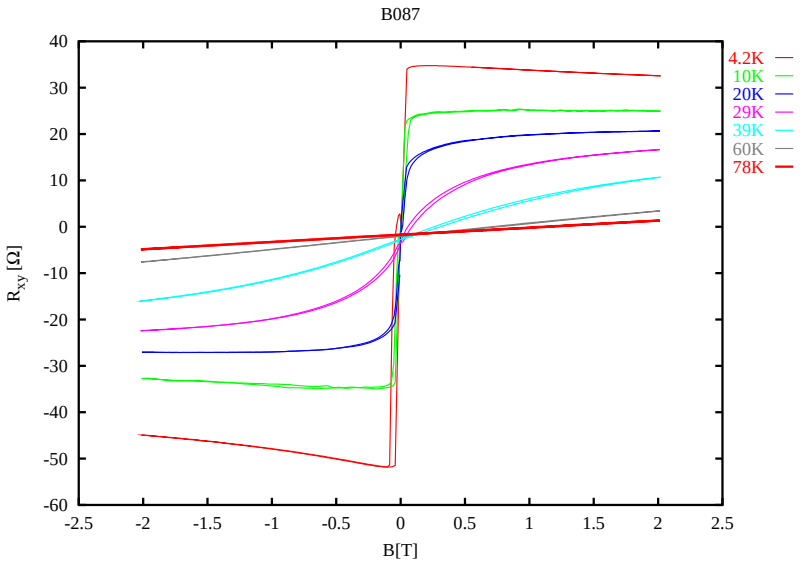


Abbildung 3.17: Längs- und Hallwiderstand für die GaMnNAs-Probe B087 mit 1.36 % Mn und 0.79 % N.

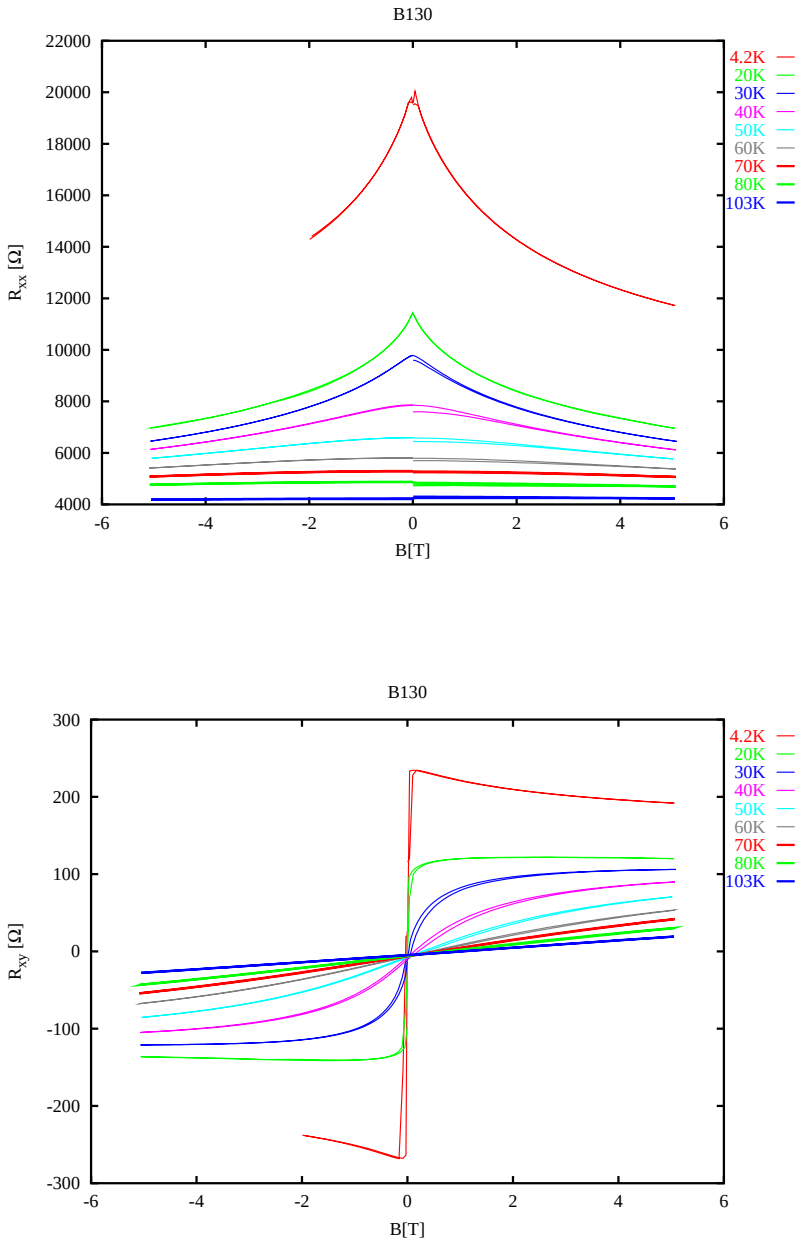


Abbildung 3.18: Schicht- und Hallwiderstand für die GaMnNAs-Probe B130 mit 2.49% Mn und 1.27% N. Der negative Ast bei 4.2K wurde wegen eines verstopfen Nadelventils (deutliche Temperaturschwankungen) nur bis −2T berücksichtigt.

Aus den Abbildungen ist deutlich zu erkennen, daß sich der Verlauf sowohl des Hallwiderstands R_{xx} als auch des Schichtwiderstands R_{xy} mit ansteigendem Mangangehalt x ändert. In den Kurven des Schichtwiderstands R_{xx} zeigt sich abhängig von Temperatur und Mangangehalt der Schicht ein stark ausgeprägter negativer Magnetowiderstand. Der negative Magnetowiderstand steigt bei hohen Temperaturen kontinuierlich an, was sich mit der Magnetisierung der Probe im Magnetfeld begründen läßt. Die Spins im Material richten sich mit steigendem Magnetfeld aus, wodurch die Streuung der Spins (spin-disorder-scattering) reduziert wird [33]. Damit verkleinert sich der Widerstand der Schichten. Bei tieferen Temperaturen scheint der Effekt von einem Weiteren überlagert zu werden. Die meisten der Proben zeigen hier zunächst ein Ansteigen des Schichtwiderstands bei kleinen Magnetfeldern, danach besitzt die Kurve einen Wendepunkt, nach dem der Widerstand wieder absinkt. Aus den gemessenen Daten wurde der spezifische Schichtwiderstand ohne angelegtes Magnetfeld nach

$$\rho_{xx} = R_{xx}\, d\frac{b}{l} \tag{3.12}$$

bestimmt und in den Abbildungen 3.19 und 3.20 über der Temperatur aufgetragen. Bis zu einem Mangangehalt von 2.2% zeigen die Proben, die

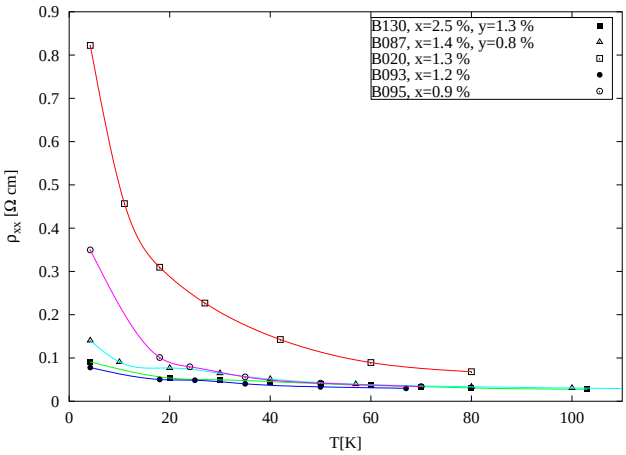


Abbildung 3.19: Spezifischer Schichtwiderstand ρ_{xx} für die isolierenden Proben mit Mn-Gehalt x und Stickstoff-Gehalt y.

keinen Stickstoff enthalten, isolierendes Verhalten: der Schichtwiderstand steigt mit abnehmender Temperatur an. Dies entspricht einem Isolator-Metall-Übergang bei einem Mn-Gehalt zwischen $x = 0.013$ und $x = 0.022$. Die Probe B130 mit 1.27% Stickstoff zeigt ebenfalls isolierendes Verhalten,

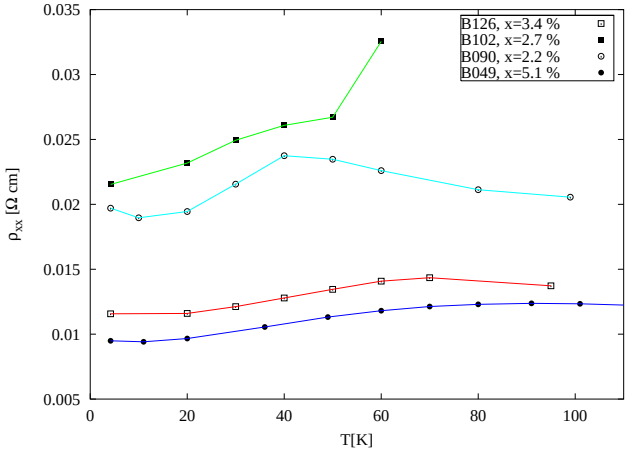


Abbildung 3.20: Spezifischer Schichtwiderstand ρ_{xx} für die metallischen Proben mit Mn-Gehalt x.

obwohl ihr Mangangehalt bei 2.49% liegt. Die Gründe hierfür sind bisher unbekannt, allerdings wird vermutet, daß die Mn-Akzeptoren im GaMnNAs durch die Bildung von Mn_2N- oder Mn_4N-Komplexen kompensiert werden [8, 28].

In den Kurven des Querwiderstands R_{xy} erkennt man wieder die Ähnlichkeit zur Magnetisierung. Die Kurven zeigen bei hohen Temperaturen einen annähernd linearen Verlauf, mit sinkender Temperautur bildet sich abhängig vom Mangangehalt ein nichtlinearer Verlauf aus. Man erkennt, daß sich der von der Magnetisierung abhängige Teil des Hallwiderstandes bei tieferen Tempeaturen schneller sättigt, weil die Magnetisierung bei tiefen Temperaturen aufgrund der sinkenden thermischen Energie der Ionen schneller in Sättigung geht. Alle Kurven zeigen über den gesamten Temperaturbereich einen unterschiedlich stark ausgeprägten Offset, dessen Ursprung nicht bekannt ist. Der Offset führt teilweise sogar dazu, daß die gesamte Meßkurve im Negativen liegt, was natürlich nur bedeutet, daß bei der Mittelung der Spannungen für zwei unterschiedliche Stromrichtungen eine der Teilspannungen deutlich überwiegt. Die Probe B101 in Abbildung 3.13 auf Seite 30 zeigt ein solches Verhalten, hier steigt der Offset sogar mit sinkender Temperatur an. Unterhalb der Curietemperatur T_{C} bleibt auch für $B = 0$ ein Rest im Hallwiderstand bestehen. Diese Folge des Ferromagnetismus des Materials läßt sich mit der Formel für die gemessene Spannung

U_{xy} verstehen:

$$U_{\mathrm{xy}} = \frac{R_{\mathrm{H}}\, I}{d} B + \frac{R_{\mathrm{S}}\, I}{d} M + f(B, I, T) \ , \tag{3.13}$$

wobei Störeffekte wie beispielsweise der immer auftretende Offset in der Querspannung in $f(B, I, T)$ zusammengefaßt sind. Für verschwindendes Magnetfeld $B \to 0$ verschwindet der nur vom Magnetfeld abhängige erste Term, es bleibt wegen der Remanenzmagnetisierung M_0 im ferromagnetischen Fall eine Spannung zurück.

3.5 Bestimmung der Curie-Temperatur

Eine Möglichkeit, die Curietemperatur T_C aus Transportmessungen zu bestimmen, wurde 1957 von A. Arrott entwickelt [1]. Arrott ging von der Magnetisierung des betrachteten Materials aus, die sich nach der Molekularfeldtheorie zu

$$M = M_0 \tanh\left(\frac{\mu(H+NM)}{kT}\right) \tag{3.14}$$

mit der spontanen Magnetisierung am absoluten Nullpunkt der Temperatur M_0, dem magnetischen Moment eines Atoms μ, der Boltzmannkonstanten k und der Molekularfeldkonstanten N ergibt. Durch Umschreiben der Gleichung für die Magnetisierung ergibt sich

$$\frac{\mu(H+NM)}{kT} = \tanh^{-1}\left(\frac{M}{M_0}\right) , \tag{3.15}$$

was sich unter der Voraussetzung einer kleinen Magnetisierung ($M << M_0$) in eine Potenzreihe entwickeln läßt. Damit ergibt sich

$$\frac{\mu(H+NM)}{kT} = \frac{M}{M_0} + \frac{1}{3}\left(\frac{M}{M_0}\right)^3 + \frac{1}{5}\left(\frac{M}{M_0}\right)^5 + \dots \tag{3.16}$$

Für den Grenzfall des verschwindenden magnetischen Feldes $H = 0$ gilt für die reziproke Suszeptibilität (wiederum unter Annahme von $M << M_0$)

$$\frac{1}{\chi} = \frac{kT}{\mu M_0} - N \tag{3.17}$$

Das Material kann als ferromagnetisch betrachtet werden, wenn sich bei Verschwinden der Feldstärke H eine endliche Magnetisierung M ergibt. Damit kann die Curietemperatur aus der obigen Gleichung mit der Bedingung ($1/\chi = 0$) bestimmt werden:

$$T_\mathrm{C} = \frac{\mu M}{k} M_0 \tag{3.18}$$

Bei der Curietemperatur T_C verhält sich also die Feldstärke H in erster Näherung proportional zu M^3:

$$\frac{\mu H}{kT_\mathrm{C}} = \frac{1}{3}\left(\frac{M}{M_0}\right)^3 + \frac{1}{5}\left(\frac{M}{M_0}\right)^5 + \dots \approx \frac{1}{3}\left(\frac{M}{M_0}\right)^3 \tag{3.19}$$

Ober- oder unterhalb der Curietemperatur schreibt sich der Zusammenhang zwischen Magnetisierung und Feld dagegen wie

$$\frac{\mu H}{kT} = \underbrace{\left(1 - \frac{T_\mathrm{C}}{T}\right)}_{\epsilon} \frac{M}{M_0} + \frac{1}{3}\left(\frac{M}{M_0}\right)^3 + \frac{1}{5}\left(\frac{M}{M_0}\right)^5 + \dots \tag{3.20}$$

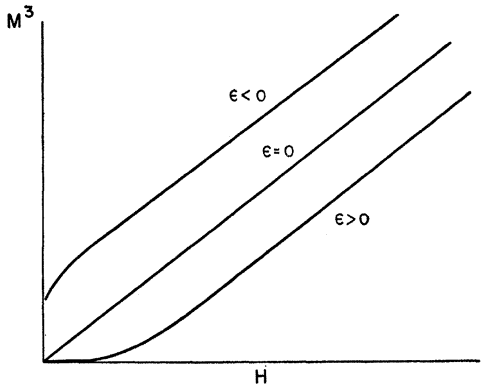


Abbildung 3.21: M^3 über H für Temperaturen unterhalb T_C ($\epsilon < 0$), oberhalb T_C ($\epsilon > 0$) und die Curietemperatur ($\epsilon = 0$).

Der qualitative Verlauf der Auftragung von M^3 über H ist in Abbildung 3.21 für Temperaturen um die Curietemperatur dargestellt. Die Kurven besitzen für große Felder einen linearen Anteil, da dort der kubische Term der Gleichung (3.20) überwiegt. Extrapoliert man den linearen Teil der Kurven (große Felder) bis zum Wert $H = 0$, so ergibt sich für Temperaturen unterhalb der Curietemperatur ein negativer Y-Achsenabschnitt, für die Curietemperatur der Wert 0 und für Temperaturen über T_C ein positiver Achsenabschnitt. Für die praktische Auswertung formt man die Gleichung (3.20) um

$$H = \frac{1}{\chi}M + \beta M^3 + \gamma M^5 \tag{3.21}$$

und trägt jetzt M^2 über H/M auf. Damit ergibt sich bei der beschriebenen Extrapolation des linearen Kurventeils im Grenzfall $H = 0$ der Abschnitt auf der Y-Achse zu $1/\chi$. Die Curietemperatur kann jetzt aus dem Nulldurchgang der Werte für $1/\chi$ bei unterschiedlichen Temperaturen bestimmt werden. Die Bestimmung der Curietemperatur der Probe B087 wurde von Rainer Kling in seiner Diplomarbeit durchgeführt [28], sie lag dort zwischen 30 und 40K.

Die beschriebene Methode der Arrott-Plots hat allerdings einige Nachteile. Sie erscheint zum Ersten recht kompliziert, die Extrapolation der linearen Kurventeile wird stets fehlerbehaftet sein. Außerdem potenzieren sich etwaige Fehler durch die quadratisch aufgetragene Magnetisierung. Aus diesen Gründen wurde hier eine andere Methode zur Bestimmung von T_C benutzt.

Zur Bestimmung der Temperatur des ferromagnetischen Übergangs wurde für eine Reihe von Proben mit unterschiedlichem Mn-Gehalt x von der Größe (remanenter Hallwiderstand)

$$\frac{R_{\mathrm{xy}}\ (B = 0\mathrm{T})}{R_{\mathrm{xx}}\ (B = 0\mathrm{T})}\ , \tag{3.22}$$

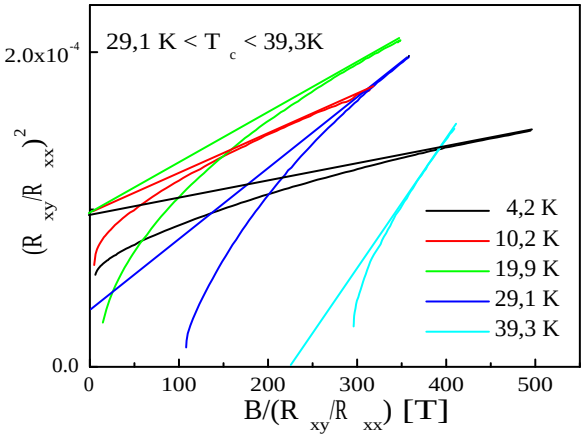


Abbildung 3.22: Bestimmung der Curietemperatur T_C für die Probe B087 über einen Arrott-Plot (aus [28]).

die nach den Gleichungen (3.4) und (3.5) der Magnetisierung M proportional ist, ausgegangen. Bei der Messung beginnend von B=0T bis zum Maximalwert B=5T und zurück zu B=0T bleibt unterhalb der Curietemperatur T_C eine Remanenzmagnetisierung M_0 und somit auch die dazu proportionale Größe aus Gleichung (3.22) bestehen. Aus einer Auftragung dieser Größe gegen die Temperatur wurde für die einzelnen Proben die Curietemperatur ermittelt, indem die Kurve zunächst in einen ferromagnetischen Teil mit bestehender Remanenzmagnetisierung und einen paramagnetischen Teil zerlegt wurde. Im paramagnetischen Teil der Kurve ist der remanente Querwiderstand in etwa konstant, er muß aber durch das Auftreten ohmscher Zusätze aufgrund fehlerhafter Probengeometrie oder Inhomogenitäten der Probe nicht auf Null abfallen. Unterhalb der Curietemperatur steigt die Remanenzmagnetisierung M_0 mit abnehmender Temperatur. Der Kurvenverlauf wurde grob angenähert, indem im ferro- und im paramagnetischen Teil der Kurve jeweils eine Gerade an die Meßpunkte angepaßt wurde. Der Schnittpunkt der beiden Geraden stellt den Temperaturpunkt T_C dar, bei dem die Kurve in den ferromagnetischen Zustand übergeht. In Bild 3.23 ist das Verfahren beispielhaft für die GaMnNAs-Probe B087 dargestellt. Es ergibt sich aus dem Schnittpunkt der Geraden eine Curietemperatur von 36±5 K, was sich mit dem Wert aus der Bestimmung der Curietemperatur über den Arrott-Plot deckt. Nach dem oben beschriebenen Verfahren wurden Curietemperaturen von Proben mit einem Mangangehalt von $x = 0.009$ bis $x = 0.051$ bestimmt. Die Daten der Proben sind in Tabelle 3.1 dargestellt. Zwei Proben, die Stickstoff enthalten, wurden ebenfalls untersucht, wobei sich die Probe B130 mit 2.49% Mn und 1.27% N als zu hochohmig herausstellte, um ein verwertbares Ergebnis zu liefern. Die Ergebnisse der Bestimmung der Curietemperatur sind in Abbildung 3.24 über dem Mangangehalt der Proben dargestellt.

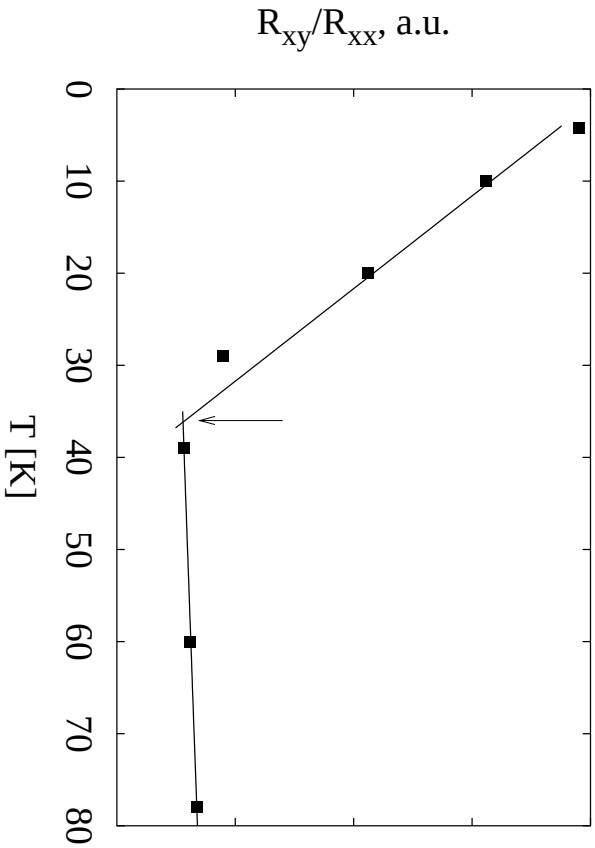


Abbildung 3.23: Bestimmung der Curietemperatur für die Probe B087 mit 1.36 % Mn und 0.79 % N. Der Pfeil markiert die abgelesene Temperatur, 36K.

Man erkennt einen deutlichen Anstieg der Curietemperatur mit der Konzentration x der Mangan-Ionen. Die höchste Curietemperatur liegt für die Probe B049 mit einem Mn-Gehalt von 5.1% bei 81 ±5K, was sich nicht ganz mit dem Ergebnis früherer Messungen von 95K deckt [29]. Allerdings sind die früher durchgeführten Messungen mit einem größeren Fehler behaftet.

3.6 Bestimmung der Ladungsträgerdichte

3.6.1 Abschätzung bei tiefer Temperatur

Im Rahmen der Diplomarbeit konnten am Hochmagnetfeldlabor des CNRS[1] in Grenoble temperaturabhängige Meßreihen bei Magnetfeldern von −22T bis hin zu 22T durchgeführt werden. Dabei wurden bei Temperaturen von etwa 4.2K bis Raumtemperatur jeweils der Schicht- und der Hallwiderstand der Proben in hoher Auflösung mit Lock-In-Verstärkern aufgenommen. Die Messung bei zwei verschiedenen Stromrichtungen und die Mittelung darüber

[1] Centre Nationale de la Recherche Scientifique

Probe	Mangan in %	Stickstoff in %	Schichtdicke d in nm	T_C in K
B095	0.87	-	570	22
B125	0.94	-	190	17
B093	1.23	-	870	22
B100	1.23	-	790	26
B020	1.27	-	260	27
B099	1.39	-	790	27
B101	1.89	-	790	25
B022	2.15	-	330	42
B090	2.22	-	670	27
B102	2.7	-	790	42
B126	3.4	-	130	45
B023	4.25	-	330	57
B049	5.1	-	330	81
B087	1.36	0.79	670	36
(B130	2.49	1.27	130	-)

Tabelle 3.1: Daten der untersuchten Proben

ergibt sich durch das Anlegen einer Wechselspannung mit ca. 10 Hz an die bereits beschriebenen Hallbars und Messung des Effektivwerts (RMS) von allein. Da der anomale Beitrag zum Hallwiderstand im betrachteten Temperaturbereich überwiegt, ist nach Gleichung (3.4) zu erwarten, daß sich ein Hallwiderstand proportional zur Magnetisierung einstellt, für die bei hohen Magnetfeldern und tiefer Temperatur eine Sättigung erwartet wird. Das Hauptziel der Hochfeldmessungen lag darin, den Hallwiderstand bei Sättigung der Magnetisierung und des negativen Magnetowiderstands aufzunehmen, um daraus über die Steigung des normalen Hallwiderstands die Ladungsträgerdichte in Proben mit unterschiedlichem Mangangehalt x abschätzen zu können.

Probleme entstehen hierbei allerdings durch die Tatsache, daß sich die anomale Hallkonstante R_S , wie in Gleichung (3.5) beschrieben, proportional zum Schichtwiderstand R_{xx} verhält [21]. Um die Ladungsträgerdichte aus den Transportdaten verläßlich bestimmen zu können, muß also neben der Magnetisierung auch der negative Magnetowiderstand bei den betrachteten Feldern eine Sättigung erfahren. Dies war bei den von uns gemessenen Proben bis zu 22T allerdings nicht der Fall, wie in Abbildung 3.25 im inneren Bild deutlich zu erkennen ist. Ohno et al. konnten die Trägerdichte bei Temperaturen von 50mK und bei einem Magnetfeld von 27T aus der Steigung

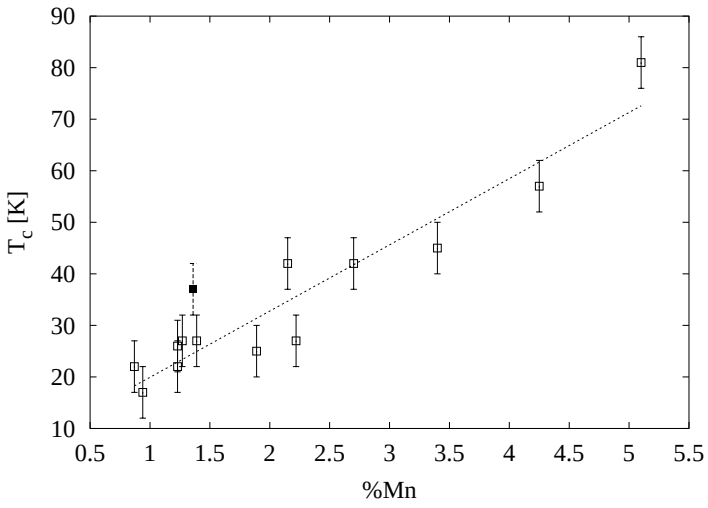


Abbildung 3.24: Curietemperaturen für Proben mit unterschiedlichem Mangangehalt. Das ausgefüllte Quadrat bezeichnet die Probe B087 mit 0.79% Stickstoff, die zur Berechnung der Geraden nicht berücksichtigt wurde.

der Hallspannung bestimmen, aber selbst dort ist der negative Magnetowiderstand noch nicht vollständig gesättigt [34]. Deshalb wurde im Folgenden versucht, den Beitrag des negativen Magnetowiderstands rechnerisch aus den gemessenen Daten zu entfernen.

Um die Ladungsträgerdichte p abzuschätzen, wurde die gemessene Querspannung U_{xy} zunächst nach der folgenden Methode symmetrisiert: Da die Hallspannung mit dem Wechsel der Magnetfeldrichtung ihren Betrag beibehalten, ihr Vorzeichen aber umkehren sollte

$$U_{\mathrm{H}}\left(B_{\mathrm{i}}\right) = -U_{\mathrm{H}}\left(-B_{\mathrm{i}}\right) \tag{3.23}$$

wurde die Hälfte der Differenz der gemessenen Spannungen zu entgegengesetzten Magnetfeldern bestimmt und jeweils einem Wert des Magnetfelds zugeordnet.

$$U_{\mathrm{H}}\left(B_{\mathrm{i}}\right) = \frac{1}{2}\left(U_{\mathrm{xy}}\left(B_{\mathrm{i}}\right) - U_{\mathrm{xy}}\left(B_{(\text{-i})}\right)\right) \tag{3.24}$$

Mit dieser Symmetrisierung sollten die meisten Nebeneffekte wie ein immer auftauchender konstanter Offset unterdrückt werden. Aus den symmetrisierten Spannungen U_{xy} wurde der Querwiderstand bestimmt, bevor im Bereich oberhalb von 19T und unter -19T zwei Geraden mit den Steigungen m_1, m_2 angefittet und darüber gemittelt wurde. In Abbildung 3.25 ist das Verfahren

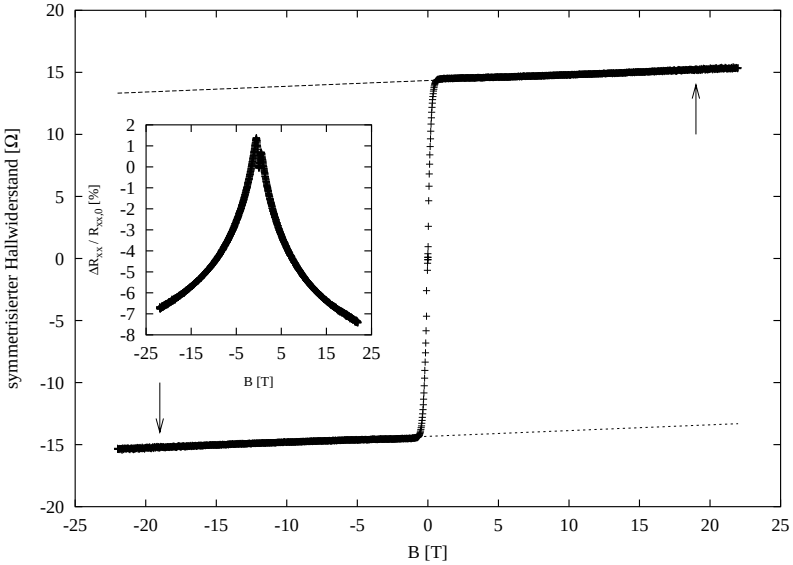


Abbildung 3.25: Abschätzung der Ladungsträgerdichte für die Probe B049 mit 5.1% Mangangehalt. Die Pfeile bezeichnen die Stellen, von denen an die Werte zur Bestimmung der Steigung herangezogen wurden. Die kleinere Abbildung im Inneren zeigt den Magnetowiderstand der Probe aus derselben Meßreihe.

am Beispiel der Probe B049 mit 5.1% Mn-Gehalt dargestellt. Dabei ergeben sich für manche Proben wegen des starken negativen Magnetowiderstands negative Steigungen der angelegten Geraden, was darauf schließen läßt, daß die Abschätzung aus den bestimmten Steigungen nicht funktionieren würde. Da sich der Hallwiderstand aber proportional zur Magnetisierung M und zum Längswiderstand R_{xx} verhält, kann aus den Daten unter Annahme der Sättigung der Magnetisierung ab einem bestimmten Wert des magnetischen Felds B_{S} der vom Längswiderstand abhängige Beitrag entfernt werden. Mit der Sättigungsmagnetisierung M_{S} gilt

$$R_{\mathrm{Hall}} = \frac{R_{\mathrm{H}}}{d} B + \underbrace{\frac{c}{d} M_{\mathrm{S}}}_{k} R_{\mathrm{xx}} \quad , \tag{3.25}$$

woraus sich die Konstante k bestimmen läßt:

$$k \approx \frac{R_{\mathrm{xy}}\,(B_{\mathrm{S}})}{R_{\mathrm{xx}}\,(B_{\mathrm{S}})} \tag{3.26}$$

Jetzt kann der Beitrag kR_{xx} aus den gemessenen Daten entfernt werden und wiederum an den linken und den rechten Ast der Messungen zwei Geraden mit den Steigungen m_1 und m_2 angelegt werden. In Abbildung 3.26 sind die Daten aus Abbildung 3.25 nach Abzug des Faktors kR_{xx} dargestellt, man erkennt, daß sich der magnetisierungsabhängige Teil der symmetrisierten Querspannung stark verringert hat. Der verbleibende Teil, der sich in einer Verschiebung der beiden angelegten Geraden um den Nullpunkt zeigt, wird durch Ungenauigkeiten in der Bestimmung der Sättigungsmagnetisierung und der Konstanten k verursacht.

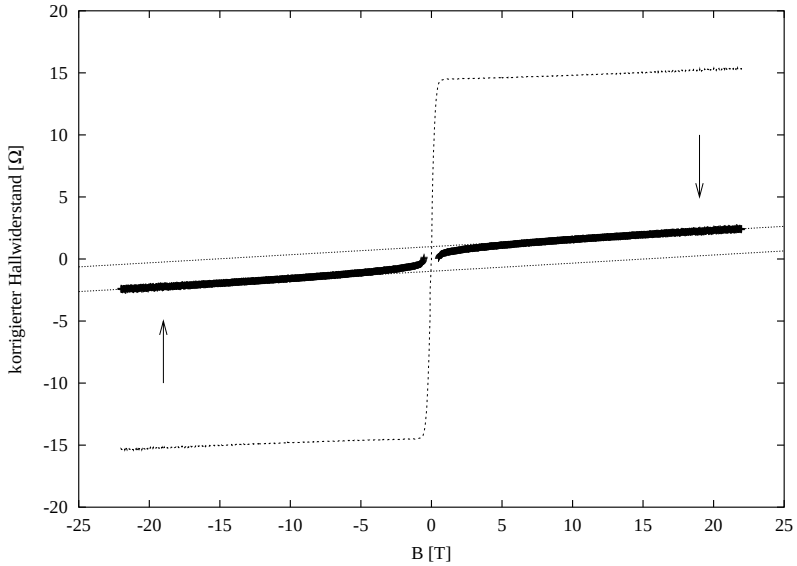


Abbildung 3.26: Zur Abschätzung der Ladungsträgerdichte für die Probe B049 mit 5.1% Mangangehalt aus den korrigierten Daten. Die Pfeile bezeichnen die Stellen, von denen an die Werte zur Bestimmung der Steigung herangezogen wurden. Zum Vergleich sind die Werte vor der Korrektur gestrichelt mit eingezeichnet.

Aus den Steigungen konnte unter der Annahme der Sättigung von Magnetisierung und nach Entfernen des Beitrages aus dem Magnetowiderstand die Ladungsträgerdichte p' nach

$$p' = \frac{2}{ed(m_1 + m_2)} \qquad (e\text{: Elementarladung, } d\text{: Schichtdicke}) \qquad (3.27)$$

abgeschätzt werden. Die Ergebnisse der Abschätzung sind in Tabelle 3.2

zusammengestellt.

Probe	Ga/As	Mn-Gehalt in %	N-Gehalt in %	abgeschätzte Größe p' in $1/\mathrm{cm}^3$
B020	30	1.27	-	$2.61 \cdot 10^{19}$
B022	30	2.15	-	$2.43 \cdot 10^{20}$
B023	30	4.25	-	$3.48 \cdot 10^{20}$
B049	30	5.1	-	$2.84 \cdot 10^{20}$
B049 (340°)	30	5.1	-	$3.21 \cdot 10^{20}$
B049 (380°)	30	5.1	-	$3.45 \cdot 10^{20}$
B099	10	1.39	-	$1.58 \cdot 10^{20}$
B100	10	1.23	-	$1.97 \cdot 10^{20}$
B087	10	1.36	0.79	$7.89 \cdot 10^{19}$

Tabelle 3.2: Abschätzung der Ladungsträgerdichte aus dem Hallwiderstand bei hohem Magnetfeld. Die Proben sind aufsteigend nach Mangangehalt geordnet.

Die bei 340°C und 380°C getemperten Proben stammen aus einer Serie von bei unterschiedlichen Temperaturen getemperten Stücken der Probe B049 mit einem Mangangehalt von $x = 0.051$. Aus dieser Serie existierten Proben, die auf 340, 360, 380 und 400°C aufgeheizt wurden, um die Auswirkungen auf das Material zu untersuchen. Die beiden Stücke, die mit 360°C und 400°C getempert wurden, konnten nicht gemessen werden, da sich die Probe die mit der höheren Temperatur behandelt wurde, als zu hochohmig herausstellte, um verwertbare Ergebnisse zu erhalten und die Probe bei 360°C defekte Bondkontakte aufwies. Aus den verbleibenden Werten kann abgelesen werden, daß sich die Ladungsträgerdichte beim Ausheizen zunächst im Vergleich zu den Ungetemperten zu erhöhen scheint. Bei weiterer Erhöhung der Ausheiztemperatur steigt der Widerstand der Proben aber zu sehr an, um aus den Transportdaten Aussagen treffen zu können.

3.6.2 Abschätzung bei Raumtemperatur

Um Aussagen über das Funktionieren einer Bestimmung der Ladungsträgerdichte aus Transportmessungen bei Raumtemperatur und vergleichsweise niedrigen Magnetfeldern treffen zu können wurden dieselben Proben, die auch bei tiefer Temperatur und hohem Feld gemessen wurden, bei Raumtemperatur und Magnetfeldern von -0.5 bis 0.5T untersucht. Nach dem bisher Gesagten ist das Funktionieren einer solchen Bestimmung aber sehr fragwürdig. Die Proben wurden in einem nicht gekühlten Oxford-Kryostaten

bei einer Temperatur von etwa 290K vermessen, der Wert der Querspannung U_xy an den Hallbars wieder über zwei entgegengesetzte Stromrichtungen gemittelt. Auch bei diesen Messungen fällt ein trotz der Mittelung nicht verschwindender Offset in der Querspannung auf. Bei Raumtemperatur verläuft die gemessene Spannung linear mit dem Magnetfeld, so daß sich einfach aus dem Anlegen einer Geraden an die Meßwerte die Steigung der Spannung bestimmen läßt. Da hier kein Anlaß für eine Symmetrisierung gesehen wurde, ergibt sich aus der Messung nur eine Steigung aus der nach Umrechnung in eine Steigung des Widerstands m die Größe

$$p'' = \frac{1}{edm} \qquad (e\text{: Elementarladung, } d\text{: Schichtdicke}) \tag{3.28}$$

bestimmt wurde.

Probe	Mangangehalt (%)	p'' (Raumtemperatur)	p' (4.2K)
B020	1.27	$5.39 \cdot 10^{19}$	$2.61 \cdot 10^{19}$
B087	1.36	$6.74 \cdot 10^{19}$	$7.89 \cdot 10^{19}$
B099	1.39	$9.88 \cdot 10^{19}$	$1.58 \cdot 10^{20}$
B101	1.89	$1.09 \cdot 10^{20}$	-
B022	2.15	$2.80 \cdot 10^{20}$	$2.43 \cdot 10^{20}$
B023	4.25	$7.45 \cdot 10^{19}$	$3.48 \cdot 10^{20}$
B049	5.1	$7.95 \cdot 10^{19}$	$2.84 \cdot 10^{20}$

Tabelle 3.3: Abschätzung der Ladungsträgerdichte p bei Raumtemperatur. Zum Vergleich sind die Werte aus den Hochfeldmessungen bei tiefer Temperatur mit angegeben.

Die aus den Hallmessungen bei Raumtemperatur abgeschätzten Werte sind mit den Werten aus den Hochfeldmessungen bei Heliumtemperatur in Tabelle 3.3 aufgeführt. Sie zeigen ein recht willkürliches Verhalten, es ist kein direkter Zusammenhang mit der Mangankonzentration x zu erkennen, ebensowenig eine Korrelation mit den Werten aus der Bestimmung im vorigen Abschnitt. Wie bereits in Abschnitt 3.3 erwähnt, ist davon auszugehen, daß auch bei Raumtemperatur der anomale Anteil der Hallkonstanten überwiegt. Da bei Raumtemperatur keine Sättigung der Magnetisierung im betrachteten Feldbereich auftritt, ist es hier auch nicht möglich, den Beitrag des anomalen Halleffekts zu entfernen. Daher ist davon auszugehen, daß die abgeschätzten Werte nicht der Ladungsträgerdichte p in GaMnAs entsprechen.

3.6.3 Abschätzung der Beweglichkeit aus dem Schichtwiderstand

Setzt man für den Transport der Ladungen das Drudemodell freier Ladungsträger an, so kann man aus dem gemessenen Schichtwiderstand R_{xx} und angenommenen Ladungsträgerdichten die Beweglichkeit der Ladungsträger in GaMnAs abschätzen. Die Leitfähigkeit kann nach $\sigma = 1/\rho_{xx}$ aus dem spezifischen Schichtwiderstand $\rho_{xx} = R_{xx} \cdot d$ bestimmt werden. Für freie Ladungsträger kann die Abschätzung der Beweglichkeit μ aus

$$\mu = \frac{\sigma}{ep} \tag{3.29}$$

erfolgen, wobei e die Elementarladung und p die Dichte der freien Ladungsträger ist. Unter der Annahme, daß die im vorigen Abschnitt aus Hochfeldmessungen bei tiefen Temperaturen bestimmten Werte der Ladungsträgerdichte entsprechen, lassen sich für die Beweglichkeit der Ladungsträger die Werte aus Tabelle 3.4 abschätzen.

Probe	Mangangehalt in %	Stickstoffgehalt in %	Abschätzung der Beweglickeit in cm^2/Vs
B100	1.23	-	1.64
B020	1.27	-	0.77
B099	1.39	-	1.27
B022	2.15	-	3.57
B023	4.25	-	2.94
B049	5.1	-	4.71
B049 (340°C)	5.1	-	2.74
B049 (380°C)	5.1	-	1.34
B087	1.36	0.97	1.27

Tabelle 3.4: Abschätzung der Beweglichkeit aus dem Schichtwiderstand. Die Proben sind aufsteigend nach Mangangehalt geordnet.

Auch die Ergebnisse dieser Abschätzung sind nicht besonders gut. Es ist kein Zusammenhang mit dem Mangangehalt der Schichten zu erkennen, allerdings sinkt die Beweglichkeit bei den getemperten Proben mit ansteigender Ausheiztemperatur. Da aber aus der Serie dieser Proben nur drei vermessen werden konnten, kann auch hier keine definitive Feststellung getroffen werden. Zu erwähnen ist, das alle abgeschätzten Werte unter $10cm^2/Vs$ liegen, einer oberen Grenze, der bereits zur Schätzung der Ladungsträgerdichte aus dem Schichtwiderstand benutzt wurde [29].

3.6.4 Bestimmung der Ladungsträgerdichte über Ramanstreuung

Einige der in dieser Arbeit betrachteten Proben mit Mangangehalt von $x = 0$ bis $x = 2.7\%$ wurden mit Raman-Spektroskopie untersucht, um das Problem des überlagerten anomalen Halleffekts zu umgehen, das die Bestimmung der Ladungsträgerdichte über Hallmessungen sehr schwierig macht. Dabei wurden die Proben mit einem Ar^+-Laser angeregt und Spektren gekoppelter Moden von logitudinalen optischen (LO) Phononen und Elektronen- oder Loch-Plasmonen aufgenommen. Die Ladungsträgerdichte kann aus dem Spektrum durch eine Linienformanalyse erhalten werden [23]. Um einen Vergleich mit den Werten aus den Raman-Messungen zu haben, wurde die Ladungsträger über die Zahl der Atome pro Volumeneinheit abgeschätzt. Die Gitterkonstante in GaMnAs läßt sich über Vegard's Gesetz bestimmen [38]:

$$a_{\mathrm{Ga_{1-x}Mn_xAs}} = a_{\mathrm{GaAs}} + x(a_{\mathrm{MnAs}} = -a_{\mathrm{GaAs}}) \tag{3.30}$$

Hier bedeuten $a_{\mathrm{GaAs}} = 0.565360\mathrm{nm}$ [26] die Gitterkonstante in HT-GaAs, $a_{\mathrm{MnAs}} = 0.598\mathrm{nm}$ [29, 35] die hypothetische Gitterkonstante in kubischem MnAs und x wieder den Mangangehalt der Proben. Da ein Würfel der Kantenlänge $a_{\mathrm{Ga_{1-x}Mn_xAs}}$ im Material insgesamt 4 Atome enthält, kann jetzt unter der Annahme, daß jedes Mn-Atom im Material einen Akzeptor darstellt, die Dichte der Ladungsträger geschätzt werden.

Die Ergebnisse der Bestimmung der Ladungsträgerdichte über Ramanstreuung und der Abschätzung mittels Gitterkonstanten sind in Tabelle 3.5 zusammengestellt.

Probe	Mangangehalt in %	Ladungsträgerdichte Raman p in $1/\mathrm{cm}^3$	Ladungsträgerdichte geschätzt in $1/\mathrm{cm}^3$
B097	0.62	$5 \cdot 10^{18}$	$1.37 \cdot 10^{20}$
B096	0.64	$8 \cdot 10^{18}$	$1.42 \cdot 10^{20}$
B095	0.87	$1.5 \cdot 10^{19}$	$1.92 \cdot 10^{20}$
B099	1.39	$4 \cdot 10^{19}$	$3.07 \cdot 10^{20}$
B102	2.7	$\geq 1 \cdot 10^{20}$	$5.95 \cdot 10^{20}$

Tabelle 3.5: Abschätzung der Ladungsträgerdichte bei Raumtemperatur aus Raman- und Hallmessungen. Die Proben sind aufsteigend nach Mangangehalt geordnet.

Die Bestimmung der Ladungsträgerdichte aus der Linienformanalyse liefert bereits für einen Mangangehalt von x=2.7% nur eine untere Grenze für p, da die Linie sich mit der Zunahme von x zu stark verbreitert.

3.6.5 Zusammenfassung zur Bestimmung der Ladungsträgerdichte

Die Bestimmung der Ladungsträgerdichte in GaMnAs aus Magnetotransportmessungen gestaltet sich aufgrund des anomalen Halleffekt außerordentlich schwierig. Da die Bestimmung über Raman-Streuung wegen der Verbreiterung der Raman-Linien bereits für die Probe B102 mit einem Mangangehalt von x=0.027 nur eine untere Grenze für Ladungsträgerdichte liefert, scheint diese Methode auch keine Alternative zur Bestimmung der Ladungsträgerdichte aus Magnetotransportdaten zu sein.

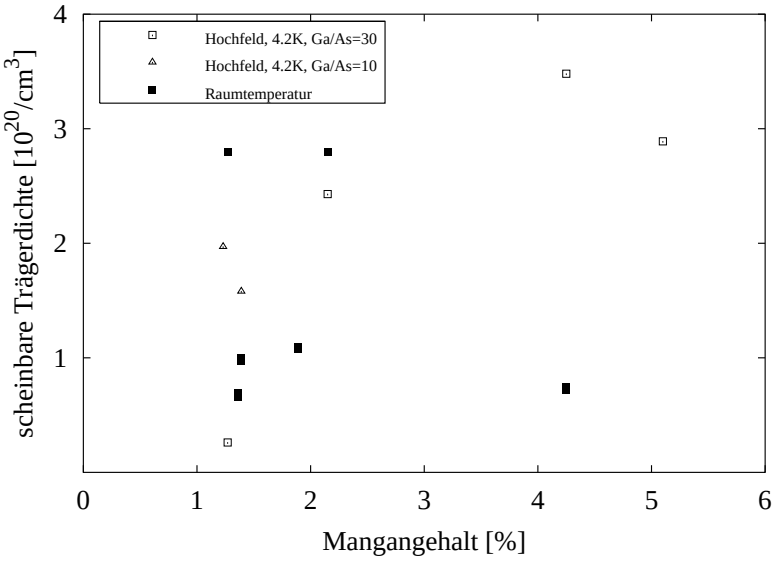


Abbildung 3.27: Bestimmung der Ladungsträgerdichte bei Raumtemperatur und bei 4.2K.

Die Ergebnisse aus der versuchten Bestimmung durch Transportuntersuchungen bei Raumtemperatur und bei Heliumtemperatur im Magnetfeld sind noch einmal gemeinsam in Abbildung 3.27 gegen den Mangangehalt der Proben aufgetragen. Hier ist deutlich zu erkennen, daß die Bestimmung bei Raumtemperatur keine physikalisch sinnvollen Werte liefert. Es ist keine erkennbare Tendenz bei unterschiedlichen Werten für den Mangangehalt oder eine Korrelation mit den den Werten aus der Bestimmung bei tiefer Temperatur un hohem Feld zu erkennen.

Die Kurve der Werte, die aus den Daten bei hohem Magnetfeld und tiefer Temperatur bestimmt wurden, zeigen jedoch einen Anstieg der Ladungsträgerdichte mit dem Mangangehalt, wenn man außerdem berücksichtigt, daß die untersuchten Schichten mit unterschiedlichen Ga-/As-Flußraten gewachsen wurden. Die Werte, die mit einem Ga/As-Verhältnis von 10 gewachsen wurden, liegen leider zu nahe beieinander, um guten Gewissens Aussagen über die Bestimmung der Ladungsträgerdichte treffen zu können. Die Werte für die Proben, die mit eine Ga/As-Verhältnis von 30 gewachsen wurden, zeigen aber einen Anstieg bis zur Probe B049 mit x=0.051, bei der der Wert wieder leicht abfällt. Daher ist, wenn überhaupt eine der Methoden verwertbare Ergebnisse liefern sollte, der Methode der Bestimmung aus der Querspannung bei hohen Magnetfeldern zu vertrauen.

3.7 Aufbau eines Magnetsystems für Transportuntersuchungen bei hohen Magnetfeldern

Im Rahmen der Diplomarbeit wurde ein Magnetsystem der Firma Oxford aufgebaut, das es ermöglichen soll, Transportmessungen bei Feldstärken von -17 bis 17T im Temperaturbereich von ca. 1.2K bis Raumtemperatur durchzuführen. Das System ist in drei Komponenten aufgeteilt, die im Dewargehäuse ineinander montiert sind: Dewargehäuse mit Heliumreservoir, λ-Stufe und Temperatureinsatz (VTI[2]).

Der Dewar selbst ist ein superisoliertes Modell, das im Gegensatz zu Kryostaten mit einem Wärmeschild aus flüssigem Stickstoff in einer äußeren Kammer mit einer Superisolation, bestehend aus mehreren Lagen einer dünnen Folie im Hochvakuum, ausgerüstet ist. Im Inneren des Vakuums befindet sich ein Heliumtank, in dem im unteren Teil der Magnet montiert ist. Um das System abzukühlen, wird zunächst das Heliumreservoir nach Vorkühlen mit flüssigem Stickstoff über einen Heliumheber aus einer Transportkanne mit flüssigem Helium befüllt. Das Reservoir faßt insgesamt 51.1l Helium, wovon ca. 11l benötigt werden, um die Magnetspulen aus Nb_3Sn im supraleitenden Zustand zu halten. Der Vorteil der supraleitenden Spulen liegt beim deutlich geringeren Energieverbrauch, der dem Mehrverbrauch an flüssigem Helium gegenübersteht. Die Magnetspulen werden von einem mikroprozessorgesteuerten Netzteil mit dem für die Erzeugung des Feldes nötigen Strom versorgt. Der fließende Strom bei 17T berträgt etwa 115 A, bei 4.2K erreicht der Magnet allerdings nur ein Magnetfeld von ungefähr 15T.

Um die Magnetspulen auf die für die Erzeugung eines Felds von 17T notwendige Temperatur von ca. 2.2K zu bringen, ist direkt über dem Magnet im flüssigen Helium eine λ-Stufe montiert. Sie kühlt den Raum

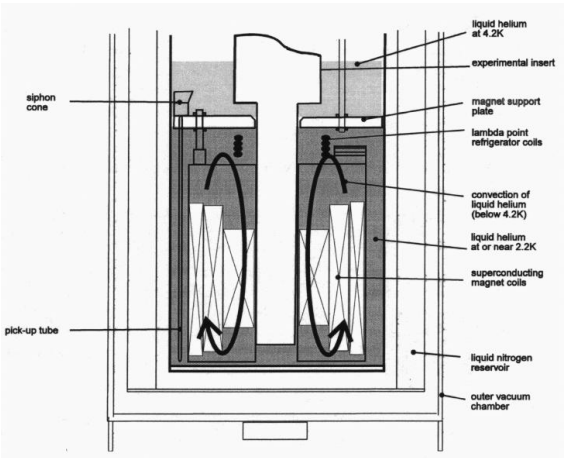


Abbildung 3.28: Schematische Darstellung der Lambdastufe im Kryostaten.

[2] *V*ariable *T*emperature *I*nset

unterhalb des Heliumreservoirs, in dem sich der Magnet befindet, indem durch eine Pumpe von Außen etwas Helium aus dem Reservoir über ein Nadelventil in einem metallischen Wärmetauscher direkt über dem Magneten gezogen wird. Da das flüssige Helium eine schlechte Wärmeleitfähigkeit besitzt, verteilt sich die abgekühlte Flüssigkeit durch Konvektion, das kältere Helium bewegt sich am Magnet vorbei nach unten bis die Flüssigkeit unterhalb der λ-Stufe die geforderte Temperatur erreicht hat. Als schnellere Alternative kann das komplette Reservoir mitsamt der Magnetspulen durch Abpumpen des Volumens über der Oberfläche des flüssigen Heliums gekühlt werden, wodurch der Heliumverbrauch aber deutlich ansteigt.

Die zu untersuchende Probe sitzt in einem speziellen Einsatz, der VTI, die die Kühlung bzw. Heizung des Probenraumes übernimmt. Die VTI sitzt im Inneren der Magnetspule, so daß sich die Probe nach Möglichkeit in der Mite des Magnetfelds befindet. Der Probenhalter kann von oben in die VTI eingesetzt werden, er ist von Außen in der Höhe verstellbar, um die zu untersuchende Probe in die Mitte des Magnetfelds justieren zu können. Der Probenraum in der VTI kann dank ihrer guten Isolierung auch bei abgekühlten Magnetspulen bis ca. 300K aufgeheizt werden.

Mit dem hier kurz vorgestellten System sollte es in Zukunft möglich sein, Magnetotransportuntersuchungen verschiedenster Materialien im Temperaturbereich von 2.2K bis 300K bei hohen magnetischen Feldern durchzuführen. Damit besteht unter Anderem die Möglichkeit, die Bestimmung der Ladungsträgerdichte aus Messungen des Halleffekts systematischer zu untersuchen.

Kapitel 4

Injektion spinpolarisierter Ströme in Halbleiter

Für die Entwicklung von Bauteilen, die auf der Basis des Spins von Ladungsträgern funktionieren, ist es nötig, Ladungsträger spinpolarisiert in Halbleitermaterialien injizieren zu können. Dies wurde bereits von mehreren Gruppen an magnetischen Halbleitern, beispielsweise an CdMnTe [16], aber auch an GaMnAs [25], durchgeführt. Hier sollte die Injektion spinpolarisierter Ströme mit einer Esaki-Diode durchgeführt werden.

4.1 Spinpolarisation mit der Esaki-Diode

Eine Tunneldiode besteht aus einem Übergang einer p- und einer n-Schicht, bei dem sowohl die p- als auch die n-Seite entartet dotiert sind. Der Tunneleffekt führt zu einer grob N-förmigen Strom-Spannungs-Kennlinie mit einem Bereich mit negativem differentiellen Widerstand. Dies wurde, obwohl es bereits vorher beobachtet wurde, erstmals von L. Esaki [7] 1958 gedeutet. Die anomale Kennlinie einer Esaki-Diode ergibt sich aus insgesamt vier Effekten:

- Bei geringer Vorwärtsspannung können Elektronen aus dem Leitungsband der n-Seite durch die verbotene Zone zu leeren Zuständen im Valenzband der p-Seite tunneln. Bei maximalem Überlapp der Elektronenzustände mit den freien Zuständen im Valenzband der p-Seite ergibt sich ein Maximum des Tunnelstroms.

- Wird die Spannung weiter erhöht, so nimmt der Tunnelstrom wieder ab, da der Überlapp der Zustände wieder absinkt und weniger Elektronen zum Tunnelstrom beitragen können.

- Elektronen aus dem Leitungsband können über tiefe Störstellen in der Bandlücke in mehreren Schritten ins Valenzband tunneln.

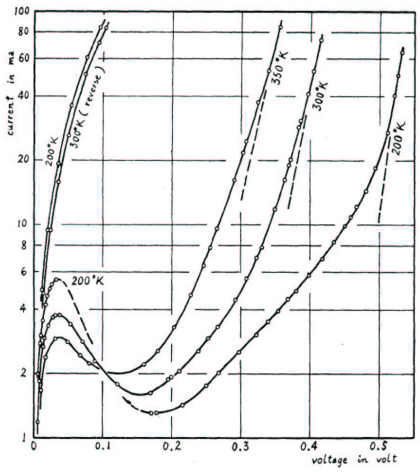


Abbildung 4.1: Kennlinien einer Esaki-Diode bei mehreren Temperaturen (aus [7]). Deutlich ist die N-förmige Kurvenform zu erkennen.

- Bei großer Vorwärtsspannung schließlich fließt der thermisch aktivierte konventionelle Diodenstrom.

Wird nun in einer solchen Tunneldiode auf der p-Seite eine GaMnAs-Schicht verwendet, so spaltet unterhalb der Curietemperatur das Valenzband aufgrund der Magnetisierung des Materials auf (Zeeman-Effekt). Es bilden sich auf der p-Seite vier Bänder, deren Zustände sich durch die Einstellung der Spins und ihre Größe unterscheiden: jeweils ein spin-up- und spin-down-Band für leichte Löcher mit Spin $\pm 1/2$ und schwere Löcher mit Spin $\pm 3/2$. Wenn sich das Ferminiveau auf der p-Seite zwischen den unteren beiden und den oberen beiden aufgespaltenen Energiezuständen befindet, so werden nur die energetisch niedrigeren Niveaus mit Elektronen einer Spineinstellung besetzt. Wenn jetzt an die Diode in Sperrichtung eine Spannung angelegt wird, so können spinpolarisierte Elektronen aus dem Valenzband der p-dotierten Seite ins Leitungsband der n-Seite tunneln.

Mit einer solchen Diode sollte es also möglich sein, statt spinpolarisierten Löchern spinpolarisierte Elektronen in das Leitungsband der n-dotierten Seite zu transportieren. Damit wäre der Nachteil der schnelleren Spin-Dephasierung der Löcher aufgrund stärkerer Wechselwirkung mit dem umgebenden Kristallgitter umgangen.

4.2 Abschätzung der zu erwartenden Spinpolarisation

Zur Abschätzung der erwarteten Spinpolarisation einer Schicht mit Mn-Konzentration x wird von der Fermienergie im Valenzband ausgegangen, die über die Zustandsdichte der Ladungsträger mit den effektiven Massen

m_{lh} (leichte Löcher) und m_{hh} (schwere Löcher) bestimmt werden kann:

$$D(E)_{\mathrm{lh/hh}} = \frac{1}{6\pi^2}\left(\frac{2m_{\mathrm{lh/hh}}}{\hbar^2}\right)^{3/2}\sqrt{E} \tag{4.1}$$

Für die Abschätzung der zu erwartenden Spinpolarisation wird dabei von einer effektiven Löchermasse $m^*_{\mathrm{hh}} = 0.51m_e$ für schwere Löcher und $m^*_{\mathrm{lh}} = 0.082m_e$ (m_e: Elektronenmasse) in GaAs ausgegangen [4], da die effektiven Massen in GaMnAs unbekannt sind. Diese Näherung für die effektiven Massen ist wegen der kleinen Mangan-Konzentration im untersuchten Material wohl auch gut gerechtfertigt. Die Aufspaltung des Valenzbandes im betrachteten Kristall kann über den Betrag der Austauschenergie $N_0\beta$ abgeschätzt werden:

$$\Delta E_{\mathrm{lh/hh}} = \frac{1}{3}m_{\mathrm{j}}\, N_0\beta x < S_z > \ . \tag{4.2}$$

In der obigen Formel bedeuten m_j die magnetischen Quantenzahlen der Löcher im Mn-Loch-Komplex, $\pm(3/2)$ für schwere Löcher und $\pm(1/2)$ für leichte Löcher, und $< S_z >= 5/2$ den Spin der Manganatome unter der Anahme eines großen Magnetfeldes [14]. Da das Integral über die Zustandsdichten der einzelnen Niveaus bis zur Fermi-Energie wieder die Konzentration der insgesamt vorhandenen Ladungsträger p ergeben muß, kann die Fermi-Energie aus

$$\begin{aligned} p = & \int_{-\Delta E_{\mathrm{lh}}}^{E_{\mathrm{F}}} D_{\mathrm{lh}}\ (E + \Delta E_{\mathrm{lh}}\ )\, dE + \int_{+\Delta E_{\mathrm{lh}}}^{E_{\mathrm{F}}} D_{\mathrm{lh}}\ (E - \Delta E_{\mathrm{lh}}\ )\, dE + \\ & \int_{-\Delta E_{\mathrm{hh}}}^{E_{\mathrm{F}}} D_{\mathrm{hh}}\ (E + \Delta E_{\mathrm{hh}}\ )\, dE + \int_{+\Delta E_{\mathrm{hh}}}^{E_{\mathrm{F}}} D_{\mathrm{hh}}\ (E - \Delta E_{\mathrm{hh}}\ )\, dE \end{aligned} \tag{4.3}$$

bestimmt werden, indem die Integration ausgeführt und die Gleichung numerisch für angenommene Werte der Ladungsträgerdichte p nach der Fermi-Energie E_{F} aufgelöst wird. Probleme ergeben sich bei der Abschätzung durch die Tatsache, daß die Austauschenergie $N_0\beta$ für GaMnAs nicht bekannt ist. In der Literatur finden sich für GaMnAs Werte zwischen 0.9 eV bis 4.9 eV, die mit einigen daraus abgeschätzten Werten für die Fermi-Energie in Tabelle 4.1 aufgeführt sind.

Damit kann die Aufspaltung der Zustände im Valenzband $\Delta E_{\mathrm{lh/hh}}$, die sowohl in die Berechnung der Fermi-Energie als auch in die Abschätzung der Spinpolarisation eingeht, nur grob abgeschätzt werden. Um die Spinpolarisation in Abhängigkeit der Fermi-Energie $P(E_{\mathrm{F}}\ )$ zu bestimmen, wurde jetzt wieder die Zustandsdichte $D(E)$ aus Gleichung (4.1) proportional zu $\sqrt{E}$ angesetzt und damit die Zahl der Ladungsträger N in einem ausgezeichneten

Spinzustand bestimmt:

$$N = \int_0^{E_F} D(E)dE \tag{4.4}$$

$$N_\uparrow \propto \int_{-\Delta E_{lh}}^{E_F} \sqrt{E+\Delta E_{lh}}\, m_{lh}^{3/2} dE + \int_{-\Delta E_{hh}}^{E_F} \sqrt{E+\Delta E_{hh}}\, m_{hh}^{3/2} dE \tag{4.5}$$

$$N_\downarrow \propto \int_{\Delta E_{lh}}^{E_F} \sqrt{E-\Delta E_{lh}}\, m_{lh}^{3/2} dE + \int_{\Delta E_{hh}}^{E_F} \sqrt{E-\Delta E_{hh}}\, m_{hh}^{3/2} dE \tag{4.6}$$

Die Spinpolarisation kann daraus nach [16]

$$P(E_F) = \frac{N_\uparrow(E_F) - N_\downarrow(E_F)}{N_\uparrow(E_F) + N_\downarrow(E_F)} \tag{4.7}$$

berechnet werden. Da damit die obere Grenze für die Spinpolarisation für eine gegebene Fermi-Energie gegeben ist, läßt sich jetzt bei bekannter Ladungsträgerdichte mit Hilfe der Fermi-Energie aus Gleichung (4.3) abschätzen, welcher Bruchteil der Ladungsträger in einem ausgezeichneten Spinzustand zu erwarten ist. Mit dieser Abschätzung läßt sich jedoch für eine reale Struktur nur eine obere Grenze der Spinpolarisation angeben, da sie Effekte wie die Spin-Dephasierung auf Wegstrecken durch die Struktur völlig außer Acht läßt.

Die Abschätzung wurde für eine GaMnAs-Probe mit einem Mn-Gehalt von $x = 2.9\%$ vorgenommen, an der versucht wurde, die Spinpolarisation über die Injektion eines spinpolarisierten Stromes in eine GaAs-Leuchtdiode (LED) nachzuweisen. Für die Ladungsträgerdichte wurde nach den Ergebnissen möglichst ähnlicher Proben aus Abschnitt 3.6 (B022 mit $x = 2.15\%$ und B102 mit $x = 2.7\%$) relativ willkürlich drei Werte von $1 \cdot 10^{20}, 2 \cdot 10^{20}$

$\mid N_0\beta \mid$ (eV)	E_F (meV) bei $p = 1 \cdot 10^{20}$ cm^{-3}	E_F (meV) bei $p = 2 \cdot 10^{20}$ cm^{-3}	E_F (meV) bei $p = 5 \cdot 10^{20}$ cm^{-3}
0.9 [9]	146.1	233.6	431.8
1.2 [35]	144.7	232.8	431.3
1.3 [10]	144.2	232.5	431.1
3.3 [33]	117.7	219.2	424.4
4.9 [18]	81.9	195.7	414.3

Tabelle 4.1: Literaturwerte für die Austauschwechselwirkung $N_0\beta$ und einige daraus abgeschätzte Werte der Fermi-Energie.

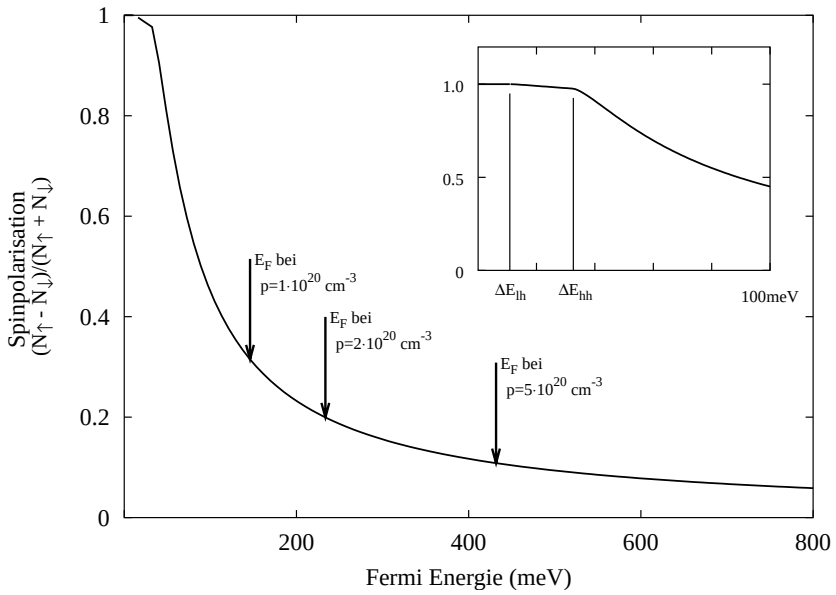


Abbildung 4.2: Abschätzung der Spinpolarisation mit verschiedenen Ladungsträgerdichten p für die Probe B170 unter Annahme einer Austauschwechselwirkung von $N_0\beta = 0.9$eV

und $5 \cdot 10^{20}$ 1/cm^3 gewählt. Die maximal zu erwartende Spinpolarisation für die drei unterschiedlichen Beträge der Austauschwechselwirkung sind in den Abbildungen 4.2 bis 4.4 gegen die Fermi-Energie bei gegebener Ladungsträgerdichte aufgetragen. Wie in Abschnitt 4.1 erläutert, werden in dem in vier Niveaus aufgespaltenen Valenzband nur die zwei unteren Bänder besetzt, solange die Fermi-Energie relativ zum tiefsten Energieniveau E_F kleiner als die maximale Aufspaltung des Bandes ΔE_hh bleibt. Damit werden die Zustände im Valenzband nur mit Ladungsträgern einer bestimmten Spinrichtung besetzt. Sobald die Fermienergie jedoch die Größe der Aufspaltung erreicht, fällt die Spinpolarisation wieder ab, weil jetzt für die Ladungsträger auch das niedrigere der zwei oberen Niveaus zur Verfügung steht. Der Abfall der Spinpolarisation beschleunigt sich weiter, sobald die Fermi-Energie die Aufspaltung des obersten Niveaus erreicht hat, was sich in den Abbildungen 4.2 bis 4.4 als Abknicken der Kurve bei den Energien der Aufspaltungen bemerkbar macht. Unter der Annahme der Austauschwechselwirkungen von $N_0\beta$ =0.9, 1.2 und 3.3 eV ergibt sich eine zu erwartende obere Grenze für die Spinpolarisation im Bereich von 10.8 bis zu 97.7%. Um eine Aussage über die maximal erreichbare Spinpolarisation der Probe treffen zu können, ist es folglich nötig, genauere Werte für die Austauschwechslwirkung $N_0\beta$ zu bestimmen.

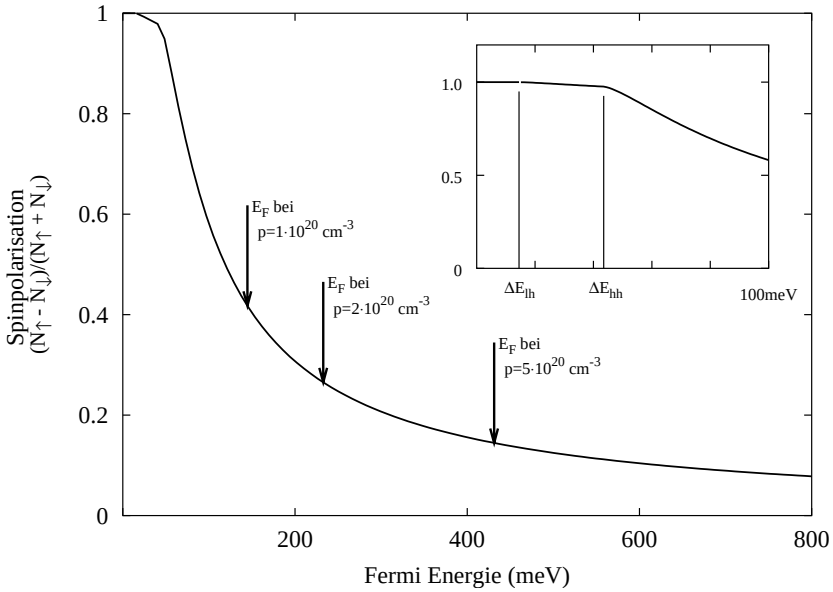


Abbildung 4.3: Abschätzung der Spinpolarisation mit verschiedenen Ladungsträgerdichten p für die Probe B170 unter Annahme einer Austauschwechselwirkung von $N_0\beta = 1.2$eV

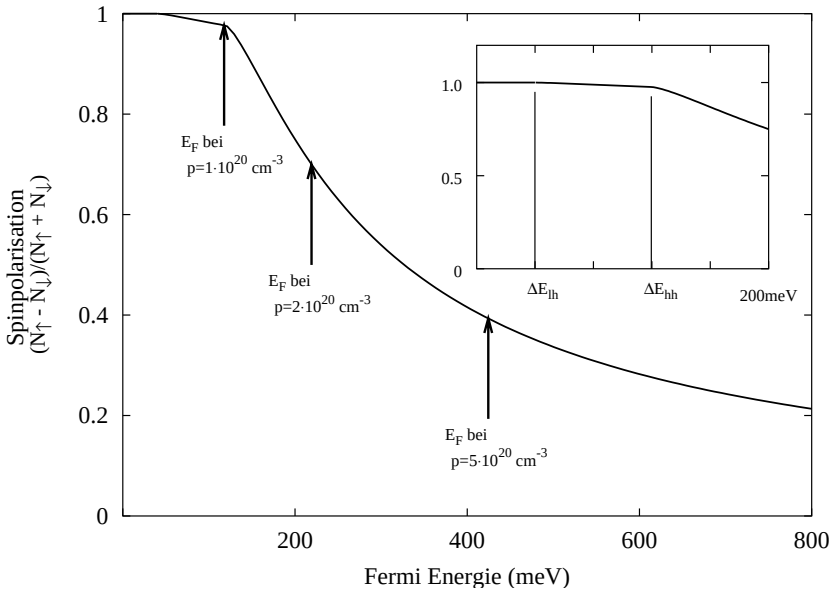


Abbildung 4.4: Abschätzung der Spinpolarisation mit verschiedenen Ladungsträgerdichten p für die Probe B170 unter Annahme einer Austauschwechselwirkung von $N_0\beta = 3.3$eV

4.3 Nachweis der Spinpolarisation

Die übliche Methode zum Nachweis von spinpolarisierten Ladungsträgern in magnetischen Halbleitern ist die optische Detektion über das Elektrolumineszenzlicht einer Schichtstruktur. In zinkblendeartigen Halbleitern sind die Auswahlregeln für strahlende Rekombination von Elektronen und Löchern vom Spin abhängig. Elektronen aus dem Leitungsband können mit leichten Löchern (magnetische Quantenzahl $m_j = \pm 1/2$) oder mit schweren Löchern ($m_j = \pm 3/2$) rekombinieren. Dabei ist die Wahrscheinlichkeit der Rekombination mit einem schweren Loch dreimal so hoch wie die Wahrscheinlichkeit für den Prozeß unter Beteiligung eines leichten Loches.

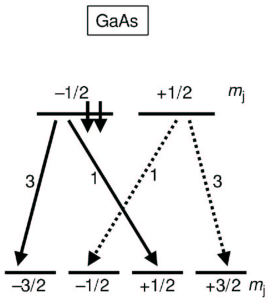


Abbildung 4.5: Erlaubte Übergänge für Elektronen mit spin up/spin down in GaAs (aus [17])

Da die Übergänge spinselektiv stattfinden, kann ein spin-up-Elektron ($m_j = +1/2$) wegen der Auswahlregel $\Delta m_j = \pm 1$ entweder mit einem schweren Loch (hh[1]) mit Spin $m_j = +3/2$ (spin-up) oder mit einem leichten Loch (lh[2]) mit Spin $m_j = -1/2$ (spin-down) rekombinieren. Im ersten Fall entsteht dabei σ^+-polarisiertes Licht, in zweiten Fall σ^--polarisiertes, also zirkular polarisiertes Licht unterschiedlicher Drehrichtung. Dasselbe gilt mit vertauschten Vorzeichen für Elektronen mit Spin $m_j = -1/2$ (spin-down) [12]. Wenn jetzt eine LED durch ein spinpolarisierendes Material von der n-Seite mit Elektronen mit vollständig ausgerichtetem Spin versorgt wird, so sollte ihr Elektrolumineszenzlicht (EL) nur aus Photonen der jeweiligen zirkularen Polarisation bestehen. Im realen Fall, mit nur einem bestimmten Bruchteil der Ladungsträgerspins mit ausgezeichneter Richtung, überwiegt der jeweilige Teil des Polarisierten Lichts im Spektrum, das EL-Licht ist also nicht mehr unpolarisiert. Der Grad der optischen Polarisation P_{opt} ist hierbei proportional zum Grad der Spinpolarisation P. Da das Übergangsmatrixelement für hh-Übergänge um den Faktor 3 größer ist als für die lh-Übergänge, kann die optische Polarisation wie folgt geschrieben werden:

$$P_{\text{opt}} = \frac{(3n^{\uparrow} + n^{\downarrow}) - (3n^{\downarrow} + n^{\uparrow})}{(3n^{\uparrow} + n^{\downarrow}) + (3n^{\downarrow} + n^{\uparrow})} \tag{4.8}$$

[1] Aus dem Englischen für *h*eavy *h*ole
[2] für *l*ight *h*ole

Dabei bedeuten $n^{\uparrow}$ und $n^{\downarrow}$ die Besetzungszahlen der jeweiligen Spin-1/2-Niveaus.

Zur Untersuchung der Spinpolarisation an einer Esaki-Diode wurde auf einer GaAs-LED mit einem InGaAs-Quantentopf, die in St.Petersburg hergestellt wurde, eine LT-GaMnAs-Schicht der Dicke $d = 250$nm mit einem Mangangehalt von $x = 2.9\%$ aufgewachsen. Der prinzipielle Aufbau der Struktur ist in Abb. 4.6 dargestellt. In der abgebildeten Struktur bilden die beiden oberen Schichten die Tunneldiode, durch die im Idealfall ein Strom spinpolarisierter Elektronen in die unter der obersten Schicht liegende GaAs-LED geleitet werden sollte. Die Kennlinie der untersuchten Probe in Abbildung 4.7 zeigt in Durchlaßrichtung der Esaki-Diode einen steilen Anstieg des Stromes schon bei etwa 0.5 V (Durchlaßrichtung der Esaki-Diode bedeutet das Anlegen der positiven Spannung an der GaMnAs-Schicht, in der Abbildung am oberen Ende). Da der Strom in diesem Fall durch die in Gegenrichtung geschaltete GaAs-LED beschränkt wird, kann der zu erwartende Wert für den steilen Anstieg in der Kennlinie bei positiven Spannungen aus der Bandlücke von GaAs zu etwa 1.5 V abgeschätzt werden. Daher wird davon ausgegangen, daß hier Leckströme fließen, die die Intensität des Elektrolumineszenzlichtes beschränken. Messungen an einer nicht überwachsenen LED zeigen diesen

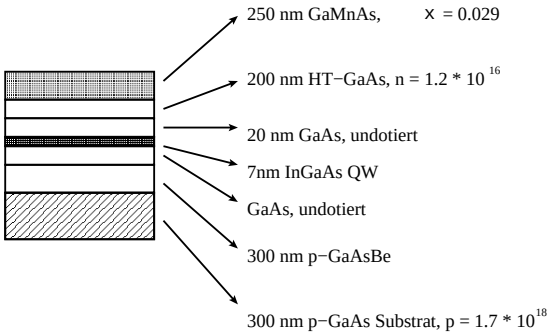


Abbildung 4.6: Aufbau der untersuchten Probe B170 mit 2.9% Mn-gehalt

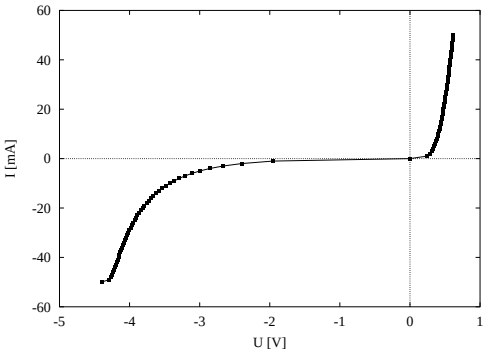


Abbildung 4.7: Kennlinie der Probe B170

Störeffekt ebenfalls. Daraus kann geschlossen werden, daß die LED bereits vor dem Aufbringen der Esaki-Diode von sehr schlechter Qualität ist.

Um die Injektion von spinpolarisierten Strömen zu untersuchen, wurde der Betrag der optischen Polarisation bei tiefer Temperatur für eine Reihe fester Magnetfelder im bereits bekannten magnetooptischen Oxford-Kryostaten gemessen. Da das Gerät ein optisches Fenster besitzt, konnte die Probe damit auf 4.2K abgekühlt werden, bevor ein fester Strom an die Struktur angelegt wurde. Das EL-Licht aus der Probenkammer wurde mit einem System von Linsen direkt nach dem Austritt aus dem Fenster des Kryostaten soweit als möglich parallelisiert, um möglichst wenig Intensität im Lichtweg zu verlieren. Als nächstes wurde der beinahe parallele Strahl durch ein $\lambda/4$-Plättchen und einen Linearpolarisator über einen Hohlspiegel in den Detektor, eine kommerzielle CCD-Kamera mit variablem Monochromator gelenkt, wo dann computergesteuert ein Frequenzspektrum des einfallenden Lichts erstellt wurde. Der optische Aufbau ist in Abbildung 4.8 dargestellt.

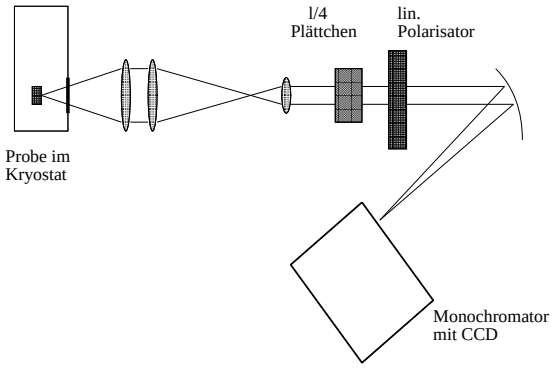


Abbildung 4.8: Schema des optischen Aufbaus zur Untersuchung der Injektion spinpolarisierter Ströme.

Beim verwendeten $\lambda/4$-Plättchen handelt es sich um ein Modell, bei dem sich sowohl die Hauptachsen des doppelbrechenden Kristalls relativ zur Polarisationsrichtung des einfallenden Lichts als auch die Wellenlänge, für die die Verschiebung der beiden Polarisationsebenen 90° beträgt, einstellen lassen. Es wurde kalibriert, indem Licht der passenden Wellenlänge mit einem Monochromator aus dem Spektrum einer Weißlichtlampe erzeugt wurde, welches dann durch einen Linearpolarisator mit Winkelstellung 45° relativ zum $\lambda/4$-Plättchen und durch das Plättchen auf einen Spiegel gelenkt wurde. Das reflektierte Licht wurde wiederum durch das Plättchen und den Linearpolarisator auf eine Photodiode geleitet, deren Signal mit einem Lock-In-Verstärker aufgenommen wurde. Jetzt wurde durch Verkippen des Plättchens im Lichtweg ein Minimum in der Intensität des registrierten Lichtes eingestellt.

Abbildung 4.9 zeigt auf diese Weise erstellte Spektren der Probe bei drei unterschiedlichen Stromstärken. Die kleine Abbildung im Inneren zeigt eine Leermessung ohne Strom durch die Probe. Im EL-Spektrum der Struktur treten zwei deutliche Peaks auf, der Peak bei niedrigerer Energie hat seine Ursache in der Rekombination von Elektronen mit Löchern im InGaAs-Quantentopf. Der stärker ausgeprägte Peak stammt aus der Rekombination in einer der GaAs-Schichten der Struktur. In der Leermessung erkennt man einen frequenzabhängigen Untergrund der im relevanten Bereich etwa 10-15 counts/s ausmacht, was selbst bei der höchsten dargestellten Stromstärke noch etwa 10% des gemessenen Signals beträgt. Alle Spektren zeigen einen schwach ausgeprägten Peak bei einer Energie knapp unter 1.8 eV, der durch eine Kontrollleuchte am Magnetnetzteil verursacht wurde. Diese Störfaktoren wurden aufgrund der niedrigen Intensität des Elektrolumineszenzlichts relevant.

Bei EL-Licht aus einem spinpolarisierten Strom sollte sich vor dem Plättchen eine zirkulare Polarisation des Lichts einstellen, woraus dann im $\lambda/4$-Plättchen durch die Phasenverschiebung von 90° in einer der Polarisationsrichtungen eine lineare Polarisation entstehen sollte. Mit dem linearen Polarisator kann dann durch Kreuzen der Polarisations- und der Polarisatoreinstellung die Richtung dieser Polarisation festgestellt werden. Da in unserem Experiment aber keine komplette Spinpolarisation erwartet wurde (vgl. 4.2), wurden Spektren in zwei zueinander senkrechten Richtungen (Polarisator 0° und 90°) aufgenommen und bei verschiedenen Magnetfeldern miteinander verglichen. Unter der Annahme eines in die LED injizierten spinpolarisierten Stromes sollte sich hier ein Unterschied in den Intensitäten I der beiden Einstellungen der Polarisationsrichtung ergeben, aus dem sich der Polarisationsgrad bestimmen läßt [25]:

$$P = \frac{I_{0^\circ} - I_{90^\circ}}{I_{0^\circ} + I_{90^\circ}} \tag{4.9}$$

Abbildung 4.10 zeigt eine solche Meßreihe an der Probe B170 bei Magnetfeldern von $B = -2\mathrm{T}$, $B = 0\mathrm{T}$ und $B = +2\mathrm{T}$ bei einer Probentemperatur von $T = 4.2\mathrm{K}$. Die breitere Linie zeigt für jedes Magnetfeld die Messung mit einer Polfilterstellung von 90°. Aufgrund einer Änderung der Leitungsmechanismen in der Schichtstruktur erhöht sich die Intensität des Elektrolumineszenzlichtes mit ansteigendem Magnetfeld. Warum sich die Intensität bei einem Wechsel der Magnetfeldrichtung nicht symmetrisch verhält, ist allerdings unbekannt. Möglicherweise bewegt sich die Probe leicht im Magnetfeld, was eine bessere oder schlechtere Fokussierung des gesammelten Lichtes zur Folge hat. Da für den hier versuchten Nachweis der Spinpolarisation aber nur das Verhältnis der Intensitäten für zwei unterschiedliche Polarisationsrichtungen relevant ist, wurde diese Frage nicht weiter verfolgt. Um bei einem sichtbaren Effekt in der optischen Polarisation überprüfen zu können, ob er wirklich aus der Injektion eines

spinpolarisierten Stromes in die LED herrührt, wurden für die Probe mit dem selben experimentellen Aufbau PL-Spektren bei gleichen Magnetfeldern aufgenommen. Dazu wurde die Probe im Kryostaten mit linear polarisiertem Licht eines frequenzverdoppelten Nd:YAG-Laser mit eine Wellenlänge von 530nm bei einer Leistung von etwa 10mW angeregt. Die lineare Polarisation des Lasers wurde überprüft, indem mit einem linearen Polarisator ein Intensitäts-Minimum des Laserlichts erzeugt wurde.

Um die Spinpolarisation zu bestimmen, wurden die Maxima des InGaAs-Peaks bei etwa 1.47eV für die beiden Einstellungen des linearen Polarisationsfilters ermittelt und daraus nach Gleichung (4.9) die Polarisation berechnet. Die ermittelten Werte sind in Tabelle 4.2 dargestellt und in Abbildung 4.11 gegen das angelegte Magnetfeld aufgetragen. Bei

Temperatur (K)	Strom I (mA)	Magnetfeld B (T)	Polarisationsgrad P (%)
4.2	5	-2	0.8
4.2	10	-2	13.4
4.2	20	-2	2.2
4.2	20	-5	2.4
4.2	5	0	0.9
4.2	10	0	3.4
4.2	20	0	2.9
4.2	5	2	5.6
4.2	10	2	3.5
4.2	20	2	3.5
4.2	20	5	5.5

Tabelle 4.2: Messungen des opt. Polarisationsgrades P bei Probenströmen von 5mA bis 20mA für verschiedene Magnetfelder.

Messung der Elektrolumineszenz, verursacht durch einen spinpolarisierten Strom, müßte sich bei Wechsel der Magnetfeldrichtung ein Wechsel des Vorzeichens ergeben. Daher wurden die aufgenommenen Werte für die Kurve bei 20mA symmetrisiert, indem die Werte bei positivem und bei negativem Magnetfeld voneinander abgezogen wurden und das Ergebnis halbiert wurde. Mit der Symmetrisierung kann ein eventuell vorhandener Offset in der optischen Polarisation entfernt werden. Für die Probe B170 bei einer Stromstärke von I=20mA ergibt sich damit das im Abbildung 4.12 gezeigte Verhalten. Mit der Methode der Symmetrisierung der Polarisation wurde von der japanischen Gruppe um H. Ohno versucht, Spinpolarisation an einer ähnlichen Schichtstruktur nachzuweisen [30]. Solange das Auftreten eines positiven Offsets im EL-Licht allerdings nicht physikalisch sinnvoll begründet werden kann, halte ich es für verfrüht, die

Messungen zur Spinpolarisation zu veröffentlichen.

Damit kann bei der untersuchten Probe nicht davon ausgegangen werden, daß sich damit spinpolarisierte Ströme in die GaAs-LED erzeugen lassen. Durch die geringe Intensität, vermutlich durch Leckströme bedingt, die Unsicherheit über die Existenz eines Offsets im Elektrolumineszenzlicht und den hohen Untergrund, der im nicht sichtbaren Bereich auch nur schwer verringert werden kann, ist ein eventuell vorhandener Effekt nicht mehr mit Sicherheit zu erkennen.

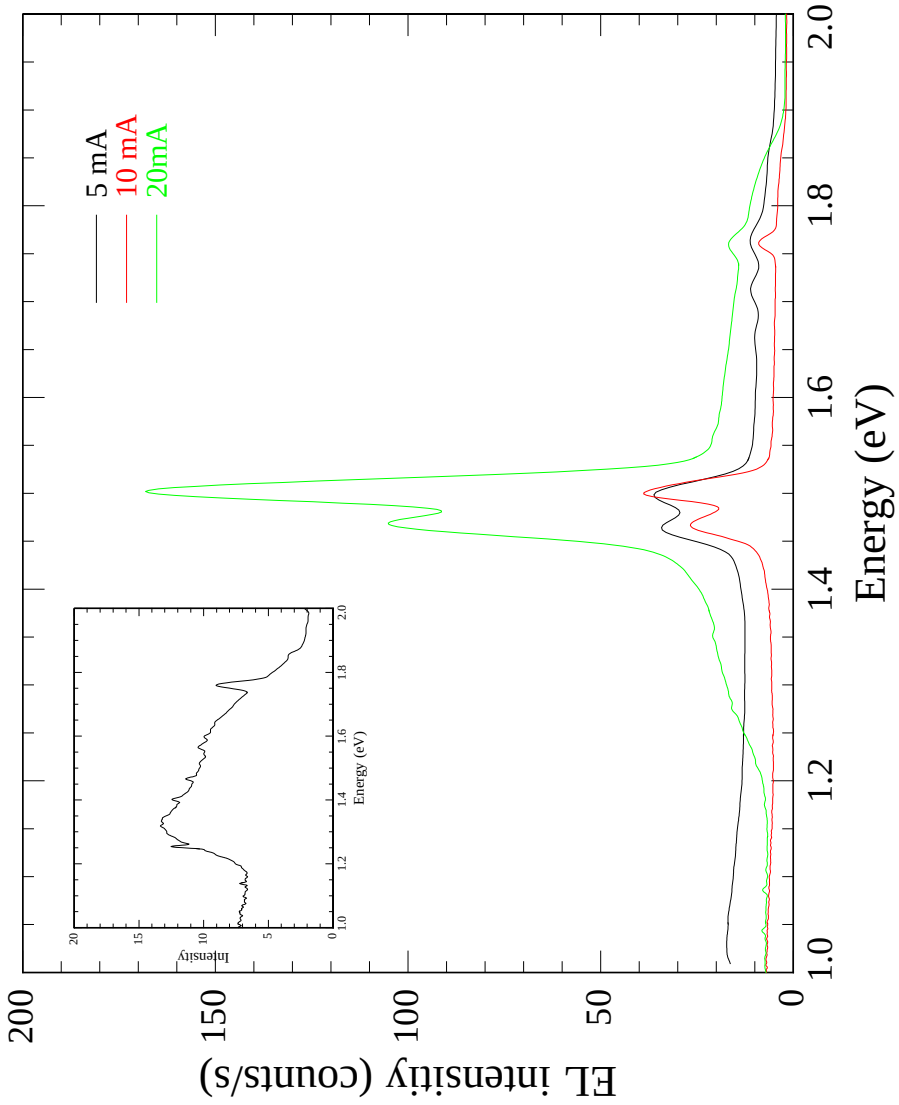


Abbildung 4.9: EL-Spektren der Probe B170 bei verschiedenen Stromstärken. Das innere Bild zeigt eine Leermessung ohne angelegten Strom. Die Temperatur lag bei 4.2K

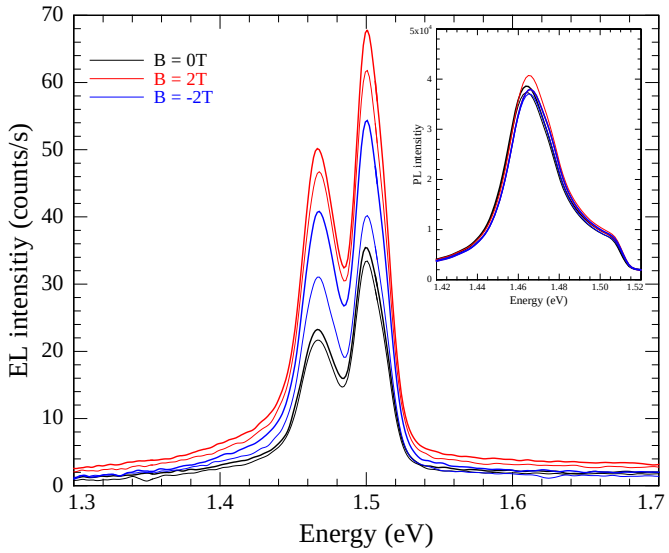


Abbildung 4.10: EL-Spektren der Probe B170 bei 4.2K mit angelegten Magnetfeldern von -2T, 0T und +2T. Das innere Bild zeigt PL-Messungen derselben Probe bei gleichen Feldern.

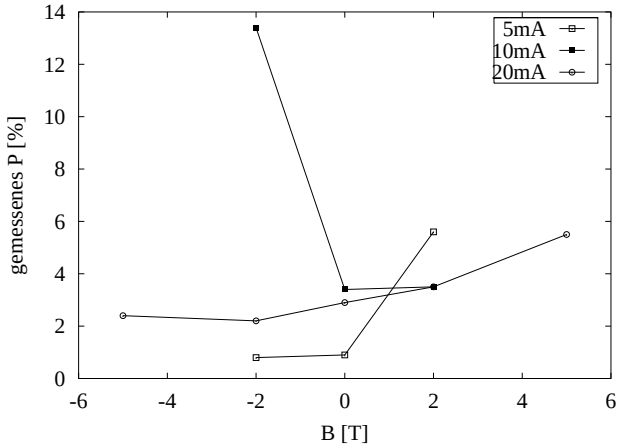


Abbildung 4.11: Zur Spininjektion mit der Probe B170 gemessene Werte des optischen Polarisationsgrades P bei unterschiedlichen Stromstärken.

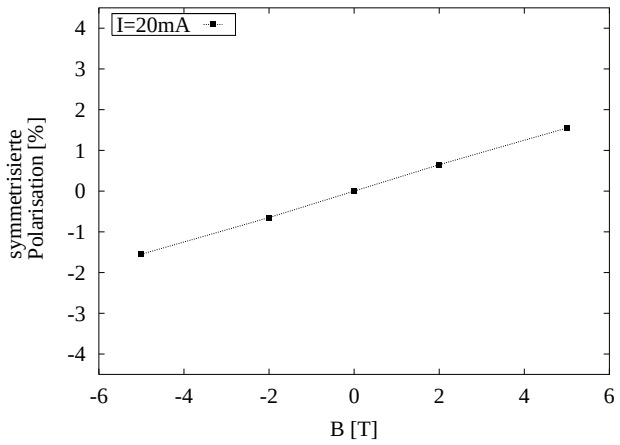


Abbildung 4.12: Symmetrisierte Werte für die optische Polarisation bei 20 mA.

Kapitel 5

Zusammenfassung und Ausblick

In dieser Arbeit wurde das Materialsystem GaMn(N)As durch Magnetotransportmessungen untersucht. Dazu wurden in der Abteilung Halbleiterphysik der Universität Ulm mittels Low Temperature MBE hergestellte Schichten bei Magnetfeldern unterschiedlicher Stärke und bei einer Spanne von Temperaturen vermessen. Motivation der Arbeit war hauptsächlich die Bestimmung von ferromagnetischer Übergangstemperatur und Ladungsträgerdichte über Transportmessungen, aber auch der Versuch, das relativ neue Material zur Injektion spinpolarisierter Ströme in Halbleiter zu nutzen.

Für die Transportuntersuchungen an GaMn(N)As wurden an den zur Verfügung stehenden Schichten mit einem Mangangehalt von 0.94 bis 5.1% Widerstands- und Halleffektmessungen im Temperaturbereich von 4.2 bis ca. 150K und bei magnetischen Feldern von -22T bis 22T durchgeführt. Die Messungen des Schichtwiderstands, der von einem starken negativen Magnetowiderstand überlagert wird, ergaben einen Isolator-Metall-Übergang zwischen 1.3% und 2.2% Mangangehalt. Weiter wurde eine Methode vorgestellt, die Curietemperatur mit akzeptabler Genauigkeit allein aus Magnetotransportmessungen zu bestimmen. Mit dieser Methode wurden die Curietemperaturen der untersuchten Schichten bestimmt und ein Ansteigen mit dem Mangangehalt festgestellt.

Da der Halleffekt im magnetischen Halbleiter GaMnAs im untersuchten Temperatur- und Magnetfeldbereich anomales Verhalten zeigt, gestaltete sich die Bestimmung der Ladungsträgerdichte außerordentlich schwierig. Es wurde versucht, eine Bestimmung bei Raumtemperatur und Magnetfeldern von -0.5T bis 0.5T aus der Messung der Hallkonstanten vorzunehmen, was aber wegen des anomalen Halleffekts nicht gelang. Unter Ausnutzen der Sättigung der Magnetisierung bei tiefer Temperatur und

hohen Magnetfeldern von -22T bis 22T kann die Ladungsträgerdichte aber zumindest abgeschätzt werden, indem der Beitrag des negativen Magnetowiderstandes, der sich hier als störend erweist, aus den Meßdaten entfernt wird. Die so bestimmten Werte wurden anschließend bereits über Raman-Spektroskopie bestimmten Werten gegenübergestellt. Da die Bestimmung über Ramanstreuung aber nur bis zu einer oberen Grenze des Mangangehalts überhaupt Ergebnisse liefert, stellt sie ebenfalls keine gute Alternative zu Magnetotransportmessungen dar. Aufgrund des Fehlens von verläßlichen Vergleichswerten konnte nicht zweifelsfrei geklärt werden, inwieweit die ermittelten Größen der Ladungsträgerdichte im Material entsprechen. Damit ergeben sich auch für die Abschätzung der Beweglichkeit aus den ermittelten Werten der Ladungsträgerdichte bei tiefer Temperatur keine verläßlichen Werte. Um eine funktionierende Methode zur Bestimmung der gesuchten Größen aus Transportmessungen zu entwickeln, wären systematischere Untersuchungen des Verhaltens von Hallspannung und Schichtwiderstand der Proben bei hohen magnetischen Feldern und tiefen Temperaturen notwendig, die hier bisher nicht durchgeführt werden konnten, weil der dazu nötige experimentelle Aufbau nicht verfügbar war. Mit dem Aufbau des neuen Magnetkryostaten, der ebenfalls kurz in dieser Arbeit beschrieben wurde, sollten sie jedoch in Zukunft möglich sein.

Zum versuchten Nachweis der Spinpolarisation mittels einer Esaki-Diode wurde eine mit einer GaMnAs-Schicht überwachsene GaAs-LED im Magnetfeld untersucht. Der Betrag der Spinpolarisation in der Struktur wurde unter vereinfachenden Annahmen abgeschätzt, wobei sich das Fehlen von genauen Werten für die Stärke der Austauschwechselwirkung und die Ladungsträgerdichte im betrachteten Material als problematisch erwies. Je nach ihrer Größe ergeben sich für den zu erwartenden Polarisationsgrad Werte im Bereich von 10% bis hin zu 97%. Bei den Messungen zur Spininjektion mit der Esaki-Diode wurde in Photolumineszenz- und Elektrolumineszenzspektren der Struktur bei tiefer Temperatur und unterschiedlichen Magnetfeldern ein Überwiegen einer zirkularen Polarisationsrichtung gesucht, wie es bei Injektion eines spinpolarisierten Stromes entstehen muß. Der aus den Messungen ermittelte optische Polarisationsgrad ändert sein Vorzeichen aber nicht mit dem Wechsel der Magnetfeldrichtung. Daher kann davon ausgegangen werden, daß der gesuchte Effekt entweder wegen der sehr schwachen Intensität des EL-Lichts vor dem vergleichsweise starken Hintergrund nicht erkennbar ist oder aber von einem starken Offset unbekannter Herkunft überlagert wird. Um die Messungen zur Spinpolarisation zu verbessern, sollte die Intensität des Elektrolumineszenzlichts der Struktur stark erhöht werden. Damit könnte die Möglichkeit ausgeschlossen werden, daß das Signal des zirkular polarisierten EL-Lichts im Untergrund verschwindet. Auch wären genauere Untersuchungen zu einem eventuell vorhandenen Offset in der Polarisation

mit erhöhter Intensität deutlich einfacher und weniger zeitaufwendig durchzuführen.

Abschließend bleibt zu sagen, daß die Entwicklung von Spintronic-Bauelementen auf der Basis magnetischer Halbleiter sich noch in einem sehr frühen Stadium befindet und es in nächster Zeit noch viele interessante Fragen zu klären gibt.

Literaturverzeichnis

[1] A. Arrott. Criterion for ferromagnetism from observations of magnetic isotherms. *Phys. Rev*, 108(6):1394, Dec 1957.

[2] D. D. Awshalom and J. D. Kikkawa. Electron spin and optical coherence in semiconductors. *Physics today*, 33, 1999.

[3] L. Berger. Side-jump mechanism for the hall effect of ferromagnets. *Phys. Rev. B*, 2(11):4559–4566, Dec 1970.

[4] J.S. Blakemore. Semiconducting and other major properties of gallium arsenide. *J. Appl. Phys*, 53(10):R123–R181, 1982.

[5] C. W. Westgate C. L. Chien, editor. *The Hall Effect And Its Applications.* Plenum Press, New York, 1980.

[6] S. Datta and B. Das. Electronic analog of the electro-optic modulator. *Appl. Phys. Lett.*, 56(7):665, 1990.

[7] L. Esaki. New phenomenon in narrow germanium p-n junctions. *Phys. Rev*, 109:603, 1958.

[8] A. Guillermet et al. Cohesive properties and vibrational entropy of 3d transition-metal compounds: MX (NaCl) compounds (X=C, N, O, S), complex carbides, and nitrides. *Phys. Rev. B*, 40(15):10582, Nov 1989.

[9] A. K. Bhattacharjee et al. Model for the Mn acceptor in GaAs. *Solid State Communications*, 113:17–21, 2000.

[10] A. Van Esch et al. Interplay between the magnetic and transport properties in the III-V diluted magnetic semiconductor $Ga_{1-x}Mn_xAs$. *Phys. Rev. B*, 56(20):103–112, Nov 1997.

[11] F. Matsukura et al. Transport properties and origin of ferromagnetism in (Ga, Mn)As. *Phys. Rev. B*, 57:R2037, 1998.

[12] G. Schmidt et al. Electrical spin injection using dilute magnetic semiconductors. *Physica E*, 10:484–488, 2001.

[13] H. Zhu et al. Room temperature spin injection from Fe into GaAs. *Phys. Rev. Lett.*, 87(1):016601, 2001.

[14] J. K. Furdyna et al. Diluted magnetic semiconductors. *J. Appl. Phys.*, 64(4):R29–R64, Aug 1988.

[15] M. E. Flatté et al. Unipolar spin diodes and transistors. *Appl. Phys. Lett.*, 78(9):1273, Feb 2001.

[16] M. Oestreich et al. Spin injection into semiconductors. *Appl. Phys. Lett.*, 74(9):1251, Mar 1999.

[17] R. Fiederling et al. Injection and detection of a spin-polarized current in a light-emitting diode. *Nature*, 402, Dec 1999.

[18] S. Sanvito et al. First-principles study of the origin and nature of ferromagnetism in $Ga_{1-x}Mn_xAs$. *Phys. Rev. B*, 63:165206, Apr 2001.

[19] T. Dietl et al. Free carrier induced ferromagnetism in structures of diluted magnetic semiconductors. *Phys. Rev. B*, 55(6):R5547–R3350, Feb 1997.

[20] T. Dietl et al. Zener model description of ferromagnetism in zinc-blende magnetic semiconductors. *Science*, 287:1019–1022, Feb 2000.

[21] T. Hayashi et al. Hall effect nd magnetic properties of III-V based $Ga_{1-x}Mn_xAs$/AlAs magnetic semiconductor superlattices. *J. Appl. Phys.*, 83(11):6551–6553, Jun 1998.

[22] V. I. Litvinov et al. Ferromagnetism in magnetically doped III-V semiconductors. *Phys. Rev. Lett.*, 86(24):5593–5596, Jun 2001.

[23] W. Limmer et al. Micro raman scattering study of $Ga_{1-x}Mn_xAs$. preprint, Jul 2001.

[24] W. Schairer et al. Strongly quenched deformation potentials of the Mn acceptor in GaAs. *Phys. Rev. B*, 10(4):2501, Sept 1974.

[25] Y. Ohno et al. Electrical spin injection in a ferromagnetic semiconductor heterostructure. *Nature*, 402:790–792, Dec 1999.

[26] Properties of Gallium Arsenide. INSPEC Publication, 1990.

[27] J. D. Kikkawa and D. D. Awshalom. Resonant spin amplification in n-type GaAs. *Phys. Rev. Lett*, 80(19):4313, 1998.

[28] Rainer Kling. Herstellung und Charakterisierung manganhaltiger III-V Halbleiter. Diplomarbeit, Universität Ulm, Nov 2001.

[29] Achim Köder. Magnetische III-V Halbleiter: Epitaxie und Charakterisierung. Diplomarbeit, Universität Ulm, Mar 2001.

[30] M. Kohda. A spin esaki diode. preprint, 2001.

[31] D. C. Look. Molecular beam epitaxial GaAs grown at low temperatures. *Thin Solid Films*, 231:61–73, 1993.

[32] H. Ohno. (Ga, Mn)As: A new diluted magnetic semiconductor based on GaAs. *Appl. Phys. Lett.*, 69(3):363–365, May 1996.

[33] H. Ohno. Making nonmagnetic semiconductors magnetic. *Science*, 281:951–955, Aug 1998.

[34] H. Ohno. Spin dependent tunneling and properties of ferromagnetic (Ga, Mn)As. *J. Appl. Phys.*, 85(8):4277–4282, Apr 1999.

[35] H. Ohno. A ferromagnetic III-V semiconductor: (Ga,Mn)As. *Solid State Communications*, 117:179–186, 2001.

[36] A. Oiwa. Low temperature conduction and giant negative magnetoresistance in III-V-based diluted magnetic semiconductor (Ga, Mn)As/GaAs. *Physica B*, 249(251):775–779, 1998.

[37] G. A. Prinz. Magnetoelectronics. *Science*, 282:1660–1663, Nov 1998.

[38] L. Vegard. *Zeitschrift für Physik*, V(17), 1921.

[39] C. Zener. Interaction between the d shells in transition metals. *Phys. Rev.*, 81(4):440, Feb 1951.

Abbildungsverzeichnis

2.1 Zinkblendegitter 9
2.2 Schematische Bandstruktur von GaMnAs 10
2.3 Energieaufspaltung im Magnetfeld 11
2.4 Magnetisierungsmessungen der Probe B087 12
2.5 Hysteresekurve 12
2.6 Curietemperaturen verschiedener manganhaltiger Halbleiter . 14
2.7 Curietemperaturen verschiedener manganhaltiger Halbleiter . 15

3.1 Isolator-Metall-Isolator Übergang 18
3.2 Temperaturabhängige Widerstandsmessungen 18
3.3 Skew scattering und side jump 20
3.4 Magnetisierung einer GaMnAs-Probe 21
3.5 Hallwiderstand der Probe aus 3.4 21
3.6 Schnitt durch den Oxford-Kryostaten 22
3.7 Prinzip der Halleffekt- und Magnetotransportmessungen . . . 23
3.8 Widerstände für die Probe B125 25
3.9 Widerstände für die Probe B095 26
3.10 Widerstände für die Probe B093 27
3.11 Widerstände für die Probe B100 28
3.12 Widerstände für die Probe B099 29
3.13 Widerstände für die Probe B101 30
3.14 Widerstände für die Probe B090 31
3.15 Widerstände für die Probe B102 32
3.16 Widerstände für die Probe B126 33
3.17 Widerstände für die Probe B087 34
3.18 Widerstände für die Probe B130 35
3.19 Spezifischer Schichtwiderstand für die isolierenden Proben . . 36
3.20 Spezifischer Schichtwiderstand für die metallischen Proben . . 37
3.21 Zur Bestimmung der Curietemperatur über Arrott-Plots . . . 40
3.22 Bestimmung der Curietemperatur mit einem Arrott-Plot . . . 41
3.23 Bestimmung der Curie-Temperatur für B087 42
3.24 Curie-Temperaturen bei unterschiedlichem Mn-Gehalt 44
3.25 Abschätzung der Ladungsträgerdichte 45

3.26 Abschätzung der Ladungsträgerdichte aus korrigierten Daten 46
3.27 Vergleich der Werte bei Raumtemperatur und 4.2K 51
3.28 Prinzip der λ-Stufe 53

4.1 Kennlinien einer Esaki-Diode 56
4.2 Abschätzung der Spinpolarisation 59
4.3 Abschätzung der Spinpolarisation 60
4.4 Abschätzung der Spinpolarisation 60
4.5 Erlaubte Übergänge für Elektronen in GaAs 61
4.6 Aufbau der Probe B170 62
4.7 Kennlinie der Probe B170 bei 4.2K 62
4.8 Optischer Aufbau zu Spinpolarisationsmessungen 63
4.9 EL-Spektren der Probe B170 bei 4.2K 67
4.10 EL-Spektren der Probe B170 im Magnetfeld 68
4.11 Gemessene Werte zur Spinpolarisation 68
4.12 Symmetrisierte Werte zur Spinpolarisation 69

Tabellenverzeichnis

3.1 Daten der untersuchten Proben 43
3.2 Abschätzung der Ladungsträgerdichte bei hohem Magnetfeld 47
3.3 Abschätzung der Ladungsträgerdichte aus Hallmessungen bei Raumtemperatur 48
3.4 Abschätzung der Beweglichkeit aus dem Schichtwiderstand. . 49
3.5 Abschätzung der Ladungsträgerdichte bei Raumtemperatur aus Raman- und Hallmessungen 50

4.1 Austauschwechselwirkung und Fermi-Energien 58
4.2 Messungen zur Spinpolarisation 65

Danksagung

Zum Schluß dieser Arbeit möchte ich mich noch bei allen bedanken, die mir auf unterschiedlichste Weise bei der Anfertigung geholfen haben. Im Einzelnen möchte ich mich bedanken bei

Prof. Dr. Andreas Waag für die Stellung eines interessanten Themas und die sehr gute Betreuung,

Prof. Dr. Rolf Sauer, an dessen Lehrstuhl diese Arbeit angefertigt wurde,

Prof. Dr. Hartmut Jex für die Übernahme des Zweitgutachtens,

Dem Technikerteam der Abteilung Halbleiterphysik, Nicole Rothenhöfer und Kurt Schwarz für die Prozessierung der untersuchten Proben und die Hilfe bei der Lösung auftretender Probleme,

Dem GaMn(N)As-Team, speziell Dr. W. Schoch, der stets bereit war, bei der Anfertigung der Messungen zu helfen, und Sybille Frank, die mir besonders bei theoretischen Fragen hilfreich zur Seite stand,

Dr. Duncan Maude (CNRS Grenoble), der uns bei den Hochfeldmessungen betreut hat,

Allen, die beim Korrekturlesen der Arbeit behilflich waren,

und schließlich meinen Eltern Ursula und Karl Oettinger und besonders meiner Frau Christina, die mir gemeinsam das Studium ermöglicht und mich bei Problemen nach Kräften unterstützt haben.

Erklärung

Ich versichere hiermit, daß ich die vorliegende Arbeit selbst verfaßt und keine anderen Hilfsmittel als die Angegebenen verwendet habe.

Ulm, 11. August 2007.

(Marcus Oettinger)