

**Einfluss von Quantenkorrekturen
auf den elektrischen Transport in mittels
gepulster Laserablation hergestellter
BaPbO₃-BaBiO₃-Dünnschichtsystemen**

Dissertation

zur Erlangung des akademischen Grades

Dr. rer. nat.

eingereicht an der
Mathematisch-Naturwissenschaftlich-Technischen Fakultät
der Universität Augsburg

von

Robert Bartel

Augsburg, April 2022



Erstgutachter: Priv.-Doz. Dr. German Hammerl
Zweitgutachter: Apl. Prof. Dr. Helmut Karl

Tag der mündlichen Prüfung: 08.07.2022

Inhaltsverzeichnis

1	Motivation	1
2	Das Materialsystem BaPbO₃-BaBiO₃	3
2.1	Perowskite	3
2.2	Substratmaterialien	5
2.3	Filmmaterialien BaBiO ₃ und BaPbO ₃	7
3	Dünnschichtsynthese	19
3.1	Epitaxie und Wachstumsmodi	20
3.2	Gepulste Laserablation	23
4	Strukturelle Charakterisierung	33
4.1	Charakterisierungsmethoden	33
4.2	Ergebnisse der Charakterisierung	46
4.3	Zusammenfassung und Interpretation	65
5	Elektronische Transporteigenschaften	69
5.1	Messung des elektrischen Transports	69
5.2	Klassische elektrische Leitfähigkeit	75
5.3	Quanteninterferenzen	82
5.4	Elektron-Elektron-Wechselwirkung	103
5.5	Supraleitende Fluktuationen	106
6	Experimentelle Untersuchungen	113
6.1	BaPbO ₃ -Monolagen	114
6.2	BaPbO ₃ -BaBiO ₃ -Bilagen	155
7	Zusammenfassung und Ausblick	175
A	Anhang	181
	Liste der Symbole und Akronyme	215
	Literatur	219
	Danksagung	245

1 Motivation

Funktionale Oxide erwecken aufgrund ihrer vielfältigen physikalischen Eigenschaften sowie ihrer breit gefächerten Anwendungsmöglichkeiten seit Jahrzehnten großes wissenschaftliches Interesse [1]. In Form von epitaktischen Heterostrukturen lassen sich die intrinsischen Eigenschaften wie beispielsweise Piezo-, Pyro- und Ferroelektrizität kombinieren. Darüber hinaus können in Multilagen gezielt Ladungs- und Spin- sowie dimensionale und orbitale Freiheitsgrade gekoppelt werden, um emergente physikalische Eigenschaften zu generieren [2]. Insbesondere können sich an Grenzflächen durch Effekte wie Symmetriebrechung, Ladungstransfer und mechanische Verspannung emergente elektronische Phasen ausbilden, die sich auf einer Nanometerskala genau kontrollieren lassen [2–5]. Ein prominentes Beispiel stellt das zweidimensionale Elektronengas an der Grenzfläche der beiden Band-Isolatoren LaAlO_3 und SrTiO_3 dar, welches bei tiefen Temperaturen in eine supraleitende Phase übergeht [6, 7].

In dieser Arbeit befaße ich mich eingehend mit dem BaBiO_3 - BaPbO_3 -Materialsystem, das als erstentdeckter oxidischer Hochtemperatursupraleiter zählt [8]: Während die Einzelkomponenten BaBiO_3 und BaPbO_3 halbleitendes [9] bzw. metallisches [10, 11] Verhalten aufweisen, kann eine supraleitende Phase in der homogenen Dotierung $\text{BaPb}_{1-x}\text{Bi}_x\text{O}_3$ auftreten. Da beide Ausgangsmaterialien perowskitverwandte Kristallstrukturen aufweisen, lassen sich daraus epitaktische Multilagen wachsen. So wurde in Bilagen aus BaBiO_3 und BaPbO_3 eine verspannungsinduzierte, zweidimensionale supraleitende Phase an deren gemeinsamen Grenzfläche nachgewiesen [12, D1]. Doch auch das Material BaPbO_3 an sich ist aufgrund vorhergesagter topologischer Eigenschaften von wissenschaftlichem Interesse [13]. Zudem gilt BaPbO_3 angesichts seiner starken Spin-Bahn-Kopplung und hohen Ladungsträgerdichte als vielversprechender Kandidat zum Nachweis eines symplektischen Metall-Isolator-Übergangs [D2]. Im Rahmen dieser Arbeit untersuche ich die elektronischen Transporteigenschaften von BaPbO_3 -Dünnschichtproben sowie BaPbO_3 - BaBiO_3 -Bilagen. Dabei wird sich bei temperaturabhängigen sowie magnetfeldabhängigen Analysen des elektrischen Transports ein augenscheinlich widersprüchliches Verhalten zeigen, welches sich durch ein Zusammenspiel unterschiedlicher Quanteneffekte auflösen lässt.

Die Arbeit ist dabei folgendermaßen gegliedert: Zunächst werde ich in Kapitel 2 das Materialsystem BaBiO_3 - BaPbO_3 vorstellen, ehe ich in Kapitel 3 die gepulste Laserabla-

tion beschreibe, mittels der ich meine Filme und Heterostrukturen synthetisiert habe. Anschließend gehe ich auf die verwendeten Strukturanalyseverfahren ein und stelle die damit gewonnenen Ergebnisse in Kapitel 4 vor. In Kapitel 5 gebe ich einen Überblick über die Theorien zum elektrischen Transport: Neben der klassischen Transporttheorie gehe ich detailliert auf Quanteninterferenzeffekte ein, die den elektrischen Transport bei tiefen Temperaturen dominieren und stelle dazu Konzepte wie die schwache Lokalisierung und Antilokalisierung vor. Diese Effekte der Quanteninterferenz in Verbindung mit Elektron-Elektron-Wechselwirkung sind dann in Kapitel 6 zur Beschreibung meiner Messergebnisse essentiell. Hier werde ich zunächst das Zusammenspiel von Elektron-Elektron-Wechselwirkung und Quanteninterferenzen anhand von BaPbO_3 -Monolagen herausarbeiten, ehe ich die Messergebnisse an BaPbO_3 - BaBiO_3 -Bilagen vorstelle, die aufgrund ihrer supraleitenden Phase eine Erweiterung der Beschreibung des elektrischen Transports bei tiefen Temperaturen notwendig machen. Abschließen möchte ich mit einer kurzen Zusammenfassung und einem Ausblick in Kapitel 7.

Ergebnisse dieser Arbeit sind teilweise in den Publikationen [A1, A2] veröffentlicht. Außerdem entstanden im Rahmen dieser Doktorarbeit die Masterarbeiten [M1–M3], die maßgeblich von mir betreut wurden. Quellenangaben, die am Ende eines Abschnittes stehen, beziehen sich auf den gesamten Abschnitt, solche, die in einer neuen Zeile am Ende eines (Unter-)Kapitels stehen, beziehen sich auf das gesamte (Unter-)Kapitel.

2 Das Materialsystem

BaPbO₃-BaBiO₃

In dieser Arbeit werden die Materialien BaBiO₃ und BaPbO₃ untersucht. Während BaBiO₃ halbleitendes [9] und BaPbO₃ metallisches [10, 11] Verhalten aufweisen, kann in der homogenen Dotierung BaPb_{1-x}Bi_xO₃ ein supraleitender Phasenübergang mit einer maximalen kritischen Temperatur von etwa 13 K beobachtet werden [14–16]. Heutzutage sind die im elektronendotierten Zustand theoretisch vorhergesagten topologischen Eigenschaften von BaBiO₃ [13, 17] als auch BaPbO₃ [13] sowie die starke Spin-Bahn-Kopplung von wissenschaftlichem Interesse. In den folgenden Abschnitten möchte ich zunächst auf die strukturellen Eigenschaften von BaBiO₃ und BaPbO₃ eingehen und die verwendeten Substratmaterialien vorstellen. Dabei spielt die Perowskitstruktur eine maßgebliche Rolle.

2.1 Perowskite

Perowskite sind aufgrund ihrer Vielfalt an physikalischen Eigenschaften von großem Interesse [18]. Oxidische Perowskite besitzen allgemein die stöchiometrische Zusammensetzung ABO₃, wobei A und B für unterschiedliche (Metall-)Kationen stehen. Deren Oxidationszahlen müssen in Summe +6 ergeben, wobei die Aufteilung komplex sein kann [18]. Die ideale Perowskitstruktur besitzt die Raumgruppe Pm $\bar{3}$ m [19]. Die Struktur der Einheitszelle ist in Abbildung 2.1 a) dargestellt: Das A-Ion befindet sich mittig in der kubischen raumzentrierten Einheitszelle und ist zwölfmal von O²⁻-Ionen umgeben, die B-Ionen auf den Ecken jeweils sechsfach [22, 23]. Anders beschreiben lässt sich diese Struktur, indem man die oktaedrisch koordinierten Sauerstoffionen, die die B-Ionen umgeben, als ein Übergitter auffasst, in dessen Zentren sich jeweils ein A-Ion befindet (s. Abb. 2.1 b)).

Eines der in dieser Arbeit verwendeten Substratmaterialien, SrTiO₃, ist ein Beispiel für einen idealen Perowskit [18, 19]. Die meisten perowskitartigen Materialien, unter anderem auch die BaBiO₃-BaPbO₃-Materialklasse, weichen jedoch von dieser idealen kubischen Kristallstruktur ab. Man unterscheidet dabei im Wesentlichen drei Ursachen, die eine ideale Perowskitstruktur der Materialien verhindert [18]: Abweichungen von

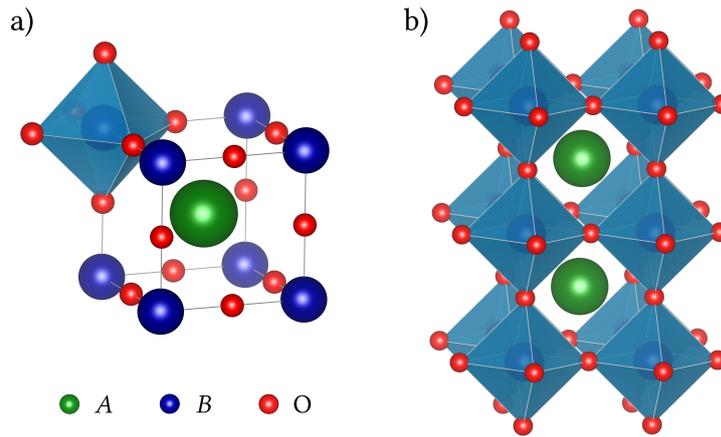


Abbildung 2.1: Darstellung der idealen kubischen Perowskit-Kristallstruktur (Raumgruppe $Pm\bar{3}m$). a) Die kubische Einheitszelle mit der stöchiometrischen Zusammensetzung ABO_3 enthält das A-Ion in der Mitte, die B-Ionen jeweils auf den Ecken und mittig auf jeder Kante je ein Sauerstoffion. Die A-Seite ist zwölfmal und die B-Seite wie angedeutet oktaedrisch von sechs Sauerstoffionen umgeben. b) Darstellung der Kristallstruktur als Übergitter aus BO_6 -Oktaedern, in dessen Zentren jeweils ein A-Ion sitzt. Gezeichnet mit VESTA [20], Daten aus [21].

der idealen Komposition, Verzerrungen aufgrund des Jahn-Teller-Effekts [24, 25] sowie ein Verhältnis der Radien der beteiligten Ionen, die nicht mit einem kubischen System vereinbar sind. Letztgenannter Effekt ist für die hier untersuchten Filmmaterialien relevant und soll daher kurz genauer erläutert werden.

Die kubische Gitterkonstante a des idealen Perowskites kann einerseits über die Flächendiagonale d_F der AO-Ebenen, andererseits über die Kantenlänge der BO_2 -Ebenen in Abhängigkeit der jeweiligen Ionen-Radien r_i berechnet werden:

$$a_{AO} = \frac{d_F}{\sqrt{2}} = \sqrt{2}(r_A + r_O), \quad (2.1a)$$

$$a_{BO_2} = 2(r_B + r_O). \quad (2.1b)$$

Im verzerrten Perowskitstrukturen unterscheiden sich die beiden Gitterparameter a_{AO} und a_{BO_2} . Das Verhältnis dieser Gitterkonstanten beschreibt der Goldschmidt-Toleranzfaktor [26]

$$t_G = \frac{a_{AO}}{a_{BO_2}} = \frac{r_A + r_O}{\sqrt{2}(r_B + r_O)}. \quad (2.2)$$

Definitionsgemäß resultiert für einen idealen Perowskit ein Toleranzfaktor von $t_G = 1$. Deutliche Abweichungen von diesem Wert reduzieren die Symmetrie im Kristall. Falls $t_G > 1$ oder $t_G < 0,8$, kristallisiert das System bevorzugt in Kalkspat-, Korund- oder verwandten Strukturen [26]. Im dazwischenliegenden Bereich verzerrt sich das Gitter zunächst rhomboedrisch ($R\bar{3}c$ für $0,96 < t_G < 1$) und anschließend orthorhombisch

(Pnma für $0,8 < t_G < 0,96$) [27]. Der Grund hierfür sind Verkippungen und Verdrehungen der Sauerstoffoktaeder aufgrund von A -Ionen, die zu klein sind, um den Raum zwischen den BO_6 -Oktaedern optimal auszufüllen [23, 28]. Der B -O- B -Bindungswinkel weicht dadurch von 180° ab. Eine vollständige Beschreibung der Koordinationssymmetrie gelingt somit nur in einer Einheitszelle, die weitere Struktureinheiten des Kristalls beinhaltet, wodurch sich die Einheitszelle vergrößert. Sollen die Gitterkonstanten unterschiedlicher perowskitartiger Materialien miteinander verglichen werden, ist die Angabe der absoluten Größe der ABO_3 -Einheiten von Vorteil. Diese wird in Form der pseudokubischen Gitterkonstante a_{pc} angegeben. Ausgehend von den Gitterkonstanten a , b und c einer rhomboedrischen Struktur berechnet sich diese zu [29]

$$a_{pc} = \left(\frac{abc}{4} \right)^{1/3}. \quad (2.3)$$

In vielen leicht verzerrten Kristallsystemen ist dies eine gute Näherung [30].

Im Folgenden soll nun auf die Besonderheiten der physikalischen Eigenschaften sowie der Kristallstruktur der verwendeten Film- und Substratmaterialien eingegangen werden.

2.2 Substratmaterialien

Für den epitaktischen Wachstumsprozess dünner Filme eines Materials ist die Wahl eines dazu kompatiblen Substrats wesentlich. Wie in späteren Kapiteln noch genauer ausgeführt wird, ist dabei sowohl die chemische als auch strukturelle Zusammensetzung relevant [31]. Neben Strontiumtitanat ($SrTiO_3$), einem in der funktionalen Oxidforschung häufig verwendeten Substratmaterial, auf dem bereits viele Dünnsfilmproben des $BaBiO_3$ - $BaPbO_3$ -Materialsystems untersucht wurden [12, D1, A3], wird im Rahmen dieser Arbeit zusätzlich noch als Substratmaterial Magnesiumoxid (MgO) verwendet, um den Einfluss unterschiedlicher Gitterparameter der Substratmaterialien auf den elektrischen Transport zu untersuchen.

$SrTiO_3$

Strontiumtitanat ist eine der am häufigsten in der Elektronik verwendete Keramik [32]. Anfänglich war $SrTiO_3$ aufgrund seiner ungewöhnlich hohen Dielektrizität bekannt, weshalb das Material als Isolatormaterial in der Feldeffekt-Untersuchung interessant ist. Außerdem weist $SrTiO_3$ eine hohe dielektrische Suszeptibilität auf und soll eine quanten-paraelektrischen Phase [32] aufweisen. Heutzutage fungiert es häufig aufgrund seiner inerten TiO_2 -Oberfläche, welche sich durch Ätzen mit gepufferter

Flusssäure und anschließendem Ausheizen unter Sauerstoffatmosphäre erzeugen lässt [33, 34], als Standard-Substrat beim Wachstum von epitaktischen Dünnschichten mit Perowskit-Struktur [34, 35].

Das Material kristallisiert bei Raumtemperatur mit $t_G = 1,0$ in der idealen Perowskit-Struktur [18, 19, 36], die Gitterkonstante beträgt dabei $a = 3,905 \text{ \AA}$ [29, 37]. Bei etwa 110 K verkippen die Sauerstoffoktaeder, wodurch ein kubisch-zu-tetragonaler Phasenübergang stattfindet [19, 38–40]. Ein weiterer Phasenübergang hin zum orthorhombischen Kristallsystem bei etwa 65 K wird diskutiert [40–42]. Des Weiteren ist $SrTiO_3$ ein Bandisolator mit einer indirekten Bandlücke von etwa 3,2 eV [43–45].

Durch Dotierung des Systems können eine Vielzahl neuer physikalischer Eigenschaften induziert werden [46–50]. Den wohl größten Einfluss haben Sauerstofffehlstellen [32] in reduziertem $SrTiO_3$ [51]. Strukturelle Verzerrungen beeinflussen dabei das Leitungsband signifikant [32]: Dieses wird flach, wodurch die Zustandsdichte (*Density of States*, DOS) sowie die effektive Masse sehr groß werden. Im Zusammenspiel mit der dielektrischen Konstante bei tiefen Temperaturen [52] führt dies nicht nur zu einer Abschirmung der Coulomb-Wechselwirkungen, sondern auch zu einem theoretisch erwarteten und später experimentell nachgewiesenen supraleitenden Zustand unterhalb einer Sprungtemperatur von $T_c < 300 \text{ mK}$ [32, 53, 54].

MgO

Magnesiumoxid ist eine der häufigsten Komponenten im unteren Erdmantel und wurde bereits intensiv sowohl experimentell als auch theoretisch untersucht [55]. Im Gegensatz zu allen anderen in dieser Arbeit verwendeten Materialien kristallisiert es nicht in der Perowskit-, sondern in der ionischen NaCl-Struktur (*Rocksalt*), wodurch Magnesium und Sauerstoff gegenseitig oktaedrisch koordiniert sind [56, 57]. Die Raumgruppe lautet in diesem Fall $Fm3m$ [58], die kubische Gitterkonstante beträgt bei Raumtemperatur $a = 4,203 \text{ \AA}$ [58, 59]. Die Phase ist gegenüber Änderungen der Temperatur bis zu 1000 K und Drücken bis zu einigen Megabar stabil [55]. Lediglich bei noch höheren Drücken wird ein Übergang zur CsCl-Struktur erwartet [55].

Mit einer Bandlücke von 7,77 eV ist MgO bei Raumtemperatur isolierend [60, 61]. Es weist wie $SrTiO_3$ eine hohe dielektrische Konstante auf [61]. Die stabilste Oberfläche ist die unpolare (001)-Ebene [56]. Diese lässt sich durch einfaches Spalten (*Cleavage*) nahezu defektfrei herstellen [56, 62]. Die an der Kristalloberfläche fünffach koordinierten Ionen können sich aufgrund ihrer Anordnung nur sehr geringfügig auslenken, ehe benachbarte Bindungen verspannt werden [56]. Als Resultat ist eine Aufrauung der Oberfläche unterbunden. Die Oberflächenrauigkeit beträgt typischerweise lediglich wenige Prozent der Gitterkonstante [56]. Diese kann durch Ausheizen bei

Temperaturen über 700 °C unter Sauerstoffatmosphäre weiter verbessert werden [63]. Hierdurch können beispielsweise Mg(OH)₂- und MgCO₃-Anlagerungen, die sich unter atmosphärischen Bedingungen bilden können, entfernt werden, wodurch chemisch reine und inerte MgO-Oberflächen zurückbleiben [56, 63]. Somit ist MgO ein ideales Substrat für oxidische Dünnschichten [62], auch wenn MgO-Substrate mitunter komplexe Domänenstrukturen aufweisen können [64].

2.3 Filmmaterialien BaBiO₃ und BaPbO₃

Im Folgenden sollen die in dieser Arbeit verwendeten Filmmaterialien des BaBiO₃-BaPbO₃-Materialsystems einzeln vorgestellt werden. Zunächst wird dabei auf die physikalischen Eigenschaften eingegangen, ehe das Kapitel mit einer Übersicht zu den Dotierungsexperimenten und der aktuellen Forschung an BaPbO₃-BaBiO₃-Dünnschichtenproben schließt.

2.3.1 BaBiO₃

Erstmals wurde BaBiO₃ im Jahr 1963 erfolgreich synthetisiert [65]. Über die genaue Struktur und die damit verbundene Oxidationsstufe von Bismut wurde wissenschaftlich zunächst viel diskutiert [66]. Hochauflösende Untersuchungen mit Neutronenstrahlung zeigen, dass BaBiO₃ bei Raumtemperatur in der monoklinen Perowskitstruktur mit der Raumgruppe I2/m kristallisiert [67]. Die Gitterkonstanten betragen dabei $a = 6,181 \text{ \AA}$, $b = 6,136 \text{ \AA}$ und $c = 8,670 \text{ \AA}$ bei einem Winkel von $\beta = 90,17^\circ$ [67]. Die Abweichung zur orthorhombischen Struktur ($\beta = 90^\circ$) ist sehr gering, weswegen näherungsweise von einer pseudokubischen Einheitszelle nach Gleichung 2.3 mit $a_{pc} = 4,35 \text{ \AA}$ ausgegangen werden kann. Der Goldschmidt'sche Toleranzfaktor beträgt in diesem Fall $t_G = 0,927$ [68].

Beim Auswerten der Oxidationsstufe einer BaBiO₃-Einheit ist aufgrund der vorliegenden Valenzen Ba²⁺ und O²⁻ mit einer Valenz Bi⁴⁺ zu rechnen. Mit der Elektronenkonfiguration [Xe]4f¹⁴ 5d¹⁰ 6s² 6p³ des reinen Bismuts sollte das Leitungsband unter Annahme der vermuteten Oxidationsstufe mit 6s¹ halb gefüllt sein und das System damit eigentlich metallisches Verhalten aufweisen. Dies wird experimentell jedoch nicht bestätigt: BaBiO₃ ist halbleitend mit einer Energielücke von etwa 0,2 eV [14, 69]. Erklären lässt sich diese Diskrepanz mit den präferierten Oxidationsstufen Bi³⁺ und Bi⁵⁺. Die Bindungen in BaBiO₃ sind kovalenter Natur. Im Gegensatz zu ionischen Verbindungen haben die Oxidationsstufen in diesem Fall keinen direkten Einfluss auf die Ladung der Kationen, sondern äußern sich in unterschiedlichen Bindungslängen zu den jeweiligen Anionen [66]. Aus Untersuchungen hochauflösender Neutronen-

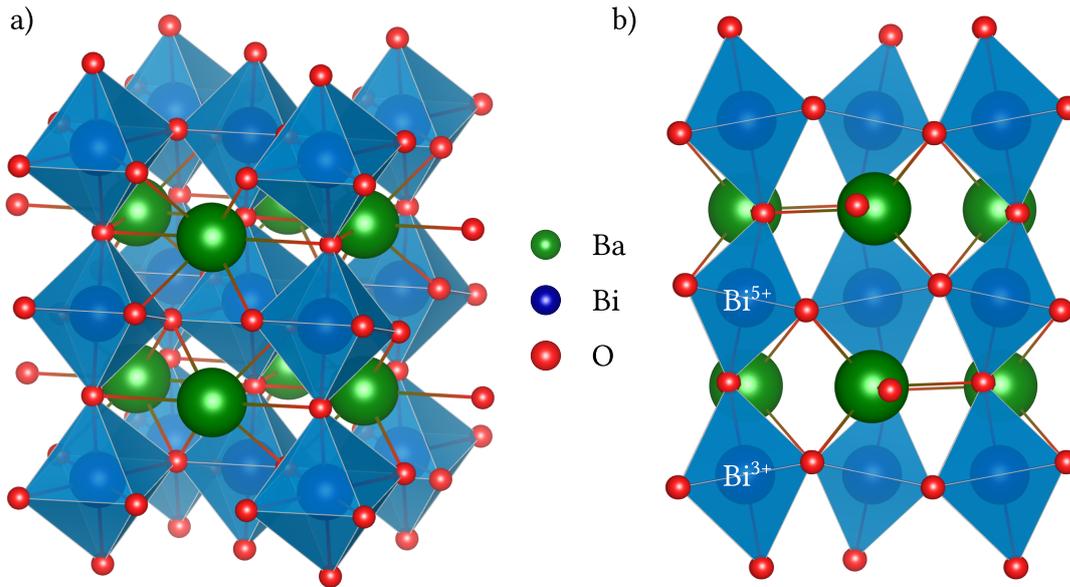


Abbildung 2.2: Darstellung einer möglichen Breathing-Mode der $BaBiO_3$ -Kristallstruktur in **a)** seitlicher und **b)** frontaler Ansicht. Aufgrund des zu großen Bismutionenradius ($t_G < 1$) und den bevorzugten Oxidationsstufen Bi^{3+} und Bi^{5+} ändern sich die Bindungslängen zu den jeweiligen Sauerstoffionen, wodurch die in blau eingezeichneten Sauerstoffoktaeder geordnet verkippen. Dies führt zum Ausbilden einer Ladungsdichtewelle (*Charge Density Wave*, CDW) und damit zu halbleitendem Verhalten. Die Raumgruppe der Kristallstruktur lautet $I2/m$. Gezeichnet mit VESTA [20], Daten aus [72].

streuung [67, 69–72] resultieren bei Raumtemperatur zwei Bi-O-Bindungslängen: Die kürzere mit einem Durchschnittswert von $2,12 \text{ \AA}$ kann der Valenz Bi^{5+} zugeordnet werden, die längere mit $2,29 \text{ \AA}$ der Valenz Bi^{3+} [66]: Die ausführliche Strukturformel lautet somit $Ba_2Bi^{3+}Bi^{5+}O_6$ [67].

Neben den unterschiedlichen Bi-O-Bindungslängen führt $t_G < 1$ in diesem System zu einem geordneten Verkippen der BiO_6 -Oktaeder, wie in Abbildung 2.2 dargestellt. Dies wird *Breathing-Mode* genannt und führt zur Ausbildung einer Ladungsdichtewelle (*Charge Density Wave*, CDW). Dadurch öffnet sich eine Energielücke an der Fermikante, woraus ein volles unteres und ein leeres oberes Band resultieren [73, 74]. Damit lässt sich das beobachtete halbleitende Verhalten erklären [73–75]. Aktuelle theoretische Berechnungen mittels topologischer Wellenfunktionen und modernen Polarisierungstheorien ergeben ebenfalls das Vorliegen dieser beiden Oxidationsstufen [76]. Das System ist das erste Beispiel für einen geordneten Perowskit, in welchem die geordneten Kationen aus dem gleichen Element bestehen [67], und das bisher einzig bekannte Material, bei dem Bi^{3+} nahezu perfekt oktaedrisch von Sauerstoff koordiniert wird [66].

Die CDW – und somit auch das halbleitende Verhalten – ist gegenüber Temperaturänderungen äußerst robust und konnte bis zu einer Temperatur von 1025 K nachgewiesen werden [77]. Damit bleibt diese selbst während des Durchlaufens mehrerer Phasenübergänge erhalten: Im Temperaturbereich von 4,2 K bis 140 K ist das System monoklin ($P2_1/n$), bis 430 K weiterhin monoklin ($I2/m$), bis 820 K rhomboedrisch ($R\bar{3}$) und bei noch höheren Temperaturen kubisch ($Fm\bar{3}m$) [66, 69–72]. Die Phasenübergänge sind in Abbildung 2.4 unter anderem für reines BaBiO_3 ($x = 1$) dargestellt. Durch den Einbau genügend vieler Sauerstofffehlstellen kann die CDW gestört werden, woraus metallisches Verhalten resultieren kann [75].

Eine weitere Möglichkeit, die ausgebildete CDW zu stören, ist die Dotierung des Systems. Durch teilweise Substitution von Barium oder Bismut können neue physikalische Eigenschaften generiert werden. Bekannte Beispiele sind die beiden Materialsysteme $\text{BaPb}_{1-x}\text{Bi}_x\text{O}_3$ und $\text{Ba}_{1-y}\text{K}_y\text{BiO}_3$ [78], welche bei passender Wahl der jeweiligen Dotierungen x und y zur Ausbildung supraleitender Phasen führen können. Diese Loch-Dotierungen sind in der Vergangenheit ausgiebig untersucht worden [14–16, 71, 78–82]. Auf die Bleisubstitution wird im weiteren Verlauf genauer eingegangen.

Wenig ist über eine Elektronen-Dotierung des Systems bekannt. In den letzten Jahren erweckte diese Aufmerksamkeit, nachdem anhand von DFT-Rechnungen (*Density-Functional Theory*) ein topologischer Zustand mit einer großen topologischen Energielücke von 0,7 eV prognostiziert wurde [17]. Mit dem Ausblick, Grenzflächen zwischen topologischen Oberflächenzuständen und Supraleitern zu kreieren, gilt BaBiO_3 damit als vielversprechender Kandidat zur Ausbildung von Majorana-Fermionen [17]. Die dem Material zugesprochenen topologischen Eigenschaften werden durch weitere theoretische Berechnungen der elektronischen Struktur bestätigt und neben der Elektron-Dotierung auf Loch-Dotierungen ausgeweitet [13]. Das System gilt als erstes Beispiel eines oxidischen topologischen Isolators [17, 66].

2.3.2 BaPbO_3

Bariumbleiat ist aufgrund der prognostizierten topologischen Eigenschaften unter Elektronen-Dotierung [13], sowie einer starken Spin-Bahn-Kopplung ein interessantes Materialsystem. Darüber hinaus kann das Material als Beschichtung die ferroelektrischen, Ermüdungs- sowie Leckstromeigenschaften von piezokeramischen Filmen verbessern [83, 84] und findet als Bestandteil in keramischen Elektroden, Leitungspasten und weiteren Gebieten Anwendung [85].

Das System kristallisiert ebenfalls aufgrund verkippter PbO_6 -Oktaeder in einer verzerrten Perowskitstruktur [86]. Erste experimentelle Strukturanalysen an BaPbO_3 -Kristallen deuten sowohl auf eine monokline als auch auf eine orthorhombische

Kristallsymmetrie hin, wobei sich beide Kristallsysteme durch leichte Unterschiede im Neigungswinkel der Oktaeder¹ ergeben [16, 74, 85–90]. Begründet wird diese Beobachtung heute durch Verzwilligungen in der $BaPbO_3$ -Struktur [86, 91], denn hochauflösende Untersuchungen ergeben, dass $BaPbO_3$ ohne Verzwilligung in der orthorhombischen Struktur mit der Raumgruppe $Ibmm$ kristallisiert² [66, 85, 86, 91]. Bei Raumtemperatur betragen die Gitterkonstanten $a = 6,065 \text{ \AA}$, $b = 6,025 \text{ \AA}$ und $c = 8,506 \text{ \AA}$. Daraus ergibt sich eine pseudokubische Gitterkonstante (Gl. 2.3) von $a_{pc} = 4,267 \text{ \AA}$ bei einem Toleranzfaktor von $t_G = 0,985$ [92–94]. Der Neigungswinkel der PbO_6 -Oktaeder beträgt $8,66^\circ$ bei Raumtemperatur und steigt bei Temperaturerniedrigung bis zu einem Wert von $9,87^\circ$ bei $4,2 \text{ K}$ kontinuierlich an [86]. Aktuelle Untersuchungen [91] weisen darauf hin, dass in diesem Temperaturbereich entgegen [90] kein weiterer Phasenübergang auftritt. Ausgehend von Raumtemperatur geht das System bei steigenden Temperaturen ab 573 K zunächst in eine tetragonale $I4/mcm$ - und zuletzt bei 673 K in eine kubische $Pm\bar{3}m$ -Symmetrie über [91]. Die Phasenübergänge sind in Abbildung 2.4 für reines $BaPbO_3$ ($x = 0$) dargestellt.

Mit der Elektronenkonfiguration der Blei-Atome von $[Xe]4f^{14} 5d^{10} 6s^2 6p^2$ können diese in $BaPbO_3$ ihre präferierte Valenz Pb^{4+} annehmen. Daraus resultiert ein volles 5d- sowie ein leeres 6s- und 6p-Band, weswegen halbleitendes Verhalten zu erwarten ist. Experimentell zeigt $BaPbO_3$ dagegen metallisches Verhalten [11]. Diese Diskrepanz wurde zunächst durch sauerstoffdefizitäres Wachstum [10] oder Überlappen des Leitungsbands mit dem gefüllten 5d-Band des Pb erklärt [87]. Heutzutage wird angenommen, dass sowohl Blei als auch Sauerstoff durch ein Überlappen der 5d- und 2p-Orbitale des entsprechenden Elements [66] zur Zustandsdichte an der Fermikante beitragen [85]. Aufgrund der daraus folgenden geringen Zustandsdichte an der Fermikante ist $BaPbO_3$ ein Halbmetall. Es wird vermutet, dass die Pb-O-Pb-Bindungswinkel und -längen ausschlaggebend für die elektronische Struktur der Verbindung sind [85]. Nachdem PbO_2 metallisches Verhalten aufzeigt, ist es naheliegend, dass die aus PbO_2 gebildeten Ebenen in $BaPbO_3$ für den elektrischen Stromtransport innerhalb des Kristalls verantwortlich sind [85].

Elektrische Transportuntersuchungen an $BaPbO_3$ -Einkristallen ergeben eine über die Temperatur näherungsweise konstante elektronische Ladungsträgerdichte von etwa $n_{3D} = 2 \cdot 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ sowie ein gyromagnetisches Verhältnis von $g = 2,057 \pm 0,005$ [10]. Es werden Fermigeschwindigkeiten im Bereich von $v_F = 1,6 \cdot 10^5 \text{ m s}^{-1}$ bis $3,8 \cdot 10^5 \text{ m s}^{-1}$ ermittelt [95, 96]. Hieraus folgt beispielsweise eine mittlere freie Weglänge (*Mean*

¹ Im orthorhombischen Fall sind die Neigungswinkel der Oktaeder entlang der primitiven Achsen identisch, wohingegen diese in monoklinen Systemen unterschiedliche Werte annehmen können. Ist die Differenz zwischen den Neigungswinkeln gering, so sind die Strukturen schwer voneinander zu unterscheiden [86].

² Es finden sich auch andere Bezeichnungen für die Raumgruppe, wie beispielsweise $Imma$ [66].

Free Path) von $l_{\text{mfp}} = 1,1$ nm bei Raumtemperatur [96]. Ein möglicher supraleitender Zustand unterhalb von $T_c < 0,5$ K wird anhand von widersprüchlichen experimentellen Untersuchungen in der Literatur kontrovers diskutiert [97, 98], gleichzeitig werden für das System supraleitende Sprungtemperaturen von bis zu $T_c = 7$ K prognostiziert [96]. Als mögliche Ursache für die Diskrepanz zwischen theoretischer Vorhersage und experimenteller Beobachtungen wird die Abhängigkeit des elektrischen Widerstands von der Probenqualität diskutiert [96].

2.3.3 $BaPb_{1-x}Bi_xO_3$

Nachdem $BaBiO_3$ und $BaPbO_3$ als diamagnetischer Halbleiter bzw. Halbmetall identifiziert waren, wurde auf der Suche nach einem Metall-Isolator-Übergang die gegenseitige Dotierung untersucht [66]. In Abhängigkeit der Bismut-Dotierung x der Komposition $BaPb_{1-x}Bi_xO_3$ wurden unterschiedliche elektronische Transporteigenschaften nachgewiesen [14]: für $x < 0,05$ zeigt das System halbmetallisches, bei $x > 0,35$ halbleitendes und im dazwischenliegenden Bereich supraleitendes Verhalten (s. Abb. 2.3). Die maximale Sprungtemperatur wird in der Literatur im Bereich von $T_{c,\text{max}} \approx 11,7$ K bis $T_{c,\text{max}} \approx 13$ K bei einem Dotierungsgrad des Materials von $x \approx 0,25$ angegeben [14, 99–101]. Damit ist dieses System das erste oxidische supraleitende Material ohne Übergangsmetall mit nachgewiesenen Sprungtemperaturen über 10 K. Diese hohe kritische Temperatur ist insofern bemerkenswert, da gleichzeitig die Zustandsdichte an der Fermikante vergleichsweise niedrig ist [102].

Die Kristallsymmetrie nimmt erheblich Einfluss auf die elektronischen Transporteigenschaften. Aufgrund des im Vergleich zu Blei größeren Bismutionenradius nimmt der durchschnittliche Toleranzfaktor t_G des Systems mit zunehmendem Bismut-Dotierungsgrad x ab (von $t_{G,BaPbO_3} = 0,985$ zu $t_{G,BaBiO_3} = 0,927$). Die damit einhergehenden stärkeren Verzerrungen der Perowskit-Struktur lassen eine Erhöhung der Phasenübergangstemperaturen zur tetragonalen bzw. kubischen Kristallsymmetrie erwarten. Experimentell zeigt sich im vereinfachten Phasendiagramm ein Minimum bei $x \approx 0,2$ (s. Abb. 2.4). Hochauflösende Synchrotron-Studien deuten im supraleitenden Zustand auf ein gleichzeitiges Vorliegen einer orthorhombischen und einer tetragonalen Phase hin [103]. Letztgenannte wurde bereits früh in Zusammenhang mit dem supraleitenden Zustand gebracht [16, 66], was durch weitere experimentelle Untersuchungen bestätigt wird: Die prozentualen Anteile der tetragonalen sowie der supraleitenden Phase konnten durch ein schlagartiges Abkühlen der Probe während der Kristallzucht erhöht werden [74]. Für die Komposition $BaPb_{0,8}Bi_{0,2}O_3$ beginnt die Phasenumwandlung aus der tetragonalen in die orthorhombische Struktur bei etwa 450 K, wobei

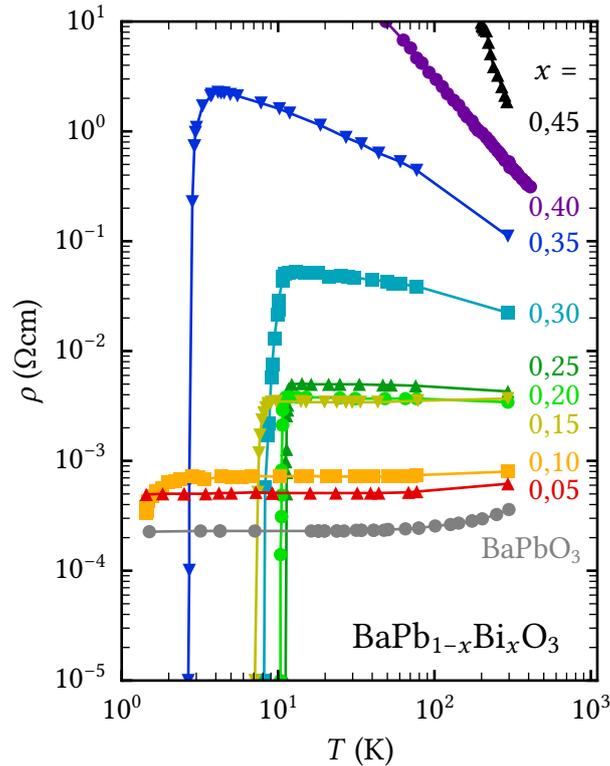


Abbildung 2.3: Gemessene Temperaturabhängigkeit des spezifischen Widerstands des Materialsystems $BaPb_{1-x}Bi_xO_3$ als Funktion der Bismut-Dotierung x , nach Referenz [99]. Im gezeigten Temperaturbereich ist ein halbmetallisches Verhalten bei $x \leq 0,1$ und ein halbleitendes Verhalten bei $x > 0,35$ zu sehen. Im dazwischenliegenden Dotierungsbereich sind ansatzweise supraleitende Übergänge erkennbar. Die maximale supraleitende Sprungtemperatur von $T_{c,max} \approx 11,7$ K (*Onset*-Temperatur) zeigt sich bei $x = 0,25$.

der Volumenanteil der orthorhombischen Phase ab etwa 250 K mit 60 % konstant bleibt [74]. [66]

Diese stabile Koexistenz zweier Phasen über einen so großen Temperaturbereich ist ungewöhnlich und motiviert zu einer genaueren Betrachtung [66]: Ein diskontinuierlicher Phasenübergang erster Ordnung erscheint aufgrund der Stabilität im genannten Temperaturfenster als Ursache unwahrscheinlich. Ausgedehnte Bereiche unterschiedlicher Blei- oder Bismut-Konzentrationen sind als Ursache ebenfalls auszuschließen, da mit zunehmendem Dotierungsgrad x der Komposition sowohl die Gitterkonstante der tetragonalen als auch die der orthorhombischen Phase zuzunehmen. Mögliche Erklärungen sind kurzreichweitige Blei- bzw. Bismut-Ordnungen, regellose Verzerrungen der Sauerstoffoktaeder im relevanten Dotierungsbereich oder eine unterschiedliche Sauerstoffkonzentration in beiden Phasen. Letztgenannter Aspekt erscheint aufgrund der hohen Sauerstoffmobilität innerhalb von Bismutoxiden als wahrscheinlich und stützt sich auf den beobachteten Zusammenhang zwischen der Existenz der supraleiten-

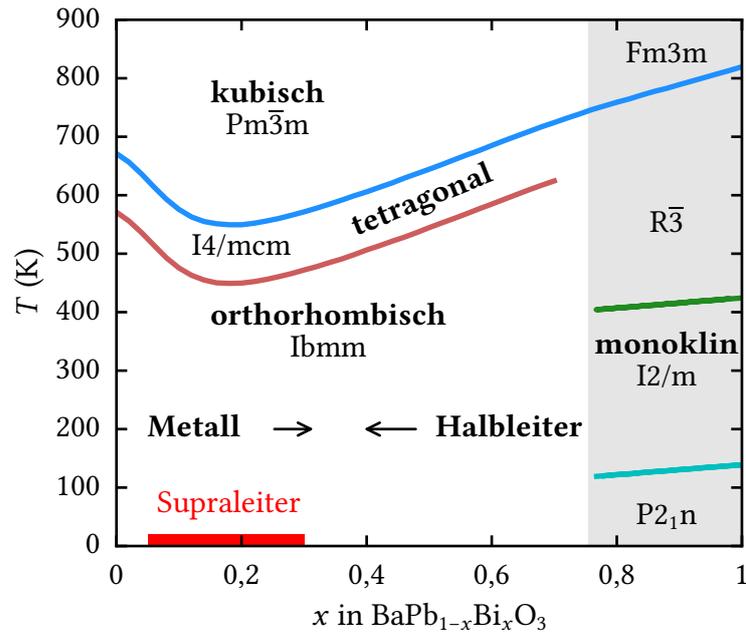


Abbildung 2.4: Vereinfachtes Phasendiagramm von $BaPb_{1-x}Bi_xO_3$, nach [66]. Die Übergangstemperaturen wurden für die Dotierungen $x = 0$, $x = 0,2$ und $x = 1$ genau untersucht [66, 72, 74, 86] und in den übrigen Bereichen abgeschätzt. Aufgrund des mit ansteigender Dotierung x abnehmenden Goldschmidt'sche Toleranzfaktor t_G ist ein Anstieg der Phasenübergangstemperaturen in die tetragonale bzw. kubische Phase zu erwarten. Im supraleitenden Dotierungsbereich ist ein, vermutlich durch Entropie getriebenes, ausgeprägtes Minimum zu beobachten. Bei Raumtemperatur ist keine tetragonale Phase eingezeichnet, da diese als metastabil angenommen wird.

den Phase, der festgestellten Oxidationsstufen von Blei und Bismut sowie vorhandener Sauerstofffehlstellen [104], ist aber weiterhin Gegenstand aktueller Forschung. [66]

Ein umfangreiches Phasendiagramm innerhalb der supraleitenden Komposition ist in [101] zu finden: Zentral ist hier der dotierungsabhängige, prozentuale Anteil der tetragonalen Phase sowie deren supraleitende Sprungtemperatur (s. Abb. 2.5). Durch den größeren Bismutionenradius entstehen strukturelle Verspannungen, welche im Dotierungsbereich $0 < x \lesssim 0,25$ teilweise durch eine Rotation der Oktaeder um 90° zur Bildung des relaxierten tetragonalen Systems führen. Weitere Substitutionen von Blei durch Bismut führen wiederum zu Verspannungen innerhalb der tetragonalen Phase, wodurch die Rotation rückgängig gemacht wird. [101]

In denjenigen Dotierbereichen, in welchen das Material halbleitendes bzw. supraleitendes Verhalten zeigt, ergeben sich unterschiedliche Werte für die Bi-O-Bindungslängen [105, 106]. Dies spricht für ein Vorliegen der beiden Oxidationsstufen Bi^{3+} und Bi^{5+} , wodurch selbst in der supraleitenden Phase eine (lokale) CDW vorzufinden ist [105]. Gleichzeitig nimmt die relative Häufigkeit der Oxidationsstufe Bi^{5+} mit abnehmendem Dotierungsgrad x zu [106]. Dies lässt sich unter anderem auch damit

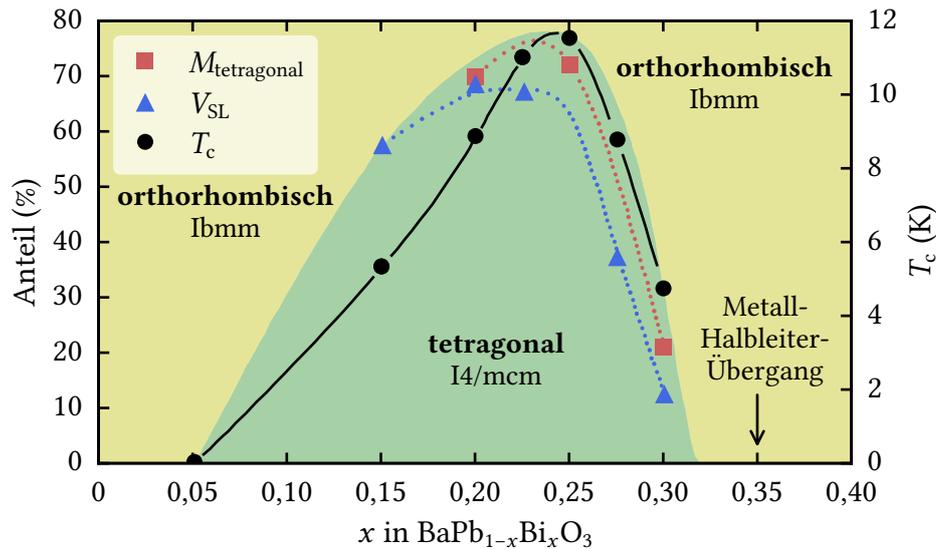


Abbildung 2.5: Raumtemperatur-Phasendiagramm und supraleitende Sprungtemperaturen von $\text{BaPb}_{1-x}\text{Bi}_x\text{O}_3$, nach [101]. In grün ist der domförmig verlaufende prozentuale Anteil der metastabilen tetragonalen Phase $M_{\text{tetragonal}}$ mit einem Maximum bei etwa $x \approx 0,25$ zu sehen. Die Höhe der supraleitenden Sprungtemperaturen T_c sowie der supraleitende Volumenanteil V_{SL} scheinen mit diesem Verlauf zu korrelieren.

erklären, dass die Pb-O-Bindungslänge bei Raumtemperatur mit $2,15 \text{ \AA}$ viel näher an der $\text{Bi}^{5+}\text{-O}$ -Distanz ($2,12 \text{ \AA}$) als an der $\text{Bi}^{3+}\text{-O}$ -Distanz ($2,29 \text{ \AA}$) liegt. Im Bereich geringer Dotierungen x ist somit überwiegend Bi^{5+} vorzufinden, wodurch pro Einheitszelle in etwa x delokalisierte Elektronen in das Leitungsband gelangen. Zunächst kann somit die Ladungsträgerdichte mit steigendem Dotierungsgrad zunehmen. Damit einhergehend wird die Struktur instabiler, wodurch zunehmend die halbleitende $\text{BaPb}_{1-x}\text{Bi}_{x/2}^{3+}\text{Bi}_{x/2}^{5+}\text{O}_3$ -Komposition begünstigt wird [66].

Elektronenmikroskopische Untersuchungen des Bimorphs zeigen ein streifenartiges Vorliegen der tetragonalen Phase in Form von Domänen. Bei einer aus Sicht der Supraleitung optimalen Dotierung entspricht die Ginzburg-Landau-Kohärenzlänge ξ_{GL} nahezu perfekt der Breite w der tetragonalen Phase (s. Abb. 2.6). [107]

Die Komposition gilt als Typ-II-s-p-Supraleiter [108, 109] mit der laut [109, 110] ungewöhnlich starken Elektron-Phonon-Wechselwirkung. Es ist anzunehmen, dass das System ein Bulk- und schwach gekoppelter BCS-artiger-Supraleiter ist und bei geringer Dotierung Einbandverhalten aufzeigt [109–111]. Mit steigender Dotierung steigt auch der Bi^{3+} -Anteil, wodurch bei $x \geq 0,2$ im Bandmodell zwei lokale Maxima entstehen, in deren Mitte das chemische Potential liegt. Die Maxima überlappen anfänglich. Oberhalb $x > 0,35$ entsteht eine Energielücke, die ursächlich das halbleitende Verhalten induziert [109]. Laut [112] wird das System auch als konventioneller Supraleiter betrachtet.

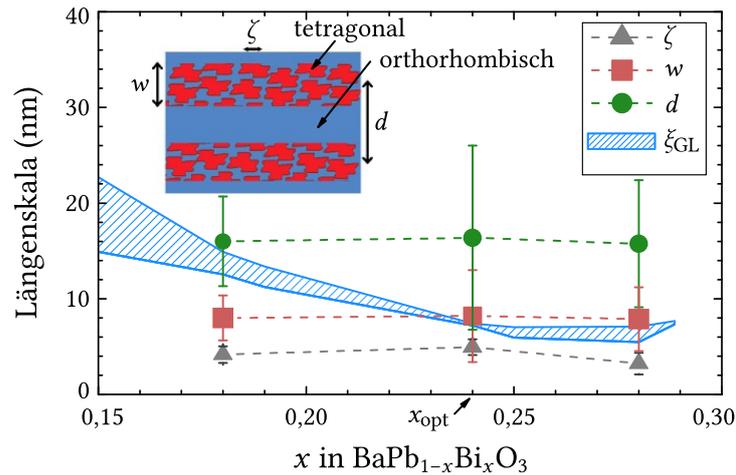


Abbildung 2.6: Vergleich verschiedener relevanter Längen im Bimorph, nach [107]. Die innenliegende Zeichnung veranschaulicht das streifenartige Vorliegen der tetragonalen Phase (rot) in Form von Domänen innerhalb der orthorhombischen Phase (blau). Die Streifenlänge ζ , Domänenbreite w und Domänenabstand d sind in der Zeichnung gekennzeichnet. Bei der aus Sicht der Supraleitung optimalen Dotierung x_{opt} entspricht die Ginzburg-Landau-Kohärenzlänge ξ_{GL} in etwa der mittleren Domänenbreite w der tetragonalen Phase.

2.3.4 Dünnsfilme aus BaBiO₃ und BaPbO₃

Im Allgemeinen unterscheiden sich Dünnsfilme grundsätzlich in zwei wesentlichen Aspekten von deren Bulk-Materialien: Zum einen wird eine Dimension eingeschränkt, was mit einem Symmetriebruch einhergeht, und zum anderen wachsen die (epitaktischen, kristallinen) Filme auf Substraten auf, was beispielsweise aufgrund von Verspannungseffekten oder Hybridisierungen an der Grenzfläche zu emergenten physikalischen Eigenschaften führen kann [113]. Dies zeigt das eingangs erwähnte LaAlO₃/SrTiO₃-System [6, 7] eindrucksvoll.

In den vorangegangenen Kapiteln wurde der Einfluss der Symmetrie auf die physikalischen Eigenschaften eines Kristalls vorgestellt. Unter diesem Gesichtspunkt scheinen mechanische Verspannungseffekte, die durch das Substrat induziert werden können, interessant. Es stellt sich beispielsweise die Frage, ob durch Aufzwingen einer höheren Symmetrie die CDW unterbunden werden kann, wodurch die DOS an der Fermikante beeinflusst werden sollte. Für $x = 1$ (reines BaBiO₃) wurden hierzu bereits Versuche durchgeführt [114]: Durch Wachstum von BaBiO₃ auf dem kubischen Kristallsystem MgO wurde dessen Symmetrie vorgegeben. Das Verkippen der BiO₆-Oktaeder konnte damit unterbunden werden, die *Breathing-Mode* und damit verbunden das halbleitende Verhalten allerdings nicht [114].

Seit dem Wachstum erster polykristalliner [115–117] bzw. einkristalliner [118, 119] supraleitender Dünnsfilme der homogenen Dotierung ($0 < x < 1$) finden bis heute Untersuchungen zu Verspannungen hieran statt. Motiviert werden diese sowohl durch

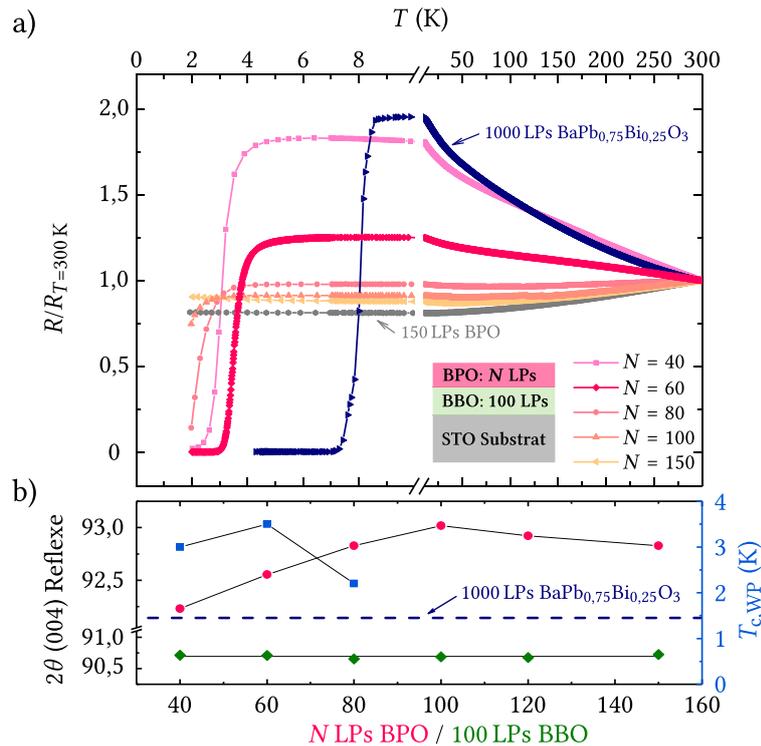


Abbildung 2.7: Elektrische Transportmessungen und röntgendiffraktometrische Untersuchung zur verspannungsinduzierten Supraleitung in Bilagen aus $BaBiO_3$ (BBO) und $BaPbO_3$ (BPO), aus [12, D1]. **a)** Mittels gepulster Laserablation hergestellte Bilagen auf $SrTiO_3$ -Substraten zeigen in Abhängigkeit der $BaPbO_3$ -Schichtdicke, hier ausgedrückt über die Anzahl N der bei der Ablation verwendeten Laserpulse (LP), Metall-Supraleiter-Übergänge mit einer maximalen kritischen Temperatur von etwa 4 K im Vergleich zu einer homogen dotierten Schicht mit einer kritischen Sprungtemperatur von etwa 8 K. **b)** Verschiebung der Peakpositionen der mittels Röntgendiffraktometrie untersuchten (004)-Reflexe für $BaBiO_3$ und $BaPbO_3$ in Abhängigkeit der $BaPbO_3$ -Schichtdicke, wiederum angegeben über die Anzahl N der Laserpulse (LP) in Korrelation zur beobachteten supraleitenden Sprungtemperatur. Mit Einsetzen der mechanischen Verspannung der $BaPbO_3$ -Schicht (Verschiebung des (004)-Reflexes) tritt Supraleitung auf.

das Ziel, die kritische Sprungtemperatur zu erhöhen [120], als auch durch kohärente Verspannungen topologische Eigenschaften zu induzieren [121].

Am Lehrstuhl für Experimentalphysik VI der Universität Augsburg wurden im Vorfeld dieser Arbeit Bilagen aus $BaBiO_3$ und $BaPbO_3$ untersucht, wobei eine zweidimensionale supraleitende Phase an deren gemeinsamer Grenzfläche entdeckt wurde [12, D1], die bereits zu theoretischen Betrachtungen motiviert hat [122]. Dabei kann in Abhängigkeit der $BaPbO_3$ -Schichtdicke auf einer $BaBiO_3$ -Schicht mit fester Schichtdicke im elektrischen Transport teilweise ein supraleitender Übergang mit einer maximale kritischen Temperatur im Wendepunkt (WP) von $T_{c,WP} \approx 4,0$ K beobachtet werden. Das Auftreten der supraleitenden Phase korreliert dabei mit mechanischen Verspannungen im $BaPbO_3$ -Kristall (vgl. Abb. 2.7).

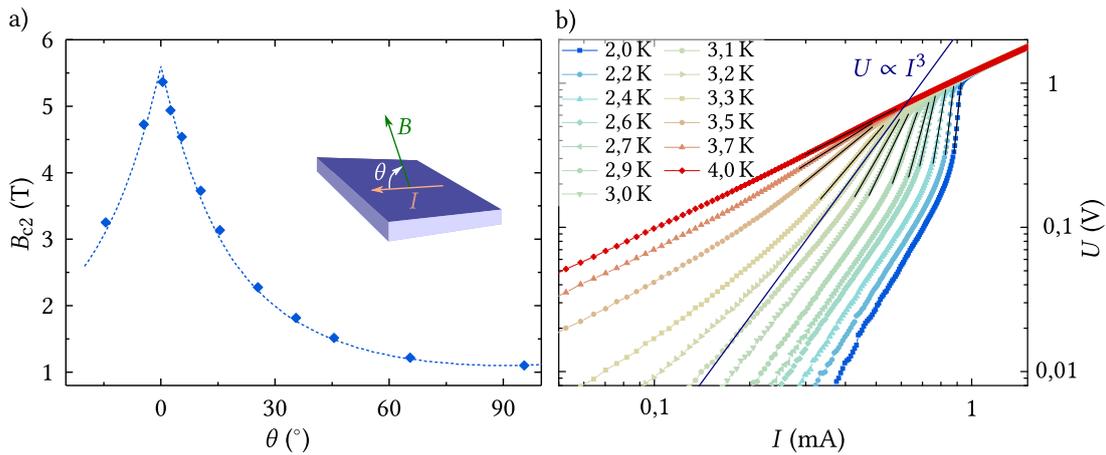


Abbildung 2.8: Messergebnisse zum Nachweis der zweidimensionalen Supraleitung in einer schichtdickenoptimierten BaPbO₃-BaBiO₃-Bilage, aus [12, D1]. a) Die Anisotropie des oberen kritischen Magnetfelds B_{c2} deutet auf den zweidimensionalen Charakter der supraleitenden Phase hin. Die Daten lassen sich mit Theorien nach Tinkham (s. Kap. 5.5) anpassen und ergeben in diesem Fall eine supraleitende Schichtdicke von $t_{SL} = 11,8$ nm, womit diese kleiner als die BaPbO₃-Schichtdicke (~ 18 nm) ist. b) Strom-Spannungs-Messkurven (I - V) einer optimierten BaPbO₃-BaBiO₃-Bilage bei verschiedenen Temperaturen. Das Verhalten $U \propto I^3$ bei $T_{BKT} = 3,2$ K deutet auf einen Berezinskii-Kosterlitz-Thouless-Übergang (BKT) hin und bestätigt damit den zweidimensionalen Charakter der Supraleitung.

Der zweidimensionale Charakter der Supraleitung zeigt sich anhand eines anisotropen oberen kritischen Magnetfelds B_{c2} bei Rotation eines extern angelegten Magnetfelds (vgl. Abb. 2.8 a)), woraus eine supraleitende Schichtdicke abgeschätzt werden kann, die kleiner als die BaPbO₃-Schichtdicke ist. Dies lässt vermuten, dass sich die supraleitende Phase direkt an der Grenzfläche zum BaBiO₃ ausbildet. Des Weiteren zeigen Strom-Spannungs-Messkurven, die bei unterschiedlichen Temperaturen aufgenommen wurden, den Zusammenhang $U \propto I^\alpha$ mit $\alpha = 3$ bei $T_{BKT} = 3,2$ K, was auf einen Berezinskii-Kosterlitz-Thouless-Übergang [123–126] schließen lässt (vgl. Abb. 2.8 b)): Aufgrund der mangelnden Abschirmung eines Magnetfelds bilden sich an zweidimensionalen supraleitenden Systemen thermisch induzierte Vortex-Antivortex-Paare. Im Grundzustand bilden diese ein starres Gitter aus, welches oberhalb der Temperatur T_{BKT} aufgebrochen wird. Dadurch können sich die Vortex-Antivortex-Paare frei bewegen und es kommt zur Dissipation mit einem einhergehenden messbaren Spannungsabfall.

Während sich die Arbeiten [12, D1] überwiegend mit den supraleitenden Eigenschaften befassen, bleiben Fragen zum elektrischen Transport in der BaPbO₃-Schicht oberhalb der Sprungtemperatur weitgehend ungeklärt und werden nur qualitativ behandelt. Ziel dieser Arbeit ist es, zu einem fundamentalen Verständnis des elektrischen Transportverhaltens von BaPbO₃-Dünnschichten und BaPbO₃-BaBiO₃-Bilagen

beizutragen. Hierfür sollen zunächst Monolagen von BaPbO₃ auf unterschiedlichen Substraten untersucht werden. Dabei führt das Zusammenspiel aus Elektron-Elektron-Wechselwirkung sowie starker Spin-Bahn-Kopplung zu augenscheinlich widersprüchlichen Messergebnissen. Im weiteren Verlauf dieser Arbeit soll weiter die Supraleitung in BaPbO₃-BaBiO₃-Bilagen betrachtet werden, um so die elektronischen Transporteigenschaften nahe der supraleitenden Phase möglichst konsistent zu beschreiben. Bevor ich aber die elektronischen Transporteigenschaften im BaPbO₃-BaBiO₃-System genauer vorstelle, möchte ich in den folgenden beiden Kapiteln zuerst auf die Synthese und Charakterisierung der hierfür erforderlichen Dünnschichtproben eingehen.

3 Dünnfilmsynthese

„*The Interface is the Device*“, so lautet ein Zitat von Kroemer aus seinem Nobelpreisvortrag aus dem Jahr 2000 [127]. Damit zollt dieser den großen Erfolg von Bauelementen für photonische und elektronische Geräte Tribut, die auf halbleitenden Dünnfilmen basieren [128]. Zur Synthese eignen sich je nach Wahl der Materialien und Anforderungen verschiedene Depositions-Techniken. Diese werden ganz allgemein in chemische sowie physikalische Gasphasenabscheidungen unterteilt.

Bei der chemischen Gasphasenabscheidung (*Chemical Vapor Deposition, CVD*) befindet sich in der Depositions-Kammer ein meist homogen verteiltes Gas, welches das Element oder ein Edukt des zu wachsenden Filmmaterials enthält. An der üblicherweise beheizten Oberfläche des Substrats findet eine chemische Reaktion statt, die zur Kristallisation des Films führt. Mit diesem Verfahren können große Flächen und komplexe Strukturen schnell, homogen und mit atomarer oder nanometergenauen Präzision beschichtet werden. Diesen Vorteilen stehen die Nachteile meist toxischer, ätzender oder leicht entflammbarer Trägerstoffe sowie die Schwierigkeiten beim stöchiometrischem Wachstum von Materialien, die aus mehreren Komponenten bestehen, (*Boundary-Layer-Problem*) gegenüber. [129]

Die in dieser Arbeit verwendete gepulste Laserablation (*Pulsed Laser Deposition, PLD*) und das Kathodenzerstäuben (Sputtern) gehören zu den physikalischen Gasphasenabscheide-Verfahren (*Physical Vapor Deposition, PVD*). Hierbei wird meist innerhalb einer Vakuumkammer durch eine physikalische Einwirkung auf das Ausgangsmaterial dieses schlagartig in die Gasphase bzw. in ein Plasma überführt. Anschließend breitet sich das Material im Allgemeinen gerichtet unter stark reduziertem Hintergrunddruck aus und erreicht letztlich die Substratoberfläche, an der es kondensiert. Unter idealen Bedingungen wird das Material kristallin als Dünnfilm aufwachsen, wobei sich die Kristallstruktur des Films an die Kristallstruktur des Substrats anpassen kann. Dieses sogenannte epitaktische Wachstum soll Gegenstand des folgenden Kapitels sein, bevor ich im Speziellen das PLD-Verfahren genauer vorstelle.

3.1 Epitaxie und Wachstumsmodi

Epitaktisches Wachstum

In der Halbleiter- und Dünnsilmtechnologie ist epitaktisches Wachstum von essenzieller Bedeutung. Der Begriff setzt sich aus den altgriechischen Wörtern „*epi*“, was so viel wie „über“ oder „auf“ bedeutet, und „*taxis*“, was wiederum mit „Ordnung“ oder „Richtung“ übersetzt werden kann, zusammen. Dementsprechend liegt bei zwei aufeinander wachsenden Kristallsystemen epitaktisches Wachstum immer dann vor, wenn diese Kristallsysteme eine feste Beziehung zueinander einhalten. Es wird zwischen zwei unterschiedlichen Typen – der Homoepitaxie und der Heteroepitaxie – unterschieden. Bei der Homoepitaxie bestehen der aufzuwachsende Film sowie das Substrat aus dem gleichen Material, wodurch sich das Kristallsystem des Films natürlich ideal zu dem des Substrats orientieren kann. Homoepitaxie wird häufig genutzt, um nahezu defektfreie [130] oder dotierte [131] Oberflächen zu realisieren. Bei der Heteroepitaxie bestehen der Film und das Substrat aus unterschiedlichen Materialien mit üblicherweise voneinander abweichenden Gitterkonstanten. Stehen die Kristallachsen des einen Systems weitgehend parallel zu denen des anderen Systems, so kann als Kenngröße für die Passgenauigkeit der gewählten Materialien die sogenannte Gitterfehlpassung f (*Misfit Parameter*) dienen. Dieser wird in der Literatur unterschiedlich definiert. Die Differenz der Gitterkonstanten (bei gegebener Temperatur) von Substrat $a_0(S)$ sowie Film $a_0(F)$ in lateraler Ebene (*In-Plane*) wird dabei stets zu einer dieser Größen, oder dessen Mittelwert, in Relation gesetzt. In dieser Arbeit wird folgende Definition verwendet:

$$f = \frac{ma_0(S) - na_0(F)}{na_0(F)} = \frac{m}{n} \frac{a_0(S)}{a_0(F)} - 1. \quad (3.1)$$

Die Koeffizienten m und n sind dabei natürliche Zahlen und nehmen normalerweise einen Wert von eins an, wenn sich die Gitterkonstanten der beiden Kristallsysteme wenig voneinander unterscheiden. Allerdings gibt es, wie ich noch zeigen werde, auch Sonderformen des epitaktischen Wachstums, bei denen m und n Werte im einstelligen bis niedrigen zweistelligen Bereich einnehmen können. Dies tritt insbesondere dann auf, wenn sich die Gitterkonstanten der Kristallsysteme signifikant voneinander unterscheiden.

Üblicherweise gilt für epitaktisches Wachstum als Kriterium $f \approx 0$, also eine weitgehende Übereinstimmung der Gitterkonstanten der beteiligten Materialien. Dünnsfilme können dann nahezu unverspannt auf dem Substrat aufwachsen. Man bezeichnet dies als angepasste Epitaxie (*Matched Epitaxy*, s. Abb. 3.1 a)). Definitionsgemäß erfüllt die Homoepitaxie dieses Kriterium. Mit zunehmend unterschiedlichen Gitterkonstanten

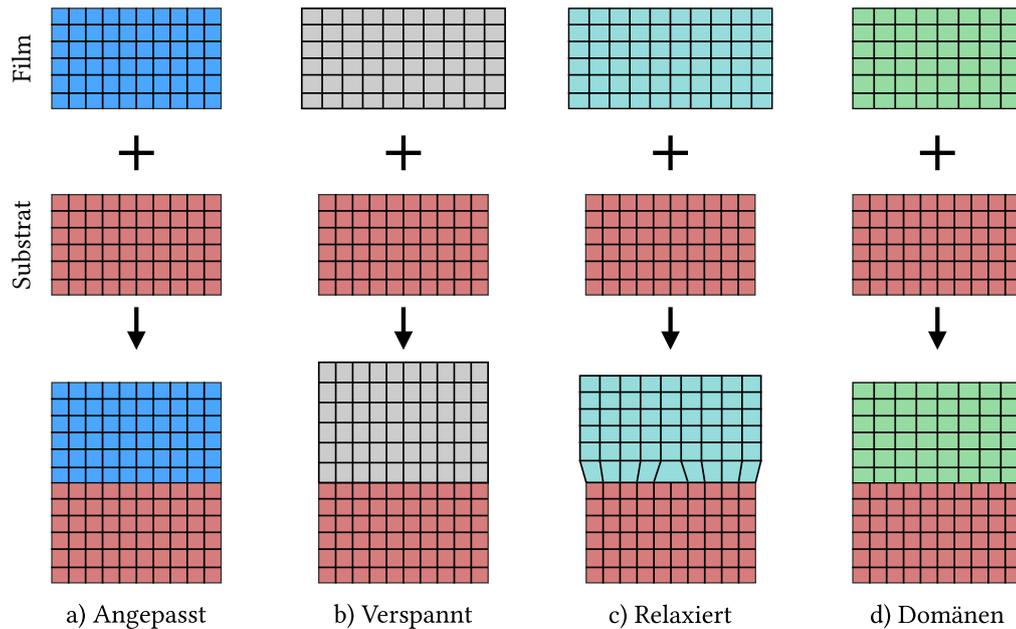


Abbildung 3.1: Schematische Darstellungen verschiedener Arten des epitaktischen Wachstums. **a)** Bei der relaxierten bzw. angepassten Epitaxie ist die Gitterfehlpassung sehr gering ($f \approx 0$). Der Film wächst unverspannt auf. **b)** Bei geringen Abweichungen der Gitterparameter kann der Film die laterale Gitterkonstante des Substrats übernehmen. Der Film wächst dann mit Verzerrung der Gitterkonstante verspannt auf. **c)** Sind die mechanischen Spannungen an der Grenzfläche zu groß, können diese Umordnungsprozesse induzieren. Durch Versetzungen kann die im Film gespeicherte Energie abgebaut werden, etwas oberhalb der Grenzfläche wächst der Film unverspannt (relaxiert). **d)** Eine Sonderform ist die domänenangepasste Epitaxie. Dabei können, wie im gezeigten Beispiel, vier Einheitszellen des Films ($n = 4$) auf fünf Einheitszellen des Substrats ($m = 5$) aufwachsen. Ist die so beschriebene Gitterfehlpassung der Domänen nicht null, so kann es auch hier wieder zu Verspannungen an der Grenzfläche kommen.

wächst der Betrag der Gitterfehlpassung ($|f| > 0$) und es kommt zunächst zu einem verspannten Aufwachsen des Films. Dies wird als verspannte Epitaxie (*Strained Epitaxy*, s. Abb. 3.1 b)) bezeichnet. Dabei übernimmt der Film die lateralen Gitterkonstanten des Substrats. Aufgrund der Volumenerhaltung der Einheitszelle führt eine laterale Streckung ($f > 0$) zu einer medialen (*Out-of-Plane*) Stauchung und umgekehrt für $f < 0$.

Jede Gitterfehlpassung induziert schichtdickenabhängige Verspannungsenergien an der Grenzfläche. Sobald diese einen kritischen Wert überschreiten, werden die vorhandenen mechanischen Verspannungen durch Versetzungen abgebaut. In den meisten Fällen wächst der Film bereits wenige Monolagen oberhalb der Grenzfläche mit seiner ursprünglichen lateralen Gitterkonstante unverspannt weiter auf. Dies wird als relaxierte Epitaxie (*Relaxed Epitaxy*, s. Abb. 3.1 c)) bezeichnet. Als Spezialform hiervon können die Versetzungen ein geordnetes Untergitter, das sogenannte

Koinzidenzgitter, formen. Dabei wachsen allgemein n Einheitszellen des Films lateral auf m Einheitszellen des Substrats. Dies wird als domänenangepasste Epitaxie (*Domain Matched Epitaxy*, s. Abb. 3.1 d)) bezeichnet [132, 133]. Beim Wachstum von Titanitrat (TiN) auf einem (100)-orientierten Silizium-Substrat wird beispielsweise ein Verhältnis von $n/m = 4/3$ beobachtet [132]. Dabei resultiert eine verbleibende Gitterfehlpassung von $f < 4\%$ [134]. Beim Wachstum von BaBiO₃ auf SrTiO₃ wird ebenfalls diese Art des Wachstums mit einem Verhältnis von $n/m = 11/12$ vermutet [12, D1].

Erfahrungswerte aus der Literatur belegen, dass epitaktisches Wachstum bis $|f| \lesssim 8\%$ auftritt [132, 135]. Am Beispiel des Wachstums von MgO oder TiN auf Silizium lässt sich jedoch erkennen, dass dies nur eine Faustregel ist: Hier wird epitaktisches Wachstum trotz $f \approx 22\%$ [133] beziehungsweise $f \approx 25\%$ [132, 134] beobachtet. Epitaktisches Wachstum bei noch größeren Werten der Gitterfehlpassung kann auch erreicht werden, wenn die Kristallachsen nicht mehr parallel zueinander stehen, also wenn beispielsweise ein Film (011)-orientiert auf einem (001)-orientierten Substrat aufwächst.

Wachstumsmodi

Von der ersten Keimbildung der den Film aufbauenden Teilchen bis zum Wachstum des Films finden eine Vielzahl physikalischer Prozesse statt, welche größtenteils theoretisch verstanden sind [136]. Während bei der Keimbildung die Gibbs'sche freie Enthalpie und damit einhergehend eine Mindestgröße r^* der Keime (Ostwaldreifung) die entscheidenden prozessantreibenden Größen sind [137], hängt das weitere Wachstum von den freien Grenzflächenenergien γ_s , $\gamma_{f(n)}$ sowie $\gamma_{i(n)}$ – den Energien zwischen Substrat und Vakuum, zwischen Film und Vakuum sowie zwischen der gemeinsamen Grenzfläche Substrat und Film) – ab [113, 138]. Dabei indiziert n die Anzahl an Lagen und damit eine Schichtdickenabhängigkeit der zuletzt genannten Grenzflächenenergien. Im Wesentlichen können drei unterschiedliche Wachstumsmodi unterschieden werden, die in Abbildung 3.2 dargestellt sind und im Folgenden vereinfacht in aller Kürze erläutert werden.

Inselwachstum (Volmer-Weber-Wachstum): Wenn adsorbierte Partikel eine größere Bindungsenergie untereinander aufweisen als zur Substratoberfläche, finden weitere Ablagerungen bevorzugt auf dem bereits adsorbierten Material statt (vgl. Abb. 3.2 a)). Für das Verhältnis der freien Energien gilt hierbei $\gamma_s < \gamma_{i(n)} + \gamma_{f(n)}$ [138]. Somit ist ein dreidimensionales Filmwachstum energetisch begünstigt. [139]

Lagenwachstum (Frank-van-der-Merwe-Wachstum): Infolge einer höheren Bindungsenergie zwischen Film und Substratmaterial benetzen die adsorbierten Partikel die Substratoberfläche gleichmäßig. Erst wenn diese komplett bedeckt ist, wächst die

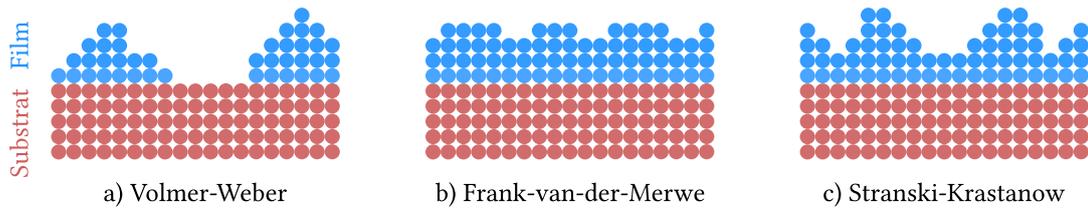


Abbildung 3.2: Schematische Darstellung verschiedener Film-Wachstumsmodi. In Abhängigkeit der Grenzflächenenergien resultiert eine unterschiedliche Morphologie: **a)** Ist die Grenzflächenenergie γ_s (zwischen Substrat und Vakuum) kleiner als $\gamma_{i(n)}$ (zwischen Film und Vakuum) und $\gamma_{f(n)}$ (zwischen Substrat und Film) zusammen: $\gamma_s < \gamma_{i(n)} + \gamma_{f(n)}$, so ist ein dreidimensionales Filmwachstum energetisch begünstigt (Insel- oder Volmer-Weber-Wachstum). **b)** Zweidimensionales Schichtwachstum (Frank-van-der-Merwe) findet bevorzugt statt, falls $\gamma_s > \gamma_{i(n)} + \gamma_{f(n)}$. Dies kann zu einem flächigen Bedecken des Substrats führen. **c)** Beim Stranski-Krastanow-Wachstum ist zunächst die Grenzflächenenergie γ_s am größten, wodurch der Film das Substrat flächig benetzt. Aufgrund der Schichtdickenabhängigkeit von $\gamma_{i(n)}$ und $\gamma_{f(n)}$ findet oberhalb einer kritischen Schichtdicke ein energiegetriebener Umbruch statt, wodurch anschließend dreidimensionales Wachstum energetisch begünstigt wird.

nächste Monolage einheitlich auf (vgl. Abb. 3.2 b)). Für die freien Grenzflächenenergien gilt dabei $\gamma_s > \gamma_{i(n)} + \gamma_{f(n)}$ [138]. [135, 140, 141]

Stranski-Krastanow-Wachstum: Der dritte Wachstumsmodus ist eine Kombination der beiden eben vorgestellten Modi und resultiert aus einer Schichtdickenabhängigkeit der Grenzflächenenergien von $\gamma_{i(n)}$ und $\gamma_{f(n)}$. Es werden zuerst wenige Lagen flächig gewachsen, ehe ein energiegetriebener Umbruch zu einem bevorzugten Inselwachstum führt (vgl. Abb. 3.2 c)). [142]

Bei der Dünnsfilmsynthese ist das zweidimensionale Frank-van-der-Merwe-Wachstum von großem Interesse. In der Realität treten die drei Modi jedoch nicht immer eindeutig getrennt voneinander auf, sondern bilden Mischzustände aus [143]. Dennoch können Wachstumsmodi unter bestimmten Voraussetzungen bevorzugt sein: Während hohe Substrattemperaturen in der Regel das Volmer-Weber- oder Stranski-Krastanow-Wachstum begünstigen, führen hohe Depositionsraten bevorzugt zu einem Lagenwachstum. Eine große Gitterfehlpassung sowie eine schwächere Bindung an der Grenzfläche als im Film führt wiederum vermehrt zu Insel-Wachstum. Zudem wird durch eine dicht gepackte Substratoberfläche zweidimensionales Wachstum präferiert. [144, 145]

3.2 Gepulste Laserablation

Seit der Entwicklung des Lasers (*Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation*) im Jahr 1960 [146] sind vielfältige moderne Anwendungen daraus entstanden: Laser werden beispielsweise verwendet zur exakten Ausrichtung von Bauteilen, bei der

Vermessung von Längen, in der Informationsübertragung, bei Belichtungsvorgängen im Druckwerken, bei chirurgischen Eingriffen am Auge oder bei der Bearbeitung von Oberflächen. Des Weiteren wurde diese Technik bald nach der Entdeckung auch zur Synthese von Dünnfilmen eingesetzt [145]. Der Durchbruch als Beschichtungsverfahren gelang Ende der 1980er Jahre, als mehrere Arbeitsgruppen unabhängig voneinander erfolgreich epitaktische Filme mit Hilfe der gepulsten Laserablation (*Pulsed Laser Deposition*, PLD) herstellen konnten [147–149]. Seitdem wird dieses Verfahren zur Synthese unterschiedlicher Materialien extensiv verwendet [150].

Im Wesentlichen benötigt dieses Beschichtungsverfahren drei Komponenten: einen hochenergetischen Laser als Energiequelle, das aufzuwachsene Material meist in Form einer polykristallinen Tablette (*Target*) und ein zum Filmmaterial passendes Substrat. Der Laser wird gepulst, wobei jeder Laserpuls im Idealfall die folgenden, im Bereich von Mikrosekunden stattfindenden Prozesse anstößt:

1. *Einwirkung des Laserlichts auf die Oberfläche des Targets und Erzeugung eines Plasmas.* Dabei finden mehrere Prozesse innerhalb kürzester Zeit statt: Die Wechselwirkung des Laserlichts mit der Oberfläche des Targets führt nahezu instantan zu einer starken Erhitzung derselbigen und, meist begünstigt durch einen niedrigen Hintergrunddruck, zum Abdampfen des Materials. Weitere Wechselwirkungen des Laserlichts mit dem abzuschneidenden Material führen zur Bildung eines isothermen Plasmas. Beide Prozesse finden während der Einwirkzeit des Lasers statt [151], welche typischerweise einige Nanosekunden beträgt [152–154]. [151]

2. *Meist adiabatische Ausbreitung des Plasmas parallel zur Flächennormalen des Targets bis hin zur Substratoberfläche.* Die Form der Plasmawolke (*Plasma Plume*) kann mit einer $\cos^n(\Theta)$ -Relation beschrieben werden [144]. Der Exponent ist von vielen Faktoren wie beispielsweise Targetdichte, Laserenergie oder Hintergrunddruck abhängig und liegt in den meisten Fällen im Bereich von 4 bis 30 [154].

3. *Kondensation und idealerweise Kristallisation zu einem epitaktischen Film.* Sofern die auf das Substrat auftreffenden Partikel nicht elastisch gestreut werden, folgen eine Reihe von schnell und teilweise zeitgleich abfolgenden Prozessen: Beim Annähern an die Substratoberfläche erfahren die Partikel unmittelbar vor dem Kontakt eine Van-der-Waals-Wechselwirkung, wodurch die Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Partikel am Substrat steigt: es kommt zur Adsorption an der Oberfläche. Da diese Wechselwirkung zwischen Filmmaterial und Substratoberfläche im ersten Moment verglichen zur thermischen Energie jedoch sehr schwach ist, können die anhaftenden Partikel die Oberfläche auch wieder verlassen (Desorption). Während dieser Phase können auch eine Vielzahl chemischer Reaktionen stattfinden. Adsorbierte Partikel unterliegen, sofern sie nicht sofort wieder desorbiert werden, Nukleations- sowie Diffusionsprozessen und tragen letztlich zum Schichtwachstum bei. [144, 145]

Bei passender Wahl der PLD-Parameter (Druck, Temperatur, Laserenergie, Energiedichte) ist ein stöchiometrischer Übertrag sowie ein epitaktisches Wachstum möglich. Ein Vorteil gegenüber anderen Depositionsverfahren wie beispielsweise Kathodenzerstäuben (*Sputtern*) oder Molekularstrahlepitaxie (*Molecular Beam Epitaxy*, MBE) ist, dass das PLD-Verfahren auch bei einem hohen Hintergrunddruck (bis zu einigen Millibar) angewendet werden kann, da das Laserlicht kaum mit Gasen wechselwirkt. Auch sind mittels PLD hohe Abscheideraten aufgrund hoher Laserpulsraten und Laserenergien möglich. Da die Abscheiderate pro Puls weitgehend konstant ist, können mittels PLD auch atomar definierte Dünnschichten realisiert werden. [144]

Diesen Vorteilen stehen die Nachteile eines großen zeitlichen sowie energetischen Aufwands, die Vielzahl an einstellbaren Parametern sowie eine Beschränkung auf kleine zu beschichtende Flächen gegenüber. Des Weiteren lassen sich nicht alle Materialien in Form eines hochdichten und inerten Targets anfertigen oder eignen sich nicht für die Dünnschichtsynthese mittels PLD (spiegelnde Oberflächen, poröse Materialien). Somit findet das Beschichtungsverfahren hauptsächlich in Forschungseinrichtungen in der Oxidforschung Anwendung.

[144, 151–155]

Depositionsparameter

Um epitaktische Dünnschichten mit definierten Grenzflächen zu wachsen, müssen während des PLD-Prozesses einige Parameter kontrolliert und dynamisch angepasst werden. Im Folgenden werden diese jeweils einzeln diskutiert, auch wenn sich diese teilweise gegenseitig beeinflussen.

Laserparameter

Damit eine starke Wechselwirkung des Laserlichts mit dem Targetmaterial stattfinden kann, sollte das Target einen möglichst geringen Reflexionsgrad aufweisen, also das Absorptionsspektrum des Targetmaterials im Bereich der Laserwellenlänge ein Maximum aufweisen. In dieser Arbeit werden oxidische Keramiken verwendet. Kurzwellige Laserstrahlen, wie die eines Excimer-Lasers (*Excited Dimer*), eignen sich hierfür besonders gut [154].

Excimerlaser erreichen typischerweise eine Energiedichte von einigen Joule pro Quadratcentimeter. Dabei ist zu beachten, dass die auf das Target eingetragene Energiedichte weder zu klein noch zu groß sein darf, um einerseits die Ausbildung eines Plasmas zu erreichen und andererseits das Targetmaterial nicht durch thermische Überlastung punktuell aufzuschmelzen und so eine Clusterbildung zu riskieren. Letztgenanntes kann zu Inhomogenitäten und einer hohen Oberflächenrauigkeit der Dünnschichtproben

führen. Nur im optimalen Energiebereich können alle Elemente des Targetmaterials in die Gasphase übergehen. Des Weiteren beeinflusst die Laserenergie maßgeblich die Abscheiderate und kinetische Energie der herausgelösten Teilchen. Nach den Faustregeln zum Erreichen eines epitaktischen Wachstums auf Seite 23 begünstigt eine hohe Abscheiderate das erwünschte Lagenwachstum. Dagegen können hohe kinetische Energien der auftreffenden Teilchen zu Defekten auch unterhalb der Filmoberfläche führen (Implantation). Durch Einbau von interstitiellen Fehlstellen kann zusätzlich mechanische Spannung im Film hervorgerufen werden.

Zuletzt kann im PLD-Prozess noch die absolute Anzahl an Laserpulsen (LP) variiert werden. Dabei ist meist eine direkte Proportionalität zwischen der Anzahl an LP und der resultierenden Schichtdicke zu erwarten.

Hintergrunddruck

Der Ablationsprozess findet meist in einer Vakuumkammer unter reduzierten Hintergrunddrücken zwischen Ultrahochvakuum (UHV) bis etwa 1 mbar statt [154]. Bei oxidischen Materialien wird als Hintergrundgas häufig molekularer Sauerstoff verwendet. Dieser erfüllt mehrere Zwecke: Die Bestandteile der Plasmawolke können mit den Sauerstoffmolekülen wechselwirken und so bereits Suboxid-Einheiten bilden, welche im nächsten Schritt bei der Anlagerung auf dem Substrat bzw. Film zur präferentiellen Ausbildung der oxidischen Phase führen. Die Menge an Sauerstoff ist dabei von der thermodynamischen Stabilität der auszubildenden Oxid-Phase abhängig [154]. Des Weiteren wird die geometrische Form der Plasmawolke, also der Exponent n der bereits erwähnten $\cos^n(\Theta)$ -Abhängigkeit, beeinflusst: Das Hintergrundgas fokussiert somit die Plasmawolke [154]. Gleichzeitig wird durch zusätzliche Stoßprozesse die kinetische Energie der Teilchen im Plasma reduziert. Zuletzt kann ein höherer Hintergrunddruck das Abdampfen flüchtiger Elemente, wie in meinem Fall Blei [154] oder Bismut [155], vom Substrat und damit einhergehend ein nicht stöchiometrisches bzw. defizitäres Wachstum vermindern.

Substrattemperatur

Auf der Substratoberfläche sollen Umordnungsprozesse der auftreffenden Teilchen ermöglicht werden, damit alle Elemente ihren energetisch günstigsten Platz einnehmen können. Dies wird durch Diffusionsprozesse ermöglicht, wobei im Allgemeinen die den Prozess beschreibende Diffusionskonstante D von der Temperatur T abhängt [156]: $D \propto \exp(-T^{-1})$. Im Idealfall können dadurch epitaktische, einkristalline Dünnsfilme realisiert werden. Ist die Substrattemperatur zu niedrig, so können polykristalline oder amorphe Strukturen entstehen. Mit steigender Temperatur nimmt jedoch auch der

Dampfdruck der Elemente auf der Probenoberfläche zu [144]. Dies kann, ähnlich wie ein reduzierter Hintergrunddruck, zum Abdampfen von leicht flüchtigen Elementen führen.

Tempern (Annealing)

Um die Sauerstoffbeladung der oxidischen Dünnschichten zu beeinflussen, ohne den Hintergrunddruck während der Synthese zu verändern (was allgemein nicht beliebig möglich ist), gibt es zusätzlich die Möglichkeit, die gewachsenen Dünnschichten nachträglich einer Wärmebehandlung unter veränderten Hintergrundbedingungen für eine bestimmte Haltezeit (*Annealing Time*) auszusetzen. Üblicherweise wird dies direkt nach dem Wachstumsprozess durchgeführt. Der normalerweise bereitgestellte Sauerstoff bei gleichzeitig hoher Diffusivität führt zum nachträglichen Einbau von Sauerstoffionen im gewachsenen Gitter. So kann einem Sauerstoffdefizit entgegengewirkt werden, allerdings nur bis zu einer materialabhängigen Schichttiefe.

[151–155]

Die verwendete PLD-Anlage

Die für diese Arbeit verwendete Anlage besteht aus einem System aus untereinander über Vakuumschleusen (*Shutter*) verbundenen Vakuumkammern (s. Abb. 3.3 a)). Im Zentrum der Anlage befindet sich die Transferkammer. Targets und Proben lassen sich ohne die individuellen Vakuas der anderen Kammern zu brechen, über die sogenannte *Load-Lock*-Kammer ein und ausschleusen. Diese Kammer zeichnet sich durch ein kleines Volumen und damit durch kurze Evakuierungs- und Belüftungszeiten aus. Über die Transferkammer können dann die Targets oder Proben in eine von zwei zueinander gespiegelten Depositionskammern sowie zu einer Sputter- oder Ionenätzenanlage transportiert werden. Dieser Aufbau ermöglicht weiterhin das sukzessive In-Situ-Prozessieren von umgebungsempfindlichen Proben. Jede der erwähnten (autarken) Kammern ist durch ein Pumpsystem aus einer Scroll- (Boc Edwards xDS10) sowie Turbopumpe (der Firma Pfeiffer) ausgestattet. Ein Minimaldruck im Bereich von 10^{-8} mbar ist somit in jeder einzelnen Kammer unabhängig erreichbar.

In den beiden Depositionskammern befindet sich jeweils ein Targetrevolver, welcher bis zu vier verschiedene Targets aufnehmen kann. Mittels Schrittmotoren (Berger Lahr, VRDM368/50LNA) lassen sich die Targets frei positionieren. Der schematische Aufbau ist in Abbildung 3.3 b) dargestellt. Um während des Ablationsprozesses die Targetoberfläche vor langzeitigen thermischen Beanspruchungen zu schützen und mögliche Inhomogenitäten im Targetmaterial vorzubeugen, kann dieses mäanderförmig gegenüber dem auftreffenden Laserstrahl bewegt werden. Der Hintergrunddruck

3 Dünnfilmsynthese

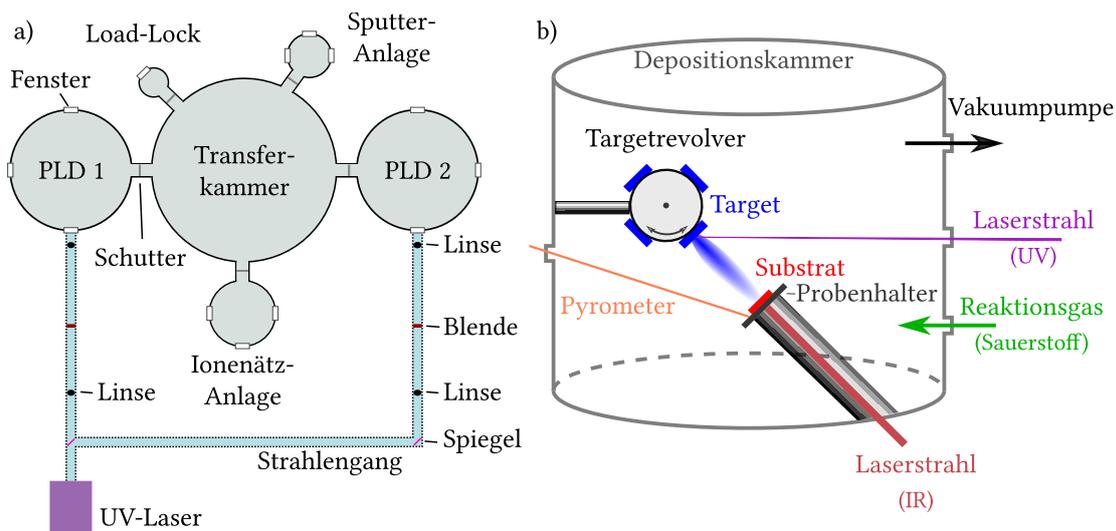


Abbildung 3.3: Schematische Darstellung des Aufbaus der verwendeten PLD-Anlage. a) Ein System aus miteinander verbundenen Vakuumkammern ermöglicht einen Transport von Objekten in die verschiedenen Teilabschnitte der Anlage. Diese sind jeweils über einen *Shutter* voneinander abtrennbar. Es stehen zwei getrennte PLD-Kammern zur Verfügung (PLD 1 und PLD 2). Über einen optischen Tisch kann das Laserlicht über Spiegel, Blenden und Linsen definiert in die beiden Kammern eingekoppelt werden. b) In den PLD-Kammern befindet sich jeweils ein Targetrevolver, der bis zu vier unterschiedliche Targets aufnehmen kann. Über Schrittmotoren wird das jeweils gewünschte Target optimal zum eintreffenden Laserstrahl ausgerichtet, so dass die sich während des Depositions-Prozesses ausbildende Plasmawolke mittig die Substratoberfläche trifft. Das bereitgestellte Substrat befindet sich (im Fall der PLD2) auf einem mobilen, thermisch isolierten Probenhalter und wird von der Rückseite mit einem IR-Laser auf die gewünschte Temperatur geheizt. Ein System aus Vakuumpumpen und einem Gas-Flow-Controller ermöglicht einen dynamisch geregelten Hintergrunddruck.

wird mittels eines Massendurchflussreglers (MKS PR4000) sowie eines Shutter-systems (der Firma VAT) dynamisch geregelt. Die verwendete Depositionskammer verfügt über ein Laserheizsystem (LH 140, Surface Systems + Technology GmbH & Co.Kg, Hückelhoven). Das auf einen thermisch abgefangenen Probenhalter befestigte Substrat wird dabei durch die Bestrahlung der Rückseite des Probenhalters indirekt aufgeheizt. Die Energie des Infrarot-Lasers ($\lambda = 938 \text{ nm}$) sowie die gewünschte Temperatur ist über einen Steuerrechner regelbar. Um Weiteres zu ermöglichen, ist im Laserheizsystem intern ein Pyrometer verbaut, welches ebenfalls auf die Rückseite des Probenhalters ausgerichtet ist. Die Temperatur des Probenhalters kann zusätzlich über ein externes Pyrometer (Kleiber 270B) bestimmt werden. Dieses ist außerhalb der Depositionskammer platziert und auf den Probenhalter knapp unterhalb des Substrats ausgerichtet.

Die Laserpulse des zur Ablation verwendeten KrF-Excimer-Lasers (LPX300, Lambda Physics/Coherent) können über ein System aus Spiegeln auf ein ausgewähltes Target in einer der beiden Depositionskammern gerichtet werden. Dabei ermöglichen Blenden

Material	Verwendung	$a_{c/pc,RT}$	Hersteller	f_{BBO}	f_{BPO}
SrTiO ₃	Substrat	3,905 Å	MaTecK GmbH/ Crystal GmbH	-10,23 %	-8,48 %
MgO	Substrat	4,203 Å	Crystal GmbH	-3,38 %	-1,50 %
BaPbO ₃	Target	4,267 Å	Sindlhauser Materials GmbH	-1,91 %	0 %
BaBiO ₃	Target	4,35 Å	Sindlhauser Materials GmbH	0 %	1,95 %

Tabelle 3.1: Übersicht über die verwendeten Substrat- und PLD-Target-Materialien mit Angaben zu deren nominellen kubischen bzw. pseudokubischen Gitterkonstanten $a_{c/pc}$ bei Raumtemperatur, Bezugsfirmen sowie Gitterfehlpassungen bezogen auf BaBiO₃ (BBO) und BaPbO₃ (BPO) (nach Gl. 3.1 mit $m = n = 1$). Für BaBiO₃ auf SrTiO₃ wurde eine domänenangepasste Epitaxie mit einem Verhältnis von $n/m = 11/12$ beobachtet [D1]. Damit ergibt sich eine nominelle Gitterfehlpassung von $f = -2,1\%$.

und optische Linsen das Ausblenden des äußeren, inhomogenen Laserstrahlprofils sowie das Fokussieren des nicht ausgeblendeten Laserlichts auf die Oberfläche des Targets. Dort besitzt der Laserstrahl eine räumliche Ausdehnung von etwa $1,8 \times 1,8 \text{ mm}^2$. Die Wellenlänge des Lasers beträgt $\lambda = 248 \text{ nm}$.

Verwendete Materialien und PLD-Parameter

In Tabelle 3.1 sind die verwendeten Substrat- sowie Targetmaterialien mitsamt Informationen zu deren nominellen Raumtemperatur-Gitterparametern, Bezugsfirmen und gegenseitige Gitterfehlpassungen aufgelistet. Die polykristallinen, gesinterten Targets sind stöchiometrisch, weisen nominell eine Reinheit von mehr als 99,5 % auf und sind mit der technisch maximal erreichbaren Materialdichte kommerziell angefertigt worden. Spuren vorheriger Ablationsprozesse werden standardmäßig durch Abtrag mittels Schleifpapier (VSM, Korn 320) von der Targetoberfläche entfernt. Dem eigentlichen Dünnfilmwachstumsprozess geht zudem die sogenannte Preablation voraus, bei der die Targetoberfläche unter den gleichen Bedingungen wie bei der späteren Ablation mit dem Excimer-Laser mittels 300 LP abgerastert wird. So findet jede Ablation in Bezug auf die Targetoberfläche unter den gleichen Ausgangsbedingungen statt.

Als Substrat werden standardmäßig 1-mm-dicke, einseitig polierte, jeweils (001)-orientierte Einkristalle aus SrTiO₃ und MgO mit einer Orientierungsgenauigkeit von mindestens 0,5° und Kanten entlang der (010)/(100)-Netzebenen verwendet. Der Mittrauwert der Oberfläche beträgt nominell $R_a < 0,5 \text{ nm}$. Sofern die Substrate nicht bereits die passende Größe besitzen, werden diese mittels einer Diamantdrahtsäge (Well Diamantdrahtsägen GmbH) auf eine Größe von etwa $5 \times 5 \text{ mm}^2$ zugeschnitten.

Dabei wird während des Sägeprozesses die Substratoberfläche mit Fotolack vor Schleifstaub geschützt. Nach dem Sägen wird der aufgetragene Fotolack mittels Aceton und Isopropanol wieder entfernt.

Jeder Dünnsfilmsynthese geht zunächst eine von zwei in dieser Arbeit angewendeten Reinigungsprozeduren der Substratoberfläche voraus. SrTiO_3 kann – wie eingangs beschrieben (Kap. 2.2) – mittels einer Ätzprozedur TiO_2 -terminiert werden. Hierfür werden die Substrate für 30 s in einem Ultraschallbad einer 13%igen gepufferten Flusssäurelösung ausgesetzt, anschließend in bidestilliertem Wasser gereinigt und mit einer Stickstoff-Druckpistole trocken geblasen. Nachfolgend gilt es, die so behandelten Substrate für etwa sieben Stunden bei $950\text{ }^\circ\text{C}$ unter reinem Sauerstofffluss auszuheizen, um eventuell eingebrachte Ätzschäden auszuheilen. Die so präparierten Substrate können im Trockenschrank zwischengelagert und ohne weitere Präparationsschritte für die Dünnsfilmsynthese verwendet werden. Die zweite in dieser Doktorarbeit verwendete Reinigungsprozedur sieht ein zehn-minütiges Ultraschallbad der Substrate in Aceton vor, ehe die Substrate auf der polierten Seite mittels Isopropanol und Linsenpapier abgezogen werden. Anschließend werden die Substrate erneut für jeweils zehn Minuten in Aceton und Isopropanol in einem Ultraschallbad gereinigt. Direkt vor der Dünnsfilmsynthese durchlaufen die Substrate zusätzlich einen Ausheizprozess bei nominell $800\text{ }^\circ\text{C}$ in der PLD-Kammer. Die Qualität der so behandelten Substratoberflächen wird routinemäßig mittels Rasterkraftmikroskopie überprüft (s. Kap. 4.2.1).

Nach der entsprechenden Vorbehandlung werden die Substrate mittels Leitsilber (Plano GmbH) auf einen thermisch abgefangenen Probenhalter geklebt. Dieser Verbund wird zunächst zum Aushärten des Leitsilbers für etwa 30 Minuten auf bis zu $75\text{ }^\circ\text{C}$ ausgeheizt und anschließend in die Depositionskammer eingeschleust. Um strukturelle Schäden im Substratmaterial beim Hochheizen zu vermeiden, werden die Substrate innerhalb von etwa 40 Minuten auf die Ablationstemperatur von nominell $554\text{ }^\circ\text{C}$ durch eine kontinuierliche Erhöhung der IR-Laserenergie aufgeheizt. Eine Ausheiztemperatur von $800\text{ }^\circ\text{C}$ im Fall nicht HF-gepufferter Substrate wird in etwa 60 Minuten erreicht. Nach einer etwa fünfminütigen Stabilisierung der nominellen Temperatur folgt der eigentliche Ablationsprozess. Hierfür werden die auf $800\text{ }^\circ\text{C}$ geheizten Substrate zunächst innerhalb weniger Sekunden ebenfalls auf $554\text{ }^\circ\text{C}$ abgekühlt.

Die in regelmäßigen Abständen über ein externes Messgerät (BFI OPTiLAS) kontrollierte bzw. kalibrierte Energie sowie die Frequenz des Excimer-Lasers werden im Vorfeld auf die beiden Targetmaterialien optimiert. Für BaPbO_3 beträgt bei nahezu allen Proben die eingestellte Laserenergie 650 mJ bei einer Frequenz von 5 Hz und 730 mJ bei 3 Hz für BaBiO_3 . Im Fall der Herstellung von Bilagen wird nach der Fertigstellung der ersten Schicht automatisch auf das zweite Target gewechselt, währenddessen der Excimerlaser mittels Schüssen auf eine Blende auf die neue Energie stabilisiert wird.

Der Ablation folgt standardmäßig ein Annealing-Schritt unter einem Hintergrunddruck von etwa 400 mbar O₂, um einerseits eine Sauerstoffbeladung des Dünnsfilms zu ermöglichen, andererseits aber auch ein Wieder-Abdampfen der flüchtigen Elemente Blei sowie Bismut zu minimieren [157]. Der Sauerstoff wird dabei direkt nach dem Wachstum der letzten Schicht eingelassen. Anschließend wird die Temperatur innerhalb von 3 min auf 400 °C verringert und für weitere 17 min konstant gehalten. Nach Ablauf dieser Zeit findet ein freies Abkühlen der Probe statt. Anschließend kann die Depositionskammer wieder evakuiert werden und der Dünnsfilm über die Transfer- und *Load-Lock*-Kammer ausgeschleust werden.

4 Strukturelle Charakterisierung

Die physikalischen Eigenschaften von Dünnschichten und Dünnschichtsystemen sind maßgeblich von deren Kristallstrukturen abhängig, die – wie in Kapitel 3 beschrieben – vom Substrat und dem Filmwachstum beeinflusst sein können. Daher ist es wichtig, die strukturellen Eigenschaften der Dünnschichtproben genau zu kennen [158]. Dafür stehen verschiedene Charakterisierungsmethoden zur Verfügung, auf deren theoretische Grundlagen ich zunächst eingehen möchte, bevor ich die Ergebnisse der Strukturanalyse der im Rahmen dieser Arbeit angefertigten BaPbO₃-Monolagen vorstelle und diskutiere. Strukturanalysen von BaPbO₃-BaBiO₃-Bilagen werden ausschnittsweise in Kapitel 6.2.2 diskutiert.

4.1 Charakterisierungsmethoden

Es gibt unterschiedliche Methoden, die Struktur und Topographie von Dünnschichten zu evaluieren. Beispiele hierfür sind optische Spektroskopie, Untersuchungen mittels Magnetoresonanz (z. B. Kernspinresonanz), verschiedene Arten von Streuexperimenten (z. B. Ionen-Strahl-Streuung, Ramanstreuung, Röntgenstreuung) sowie verschiedene Arten der Mikroskopie [158]. Mit optischen Mikroskopen lassen sich intransparente Dünnschichten meist nur im Nanometerbereich durchleuchten bzw. die Oberfläche der Kristalle analysieren. Dabei spielt das optische Auflösungsvermögen eine wichtige Rolle. Neben der Abhängigkeit von der numerischen Apertur ist diese direkt proportional zur Wellenlänge der verwendeten Strahlung. Um atomare Auflösungen zu realisieren, werden häufig beschleunigte Elektronen als Lichtquelle verwendet wie beispielsweise bei der im Jahr 1937 [159] entwickelten Rasterelektronenmikroskopie (*Scanning Electron Microscope*, SEM). Eine weitere Methode, das optische Auflösungslimit zu umgehen, gelingt durch das Abrastern der Probenoberfläche bei gleichzeitiger Detektion von elektrischen Tunnelströmen oder Van-der-Waals-Wechselwirkungen. Ein Beispiel hierfür ist die im Jahr 1986 [160] entwickelte Rasterkraftmikroskopie, die zur Untersuchung der Topographie in dieser Arbeit standardmäßig verwendet und im folgenden Kapitel genauer beschrieben wird. Das mit dieser Charakterisierungsmethode gewonnene Bild lässt sich als direktes Abbild der Kristalloberfläche interpretieren. Bei dem zweiten verwendeten Standard-Verfahren, der Röntgenbeugung, kann die

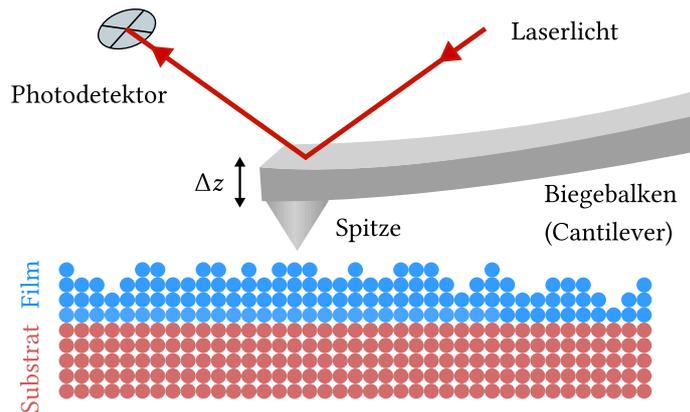


Abbildung 4.1: Schematische Skizze des vereinfachten Arbeitsprinzips eines Rasterkraftmikroskops. An einem Biegebalken (*Cantilever*) befindet sich eine Spitze, welche in Wechselwirkung mit der Probenoberfläche treten kann. Die durch die Wechselwirkung bedingte Verbiegung des Biegebalkens wird unter Normalbedingungen meist über die Ablenkung eines Laserstrahls detektiert, welcher von der Rückseite des Biegebalkens auf einen meist viergeteilten Photodetektor reflektiert wird, worüber auf die Stärke der Auslenkung (Δz) geschlossen werden kann.

verwendete Strahlung meist etwa $10\ \mu\text{m}$ bis $100\ \mu\text{m}$ in die Probe eindringen [158] und liefert somit Rückschlüsse auf den reziproken Raum und damit indirekt auf die Kristallstruktur der untersuchten Dünnsfilmproben.

4.1.1 Rasterkraftmikroskopie

Seit der Entwicklung des Rasterkraftmikroskops (*Atomic Force Microscope, AFM*) durch Binnig und Rohrer im Jahr 1986 [160] steht eine Technik zur Verfügung, die Topographie von Materialien auf atomarer Ebene zu studieren [153]. Vorteile gegenüber anderen Techniken wie der Rastertunnelmikroskopie stellen die Anwendbarkeit auch auf elektrisch isolierenden Materialien sowie die zerstörungsfreie Untersuchung der Oberfläche dar [160]. Dabei werden die Prinzipien der Rastertunnelmikroskopie und der Profilometrie im sogenannten Kontakt-Modus kombiniert [160]: An einem sogenannten Biegebalken (*Cantilever*) befindet sich eine dünne Spitze, welche mittels piezoelektrischer Auslenkung mäanderförmig über die Probenoberfläche gerastert wird. Die Van-der-Waal-Wechselwirkung zwischen Spitze und Probe führt im einfachsten Fall zur mechanischen Verbiegung des Biegebalkens. Ein üblicherweise unter Normalbedingungen auf den Biegebalken gerichteter Laserstrahl wird dadurch ausgelenkt, wobei die Ablenkung mittels Photodioden räumlich aufgelöst werden kann (vgl. Abb. 4.1). Darüber hinaus kann die Verbiegung des Biegebalkens auch piezoelektrisch detektiert werden, so dass die Deflektion eines Laserstrahls unnötig wird und ein

entsprechendes Mikroskop auch bei tiefen Temperaturen ohne optische Detektion betrieben werden kann [161, 162].

Die Weiterentwicklung dieses Kontakt-Arbeitsprinzips führt zu zwei überlegenen Betriebsmodi eines AFMs: den Nicht-Kontakt-Modus (*Non-Contact-Mode*) sowie den Intermittent-Modus (*Tapping-Mode*). Im letztgenannten Modus oszilliert der Biegebalken – aufgrund einer externen Anregung – mit seiner Resonanzfrequenz. Wechselwirkt nun die Spitze jeweils beim geringsten Spitze-Proben-Abstand, so führt dies zu einer Veränderung der Schwingungsfrequenz und Schwingungsamplitude des Biegebalkens, welche als Rückmeldung verwendet werden kann, um den Abstand der Spitze von der Probenoberfläche nachzuregeln und damit das Höhenprofil zu extrahieren. [163] [164]

Verwendete AFM-Anlage

Zur Aufzeichnung der Daten wird im Rahmen dieser Doktorarbeit ein MultiMode SPM-Gerät (ehemals Digital Instruments, übernommen durch Bruker) verwendet. Standardmäßig werden die Oberflächen mit PPP-NCHR-Spitzen mit einer spezifischen Resonanzfrequenz des Biegebalkens von etwa 300 kHz im Intermittent-Modus untersucht. Der verwendete Piezoscanner hat dabei eine maximale verfahrbare Fläche von etwa $14 \times 14 \mu\text{m}^2$. Die Datenaufnahme geschieht mit der Systemsoftware Nanosurf, wobei ich für die Darstellung und Auswertung der Daten die freie Software Gwyddion [165] verwendet habe. Als statistisches Mittel zum Vergleich von Oberflächenrauigkeiten wird in den folgenden Kapiteln das Maß der Quadratmittel-Rauigkeiten (*Root-Mean-Square-Roughness*, RMSR) angegeben.

4.1.2 Röntgendiffraktometrie

Anhand von Röntgenbeugungsexperimenten kann im Allgemeinen mittels kurzwelliger Röntgenstrahlung auf die chemische Zusammensetzung und indirekt auf die Struktur von Kristallen geschlossen werden. Dabei wird im Wesentlichen die Streuung zwischen Photonen, deren Wellenlänge in der Größenordnung interatomarer Abstände liegt, und Elektronen betrachtet. Es werden zwei Arten der Wechselwirkung unterschieden [158]: Inelastische Streuung, wie sie beispielsweise bei der Photoionisation oder dem Comptoneffekt auftritt, und elastische Streuung, welche für die Röntgendiffraktometrie essentiell ist. Sie wird auch als Thomson-Streuung bezeichnet und ist Gegenstand der folgenden Betrachtung. [158, 166]

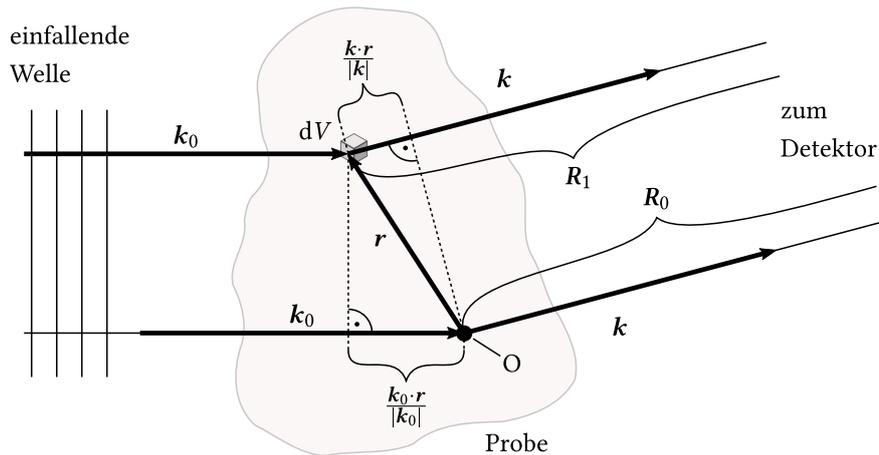


Abbildung 4.2: Schematische Skizze zur Herleitung der elementaren Streutheorie, in Anlehnung an [167]. Eine einfallende ebene Welle mit dem Wellenvektor \mathbf{k}_0 wird an einzelnen Volumenelementen innerhalb der Probe gestreut. Aus Überlegungen zum Phasenunterschied $\Delta\varphi$ zweier Streuwellen unterschiedlicher Streuzentren im Abstand \mathbf{r} kann die Streuamplitude der Probe berechnet werden. Dabei wird angenommen, dass der Abstand R_0 sowie R_1 zwischen Streuzentren und Detektor sehr groß ist, wodurch die gestreute Welle ebenfalls mit einem Wellenvektor \mathbf{k} beschrieben werden kann.

Elementare Streutheorie

Ziel der Röntgenbeugung ist, Informationen zur räumlichen Verteilung der Elektronen, der sogenannten Streudichteverteilung $\rho(\mathbf{r})$, in einer Probe zu erlangen, um daraus indirekt Rückschlüsse auf die Struktur ziehen zu können. Grundlage der analytischen Beschreibung von Röntgenbeugungsexperimenten ist die elementare Streutheorie. Neben der Annahme ausschließlicher Thomson-Streuung geht zudem noch die Annahme einer rein kohärenten Einfachstreuung innerhalb der Probe ein. Die Vernachlässigung von Mehrfachstreuungen ist als erste Born'sche Näherung bekannt. Die nachstehenden Ausführungen folgen im Wesentlichen [167, 168].

Jedes Streuzentrum dient als Ausgangspunkt einer Kugelwelle, wodurch sich die Amplitude einer einfallenden ebenen Welle mit Kreisfrequenz ω_0 , Wellenvektor \mathbf{k}_0 und Amplitude $A(t, \mathbf{r}) = A_0 \exp[-i(\omega_0 t - \mathbf{k}_0 \cdot \mathbf{r})]$ im Abstand R vom Streuzentrum folgendermaßen beschreiben lässt:

$$A_Z(t, \mathbf{R}) = \frac{\tilde{A}}{R} \exp[-i(\omega_0 t - \mathbf{k}_0 \cdot \mathbf{R})]. \quad (4.1)$$

Der Vorfaktor \tilde{A} repräsentiert die Streuwahrscheinlichkeit und ist sowohl von der Natur des Streuzentrums als auch von der Strahlung selbst abhängig. Für den Gangunterschied Δs zweier Streuwellen, die sich von unterschiedlichen Streuzentren im Abstand \mathbf{r} ausbreiten, ergibt sich – wie aus Abbildung 4.2 ersichtlich – allgemein der

Zusammenhang:

$$\Delta s = \left(\frac{\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}}{|\mathbf{k}|} \right) - \left(\frac{\mathbf{k}_0 \cdot \mathbf{r}}{|\mathbf{k}_0|} \right). \quad (4.2)$$

Dabei geht die Näherung ein, dass der Detektor eine ausreichende Distanz zur Probe hat, wodurch die kugelförmigen Streuwellen näherungsweise als eine ebene Welle mit Wellenvektor \mathbf{k} beschrieben werden können. Da rein elastische Streuprozesse betrachtet werden, ist der Betrag der eingestrahnten und reflektierten Wellenvektoren identisch: $|\mathbf{k}| = |\mathbf{k}_0|$. Damit lässt sich der Wegunterschied:

$$\Delta s = \frac{\Delta\varphi}{|\mathbf{k}|} = \frac{(\mathbf{k} - \mathbf{k}_0) \cdot \mathbf{r}}{|\mathbf{k}|} \quad (4.3)$$

über die Phasendifferenz $\Delta\varphi$ ausdrücken. Im weiteren Verlauf soll die Differenz des gestreuten und eingestrahnten Wellenvektors als Streuvektor $\mathbf{Q} = \mathbf{k} - \mathbf{k}_0$ aufgefasst werden. Die Phasendifferenz lässt sich somit zu $\Delta\varphi = \mathbf{Q} \cdot \mathbf{r}$ vereinfachen. Für den Beitrag des in Abbildung 4.2 angedeuteten Volumenelements dV am Ort \mathbf{r} zur Amplitude der am Detektor ankommenden gestreuten Strahlung ergibt sich somit:

$$\begin{aligned} dA_s(t, \mathbf{r}) &= \varrho(\mathbf{r}) A_Z dV \\ &= \frac{\tilde{A}}{R_1} \varrho(\mathbf{r}) \exp[-i(\omega_0 t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{R}_1 + \mathbf{Q} \cdot \mathbf{r})] dV, \end{aligned} \quad (4.4)$$

wobei R_1 der Abstand des Volumenelements zum Detektor darstellt. Ist der Abstand der Probe zum Detektor verglichen zur Probenausdehnung groß, so kann im weiteren Verlauf $R_1 \approx R_0 = R$ angenommen werden. Durch Integration über das gesamte Probenvolumen V_p resultiert die Gesamtamplitude $A_s(t)$ der Streustrahlung am Detektor:

$$A_s(t) = \frac{\tilde{A}}{R} \exp[-i(\omega_0 t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{R})] \int_{V_p} dV \varrho(\mathbf{r}) \exp[-i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{r}]. \quad (4.5)$$

Der Ausdruck vor dem Integral ist von spezifischen Größen des Materials, der Strahlungsart und des Versuchsaufbaus abhängig, wohingegen das Integral – häufig auch als Streuamplitude $\mathcal{A}(\mathbf{Q})$ bezeichnet – die Information zur Streudichteverteilung $\varrho(\mathbf{r})$ enthält. Es ist ersichtlich, dass die Streuamplitude der Fourier-Transformierten der Streudichteverteilung $\varrho(\mathbf{r})$ entspricht. Durch Rücktransformation ließe sich die Streudichteverteilung direkt ermitteln, allerdings sind experimentell nicht die Amplituden der Streustrahlung, sondern nur deren Strahlungsintensitäten $I(\mathbf{Q}) \propto |\mathcal{A}(\mathbf{Q})|^2$ zugänglich. Informationen zur Phase und somit zur Streudichteverteilung gehen damit verloren. Dies ist als *Phasenproblem* bekannt. Um dennoch Rückschlüsse zur Struktur zu erhalten, nutzt man die Periodizität der Kristallstruktur bzw. die der Streudichtever-

teilung $\varrho(\mathbf{r})$ aus. Die Fourier-Transformierte der periodischen Streudichteverteilung hat die Form:

$$\varrho(\mathbf{r}) = \sum_{h,k,l} \varrho_{hkl} \exp [i\mathbf{G}_{hkl} \cdot \mathbf{r}], \quad (4.6)$$

wobei h, k und l unabhängige ganze Zahlen, $\mathbf{G}_{hkl} = h\mathbf{b}_1 + k\mathbf{b}_2 + l\mathbf{b}_3$ reziproke Gittervektoren, \mathbf{b}_i den drei Basisvektoren des reziproken Gitters und ϱ_{hkl} Fourier-Koeffizienten entsprechen. Setzt man Gleichung 4.6 in Gleichung 4.5 ein, so findet man:

$$I(\mathbf{Q}) \propto |\mathcal{A}(\mathbf{Q})|^2 = \left| \sum_{h,k,l} \varrho_{hkl} \int_{V_p} dV \exp [-i(\mathbf{G}_{hkl} - \mathbf{Q}) \cdot \mathbf{r}] \right|^2. \quad (4.7)$$

Ist das Streuvolumen groß gegen die Periode der Kristallstruktur, mitteln sich bei der Integration alle Beiträge heraus mit Ausnahme spezieller Beobachtungsrichtungen, die die sogenannte Laue-Bedingung

$$\mathbf{Q} = \mathbf{G}_{hkl} \quad (4.8)$$

erfüllen. In Worten ausgedrückt besagt diese Bedingung, dass konstruktive Interferenz immer dann auftritt, wenn die Differenz aus gestreutem und eingestrahlttem Wellenvektor genau einem reziproken Gittervektor entspricht. Eine endliche Probenausdehnung, Unordnung sowie weitere Effekte wie beispielsweise eine Divergenz des Röntgenlichts und eine endliche Eindringtiefe der Strahlung verursachen ein „Aufweichen“ der Bedingung [167].

Die Laue-Bedingung ist von zentraler Bedeutung und wird in den folgenden Abschnitten, in denen es um verschiedene Messanordnungen geht, von Relevanz sein.

Röntgenbeugung

Bei der Röntgenbeugung (*X-Ray Diffraction*, XRD) werden Röntgenröhre und Röntgendetektor sphärisch sowie symmetrisch zur Probenoberfläche bewegt (vgl. Abb. 4.3). Da in diesem Fall der Einfallswinkel ω gleich dem Streuwinkel θ entspricht und historisch die Ablenkung des Röntgenstrahls auf die Einstrahlrichtung des Röntgenlichts bezogen wird, wird diese Messanordnung auch als θ - 2θ -Geometrie bezeichnet. Der Betrag des eingestrahlten Röntgenlichts der Wellenlänge λ des Wellenvektors bleibt bei der elastischen Streuung erhalten ($|\mathbf{k}| = |\mathbf{k}_0| = 2\pi/\lambda$), weswegen der Streuvektor \mathbf{Q} zu jedem Zeitpunkt senkrecht auf der Filmebene steht (s. Abb. 4.4 a)). Somit ist aufgrund von Gleichung 4.8 diese Messanordnung nur sensitiv gegenüber Netzebenen, deren Normalenvektor senkrecht zur Filmoberfläche stehen. Durch symmetrische Variation des Einfalls- und Streuwinkels wird die Länge des Streuvektors variiert (vgl. Abb. 4.4 a)).

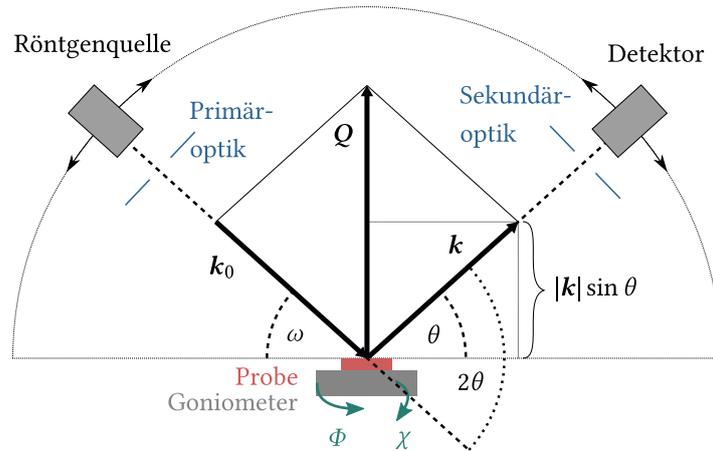


Abbildung 4.3: Schaubild zum Aufbau eines Diffraktometers sowie relevanter Größen. Röntgenquelle und Detektor können sphärisch um die Probe bewegt werden, welche sich meist auf einem Goniometer befindet. Mit Hilfe des Goniometers kann üblicherweise die Probe in alle Raumrichtungen sowie entlang seiner beiden Achsen (χ und Φ) bewegt werden. Das eingestrahlte Röntgenlicht mit Wellenvektor k_0 trifft unter dem Winkel ω auf die Probe auf und verlässt diese als reflektierter Strahl mit Wellenvektor k unter dem Winkel θ . In der hier gezeichneten symmetrischen Messgeometrie ist $\omega = \theta$, wodurch der Streuvektor Q stets senkrecht zur Probenoberfläche steht.

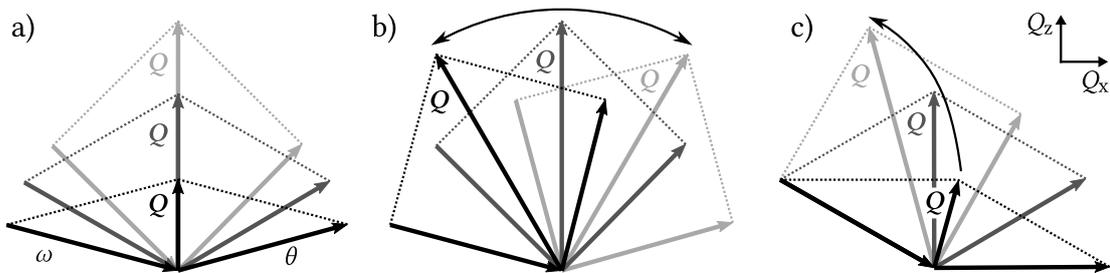


Abbildung 4.4: Schaubild zu unterschiedlichen Messanordnungen bei der Röntgendiffraktion, in Anlehnung an [158]. a) Bei der symmetrischen θ - 2θ -Messung wird ω und θ im gleichen Maß variiert, wodurch Q immer senkrecht zur Probenoberfläche orientiert ist und sich nur dessen Länge ändert ($|Q| = Q_z$). b) Bei der sogenannten *Rocking-Curve* (ω -Scan) ist der Streuvektor auf die Länge eines reziproken Gittervektors fixiert und die Probe wird effektiv gegenüber des einfallenden Röntgenlichts verkippt. c) Bei 2θ -Scans ist der Einfallswinkel ω fixiert und der Streuwinkel θ wird kontinuierlich variiert. Dabei ändert sich sowohl der Betrag, als auch die Richtung des Streuvektors Q .

4 Strukturelle Charakterisierung

Aus geometrischen Überlegungen ergibt sich der allgemeine Zusammenhang für dessen Länge in Abhängigkeit von θ (vgl. Abb. 4.3) zu

$$|Q| = \frac{4\pi}{\lambda} \sin(\theta). \quad (4.9)$$

Gleichzeitig gilt für den Abstand d_{hkl} der Netzebenen (hkl) die Relation

$$d_{hkl} = \frac{2\pi}{|G_{hkl}|}. \quad (4.10)$$

In Kombination dieser beiden Gleichungen und der Laue-Bedingung resultiert die als Bragg-Gleichung bekannte Bedingung für konstruktive Interferenz

$$2d_{hkl} \sin(\theta) = n\lambda, \quad (4.11)$$

mit der natürlichen Zahl n . Im Fall einer kubischen bzw. pseudokubischen Einheitszelle des untersuchten Materials kann auf die entsprechende Gitterkonstante $a_{(pc)}$ geschlossen werden:

$$d_{hkl} = \frac{a_{(pc)}}{\sqrt{h^2 + k^2 + l^2}}. \quad (4.11a)$$

Dabei entsprechen h , k und l den Laue-, bzw. für $n = 1$ den Miller-Indizes. Bei der Röntgenbeugung wird demnach ein Intensitätsmuster in Abhängigkeit der Winkel ω , θ oder 2θ aufgezeichnet. Aus dem Vergleich der Lage der jeweiligen Reflexe mit den Werten aus theoretischen Modellrechnungen können Rückschlüsse zu detektierten Netzebenenabständen und damit zur vorliegenden Kristallorientierung gezogen werden.

Textur

Bei symmetrischen θ - 2θ -Untersuchungen ist die Messung nur auf Netzebenen sensitiv, die parallel zur Probenoberfläche ausgerichtet sind. Bei (001)-orientierten Substraten oder Dünnschichten kann so also nur die c-Achsenorientierung der untersuchten Kristallsysteme überprüft werden. Um Aufschluss über die laterale Orientierung der jeweiligen Einheitszellen oder Kristallkörner in polykristallinen oder texturierten Dünnschichtproben zu erlangen, muss die koplanare Messgeometrie verlassen werden. Durch Neigung der Proben entlang des χ -Winkels (vgl. Abb. 4.3) steht der Streuvektor Q nicht mehr orthogonal zur Filmoberfläche, wodurch eine Sensitivität gegenüber Netzebenen außerhalb der Filmebene gewonnen werden kann. Röntgenröhre sowie Detektor können dabei weiterhin in symmetrischer θ - 2θ -Geometrie zueinander stehen, wobei der Betrag des Wellenvektors meist auf die Länge eines bestimmten rezipro-

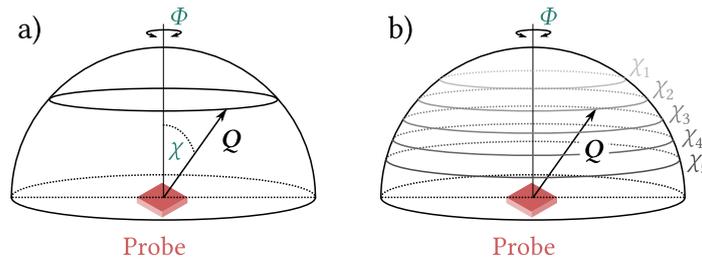


Abbildung 4.5: Schematische Zeichnung zur Untersuchung der Textur einer Probe. a) Durch Verlassen der koplanaren Messgeometrie steht der Streuvektor Q nicht mehr senkrecht zur Probenoberfläche. Die Rotation der Probe um den Φ -Winkel um 360° bei einem definierten χ -Winkel wird als Φ -Scan bezeichnet. b) Mehrere dieser Φ -Scans bei unterschiedlichen χ -Winkeln führt zum Abrastern eines Ausschnitts einer Hemisphäre durch den Streuvektor Q . Mit dieser Methode werden Polfiguren aufgezeichnet.

ken Gittervektors eingestellt wird. Eine Rotation der Probe entlang des Φ -Winkels um 360° wird als Φ -Scan bezeichnet (vgl. Abb. 4.5 a)), mehrere solcher Φ -Scans bei unterschiedlichen χ -Orientierungen erzeugt eine Polfigur (vgl. Abb. 4.5 b)). Dabei rastert der Streuvektor Q einen Ausschnitt einer Halbkugel ab.

Die Daten werden meist in Polarkoordinaten mit χ als Radius und Φ als Azimut-Winkel dargestellt. Für den Fall einkristalliner kubischer Systeme mit einer vierfachen Rotationssymmetrie sind dann genau vier Intensitätsmaxima zu erwarten. Das Vorfinden weiterer Maxima oder sogar eines Intensität-Rings deutet auf unterschiedliche laterale Vorzugsrichtungen bzw. auf polykristallines Wachstum mit komplexer Textur hin.

Reziproke Raumkarten

Weitere Rückschlüsse auf die Kristallstruktur können bei Untersuchungen von sogenannten reziproken Raumkarten (*Reciprocal Space Mapping*, RSM) gezogen werden. Beispiele hierfür sind Informationen über die Neigung der Schichten, Gitterparameter, Mosaizität und möglichen Relaxierungen bzw. mechanische Verspannungen [169]. Dabei wird sowohl die Länge als auch die Orientierung des Streuvektors Q meist in einem definierten Bereich variiert. Hierfür können beispielsweise sogenannte *Rocking-Curves* (vgl. Abb. 4.4 b)) bei unterschiedlichen Absolutbeträgen des Streuvektors, oder sogenannte 2θ -Scans (vgl. Abb. 4.4 c)) bei unterschiedlichen Einstrahlwinkeln ω aufgezeichnet werden.

Der Streuvektor Q ist damit nicht mehr alleinig durch dessen Projektion in Richtung Q_z beschreibbar – im Gegensatz zur symmetrischen θ - 2θ -Messgeometrie aus Abb. 4.4 a) – sondern kann auch eine endliche Projektion in Richtung Q_x aufwei-

sen. Aus geometrischen Überlegungen lassen sich die beiden Projektionen aus den Einstrahlwinkel ω und dem Streuwinkel θ folgendermaßen berechnen:

$$Q_x = -\frac{2\pi}{\lambda} [\cos(2\theta - \omega) - \cos(\omega)], \quad (4.12a)$$

$$Q_z = \frac{2\pi}{\lambda} [\sin(2\theta - \omega) + \sin(\omega)], \quad (4.12b)$$

wobei λ der Wellenlänge der Röntgenstrahlung entspricht¹. Aus der Lage der Reflexe können aus den jeweiligen Projektionen sowohl die mediale Gitterkonstante c , als auch die laterale Gitterkonstante a berechnet werden [169]:

$$a = \frac{\lambda}{2Q_x} \sqrt{h^2 + k^2}, \quad (4.13a)$$

$$c = \frac{\lambda}{2Q_z} l. \quad (4.13b)$$

Dabei repräsentieren h , k und l die Miller'schen Indizes der untersuchten Netzebenen. Aus Untersuchungen in symmetrischer Messgeometrie ($\omega \approx \theta \rightarrow h = k = 0$) kann nur die mediale Gitterkonstante c bestimmt werden – äquivalent zu den θ - 2θ -Messungen².

In Abbildung 4.6 a) ist eine schematische Zeichnung der zweidimensionalen Projektion ($Q_y = 0$) des reziproken Raums dargestellt: Die Positionen der jeweiligen reziproken Gitterpunkte von Film (blau) und Substrat (rot) sind in Anlehnung an die pseudokubischen bzw. kubischen Kristallstrukturen von BaPbO₃ und SrTiO₃ gewählt. Alle in heller Farbe gekennzeichneten Gitterpunkte sind aufgrund unterschiedlicher messtechnischer Einschränkungen wie beispielsweise Totalreflektion oder endliche Wellenlänge der Röntgenstrahlung nicht erreichbar. Aus asymmetrischen Untersuchungen können Informationen zu mechanischen Verspannungen im Kristallgitter gewonnen werden, wie exemplarisch in Abbildung 4.6 a) am Beispiel der (-103) -Netzebenen gezeigt: Im vergrößerten Bereich in Abbildung 4.6 b) befindet sich der Gitterpunkt einmal auf der schwarz-gestrichelten Ursprungsgeraden, die zentral durch den Gitterpunkt des Reflexes verläuft, auf Position 1. Dies beschreibt die Lage eines unverspannten Films [170]. Aufgrund der hier größeren Gitterkonstante des Films liegt dessen reziproker Gitterpunkt näher am Ursprung. Im zweiten Szenario befindet sich der Film-Gitterpunkt direkt unterhalb des Substrat-Gitterpunkts (bei gleichem Q_x -Wert), auf Position 2. Dies beschreibt die Lage eines vollständig verspannten Films, der die laterale Gitterkonstante des Substrats übernommen hat. Aufgrund der Volumenerhaltung der Einheitszelle

¹ Häufig werden die Werte von Q_x und Q_z durch Skalierung der Gitterkonstanten auch in Einheiten von rlu (*Relative Lattice Units*) angegeben. Am verwendeten Diffraktometer werden die Projektionen des Streuvektors auf die Wellenlänge λ der Röntgenröhre bezogen, wobei hier $1 \text{ rlu} = 4\pi/\lambda$ entspricht.

² Durch Angabe der Werte von Q_z in Einheiten von rlu resultiert aus Gleichungen 4.13b und 4.12b die Bragg-Gleichung 4.11.

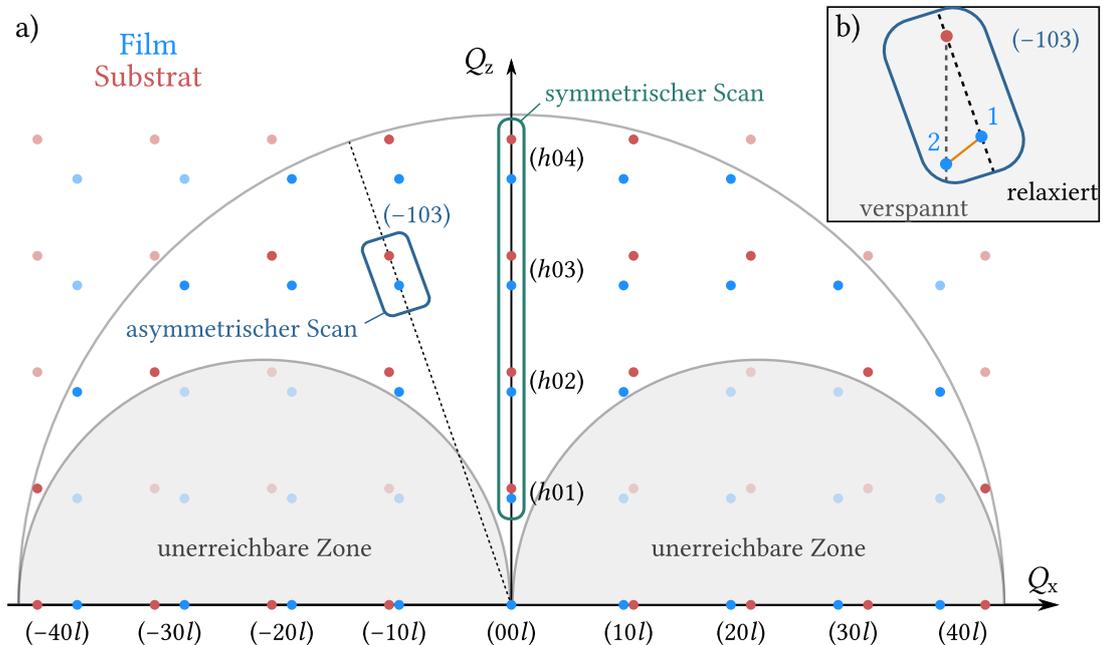


Abbildung 4.6: Schaubild zur Untersuchung reziproker Raumkarten. **a)** Jeder farbige Punkt entspricht einem reziproken Gitterpunkt eines unverspannt angenommenen Kristallgitters eines Filmmaterials (blau) und eines Substratmaterials (rot), in Anlehnung an BaPbO₃ und SrTiO₃. Beide Kristallstrukturen wurden als kubisch bzw. pseudokubisch angenommen. Gezeichnet ist die Projektion bei $Q_y = 0$ bzw. $k = 0$. Alle in heller Farbe eingezeichneten reziproken Gitterpunkte sind messtechnisch nicht zu erreichen. In der symmetrischen Messgeometrie hat der Streuvektor nur eine Q_z -Projektion. Durch Untersuchung anderer Netzebenen weist der Streuvektor \mathbf{Q} auch eine endliche Q_x -Projektion auf, wodurch mit Gleichung 4.13a auch eine Aussage zur lateralen Gitterkonstante getroffen werden kann. **b)** Vergrößerter Ausschnitt mit reziproken Gitterpunkten der (-103) -Netzebenen. Wächst der Film relaxiert auf, so befindet sich der reziproke Gitterpunkt direkt auf der Geraden zwischen Ursprung und reziproken Substrat-Gitterpunkt auf Position 1. Befindet sich der reziproke Gitterpunkt des Films bei gleicher Q_x -Position wie der des Substrats (Position 2), so deutet dies auf eine Übernahme der lateralen Gitterkonstante und somit auf eine tetragonale Verspannung hin. Die orange eingezeichnete Verbindung dieser beiden Positionen wird als Relaxierungslinie bezeichnet und beschreibt mögliche Lagen von teilweise verspannten Film-Reflexen.

führt diese tetragonale Verspannung verglichen zum unverspannten Szenario meist gleichzeitig zu einer Änderung der medialen Gitterkonstante und damit zu einem veränderten Q_z -Wert. Dessen genaue Lage ist unter anderem von elastischen Konstanten des Materials abhängig [158]. Die orange eingezeichnete Verbindungslinie zwischen Position 1 und 2 wird als Relaxierungslinie (*Relaxation Line*) bezeichnet. Reflexe von teilweise verspannten Filmen liegen auf dieser Verbindungslinie [170].

Diese Überlegungen sind nur gültig, wenn der Neigungswinkel zwischen Substrat und Film sowie die Krümmung des Films gering ausfällt. Beides kann die Q_z -Symmetrie auflösen [169]. Üblicherweise werden reziproke Raumkarten als Intensitätskarten dargestellt, wobei auf der Abszisse meist die laterale Projektion Q_x und auf der Ordinate die mediale Projektion Q_z des Streuvektors Q aufgetragen sind (vgl. Abb. 4.18).

Röntgenreflektometrie

Bei der Röntgenreflektometrie (*X-Ray Reflectivity*, XRR) werden Dünnschichtproben durch flach einstrahlende Röntgenstrahlung wieder in symmetrischer θ - 2θ -Geometrie untersucht. Unterhalb eines kritischen Winkels θ_{cr} wird dabei nahezu die gesamte einfallende Strahlung totalreflektiert. Diese Eigenschaft ist durch Betrachtung des wellenlängenabhängigen Brechungsindex zu erklären. Hochenergetische Röntgenstrahlung besitzt in den meisten Medien einen Realteil des Brechungsindex, der kleiner als eins ist: $n_r = 1 - \delta$. Dies führt zur sogenannten anomalen Dispersion, bei der der eindringende Strahl hin zur Probenoberfläche gebrochen wird [166]. Unterhalb des kritischen Winkels $\theta_{cr} \approx \sqrt{2\delta}$ (angegeben in Bogenmaß) kann dieser – bis auf einige Nanometer – nicht mehr in das Medium eindringen und wird komplett reflektiert. Oberhalb des kritischen Winkels fällt die detektierte Intensität um mehrere Größenordnungen ab (Porod-Abfall) [158]. In diesem Bereich können bei Untersuchungen von Monolagen oder Heterostrukturen unter bestimmten Umständen Oszillationen beobachtet werden (vgl. Abb. 4.12). Aufgrund unterschiedlicher optischer Konstanten des Substrats und der einzelnen Schichten werden an jeder Grenz- sowie der Oberfläche Teile des Röntgenlichts reflektiert und können anschließend miteinander interferieren [171], wobei die Interferenz von der jeweiligen Schichtdicke t_n der entsprechenden Schichten abhängig ist. Diese nach dessen Entdecker benannten Kiessig-Oszillationen [172] ermöglichen Rückschlüsse auf die einzelnen Schichtdicken sowie deren Rauigkeiten.

Im einfachsten Fall einer Monolage mit Schichtdicke t entstehen Intensitätsmaxima, wenn die Laufwegdifferenz Δs zwischen der an der Film- und Substratoberfläche gebeugten Strahlung ein ganzzahliges Vielfaches m deren Wellenlänge λ entspricht:

$\Delta s = m\lambda$. Aus geometrischen Überlegungen ergibt sich für die Position θ_m des m -ten Intensitätsmaximums die folgende Beziehung [171]:

$$\sin^2(\theta_m) = \left(\frac{\lambda}{2t}\right)^2 m^2 + \theta_{\text{cr}}^2. \quad (4.14)$$

Die Schichtdicke t kann somit durch Auftragen von $\sin^2(\theta_m)$ gegen das Quadrat der Beugungsordnung (m^2) durch Ermittlung der linearen Steigung extrahiert werden (vgl. Abb. 4.12). Für den Abstand zweier benachbarter Intensitätsmaxima bei signifikant größeren Winkeln als θ_{cr} gilt die Relation [158]

$$\theta_{m+1} - \theta_m \approx \frac{\lambda}{2t}, \quad (4.15)$$

woraus sich ebenfalls die Schichtdicke t extrahieren lässt.

Der gesamte Verlauf von Reflektogrammen kann basierend auf den Fresnel'schen Gleichungen quantitativ beschrieben werden. Eine technische Umsetzung ist dabei die rekursive Parratt-Methode [173–175], die eine Anpassung an die Reflektometriedaten mittels Parametern beschreibt, die Aussagen zu Schichtdicken und Grenzflächenrauigkeiten ermöglichen. So können auch komplexe Dünnschichtsysteme wie beispielsweise Heterostrukturen numerisch analysiert werden.

Das verwendete Diffraktometer

Zur Aufnahme der Daten steht ein Röntgendiffraktometer (*Empyrean*) der Firma *Malvern Panalytical* zur Verfügung. Die Röntgenstrahlung wird beim Abbremsen beschleunigter Elektronen auf einer Kupfer-Anode erzeugt. Die größte Intensität hat dabei die K_α -Strahlung, welche mit einer Wellenlänge von $\lambda_{\text{Cu-K}\alpha} = 1,5405 \text{ \AA}$ zur Untersuchung der Dünnschichtproben verwendet wird. Der schematische Aufbau des Diffraktometers ist in Abbildung 4.7 gezeigt. Die Probe befindet sich dabei auf einem 5-Achsen-Probenstisch (Euler-Wiege), der eine Bewegung in x , y und z sowie um die eingezeichneten Winkel χ sowie Φ ermöglicht. Die ausgesandte sowie reflektierte Röntgenstrahlung kann durch unterschiedliche Primäroptiken und Schlitzmasken unmittelbar nach der Röntgenröhre sowie direkt vor dem Detektor (Sekundäroptik) gefiltert und die Messauflösung beeinflusst werden. Die Kombination der Optiken und Schlitzmasken ist spezifisch für die jeweilige Art der Messung. Der Röntgendetektor ist ein 2D-CCD-Halbleiterdetektor (PIXcel^{3D}) bestehend aus 256×256 Pixeln. Er kann in unterschiedlichen Modi betrieben werden: Im 0D-Modus wird das Signal über eine einstellbare Anzahl von Pixeln aufsummiert, im 1D-Modus wird das Signal reihenweise

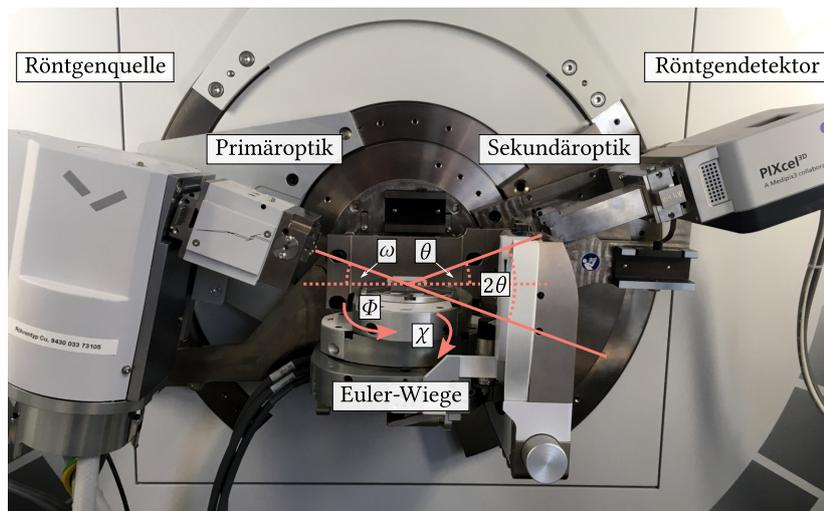


Abbildung 4.7: Fotografie der Messgeometrie des in dieser Arbeit verwendeten Röntgendiffraktometers (Bildausschnitt etwa 60 cm groß). Mithilfe eines 5-Achsen-Probentisches (Euler-Wiege) lässt sich die Probe exakt auf eine vorzugebende Position, beschrieben durch $(x, y, z, \Phi$ und $\chi)$, stellen. Das einfallende sowie reflektierte Röntgenlicht kann durch verschiedene Primär- bzw. Sekundäroptiken für das entsprechende Messverfahren optimiert werden.

über eine Anzahl von Pixeln aufsummiert und im 2D-Modus stellt jeder ausgewählte Pixel einen eigenen Messkanal dar.

Jeder Untersuchung geht eine Justage der Probe auf dem Probentisch in Relation zum Röntgenstrahl voraus. Die Parameter x, y sowie χ können kameragestützt eingestellt werden. Die Höhe z sowie weitere Feineinstellungen werden über eine zuvor programmierte automatische Höhenjustage des Geräts optimiert. Dabei wird die Probe definiert in den Röntgenstrahl gebracht, bis die im Detektor registrierte Strahlung auf die halbe Intensität fällt. Anschließend wird die Probe innerhalb des Strahlengangs so lange gekippt, bis die Intensität wiederum ein Maximum erreicht. So kann gewährleistet werden, dass die Probe bzw. Probenoberfläche parallel zur Systemebene des Diffraktometers ausgerichtet ist.

4.2 Ergebnisse der Charakterisierung

4.2.1 Oberflächentopographie

In den folgenden Abschnitten beschreibe ich zunächst die Qualität der präparierten Substratoberflächen, die maßgeblich für die Beschaffenheit der Grenzfläche zum Film entscheidend ist. Im weiteren Verlauf wird die Topographie der gewachsenen Filmoberflächen analysiert.

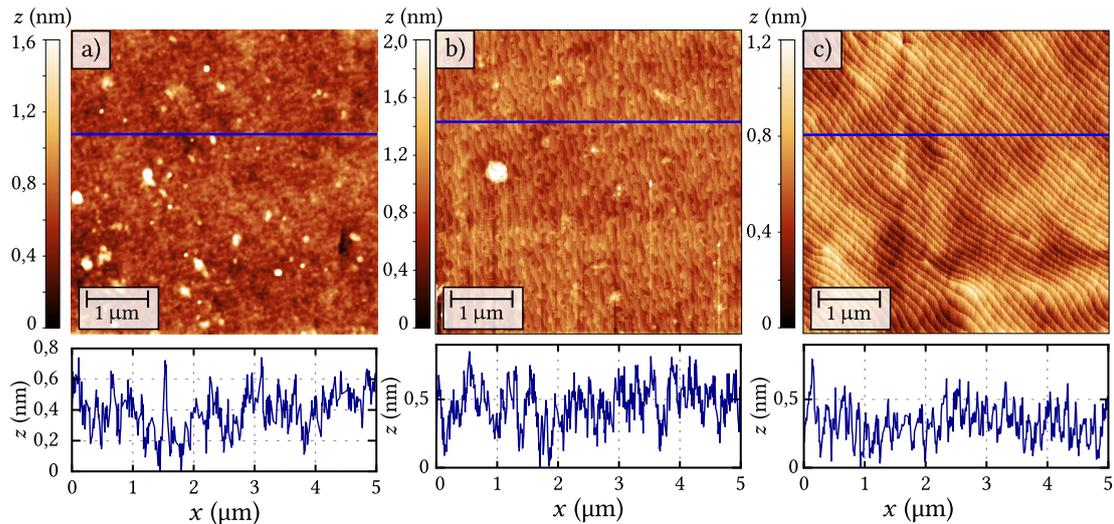


Abbildung 4.8: Nivellierte AFM-Aufnahmen der Topographie von SrTiO_3 -Substratoberflächen nach unterschiedlichen Präparationsschritten. Gezeigt ist die Topographie der Oberfläche **a)** nach mechanisch-chemischer Reinigung (RMSR = 211,2 pm), **b)** nachdem das Substrats aus a) für einige Minuten einem Ausheizprozess bei nominell 800 °C bei einem definierten Sauerstoffhintergrunddruck von 1,1 mbar ausgesetzt wurde (RMSR = 193,0 pm) sowie **c)** eines Substrats, welches für etwa 30 Sekunden in einer 13%igen gepufferten Flußsäurelösung behandelt und anschließend für etwa 7 Stunden unter reiner Sauerstoffatmosphäre bei etwa 950 °C ausgeheizt wurde (RMSR = 162,2 pm). In den Abbildungen **b)** und **c)** sind Stufen zu erkennen, verursacht durch den Fehlwinkel beim Schneiden der Substrate. Die jeweils unter den AFM-Aufnahmen gezeigten nivellierten Höhenprofile gehören zu den in den AFM-Aufnahmen gezeigten blauen Linien. Die Sprünge haben eine Höhe von etwa 0,4 nm und entsprechen damit etwa der nominellen Höhe einer SrTiO_3 -Einheitszelle.

Topographie der Substrate

In Abbildung 4.8 sind typische nivellierte AFM-Aufnahmen von Topographien der Oberflächen von SrTiO_3 -Substraten nach Durchlaufen der unterschiedlichen Prozessschritten zur Oberflächenpräparation abgebildet. Die ermittelten Oberflächenrauigkeiten betragen: **a)** nach der chemisch-mechanischen Reinigung RMSR = 211,2 pm, **b)** nach dem zusätzlichen Ausheizen RMSR = 193,0 pm und **c)** nach der Behandlung mit gepufferter Flußsäure RMSR = 162,2 pm. Damit zeigt die TiO_2 -terminierte Oberfläche, an der sich auch die typischen TiO_2 -Stufen beobachten lassen, die wenigsten Defekte. Die Stufen sind allerdings auch bei den ausgeheizten Substraten sichtbar. Die extrahierten Höhenprofile der nivellierten Oberflächentopographien deuten auf wohldefinierte Substratoberflächen hin. Im Rahmen dieser Doktorarbeit werden überwiegend mechanisch-chemisch behandelte Substrate verwendet, die vor der eigentlichen Dünnschichtdeposition ausgeheizt werden, da die Filmeigenschaften denen von auf HF-terminierten Substraten weitgehend gleichen [D1].

4 Strukturelle Charakterisierung

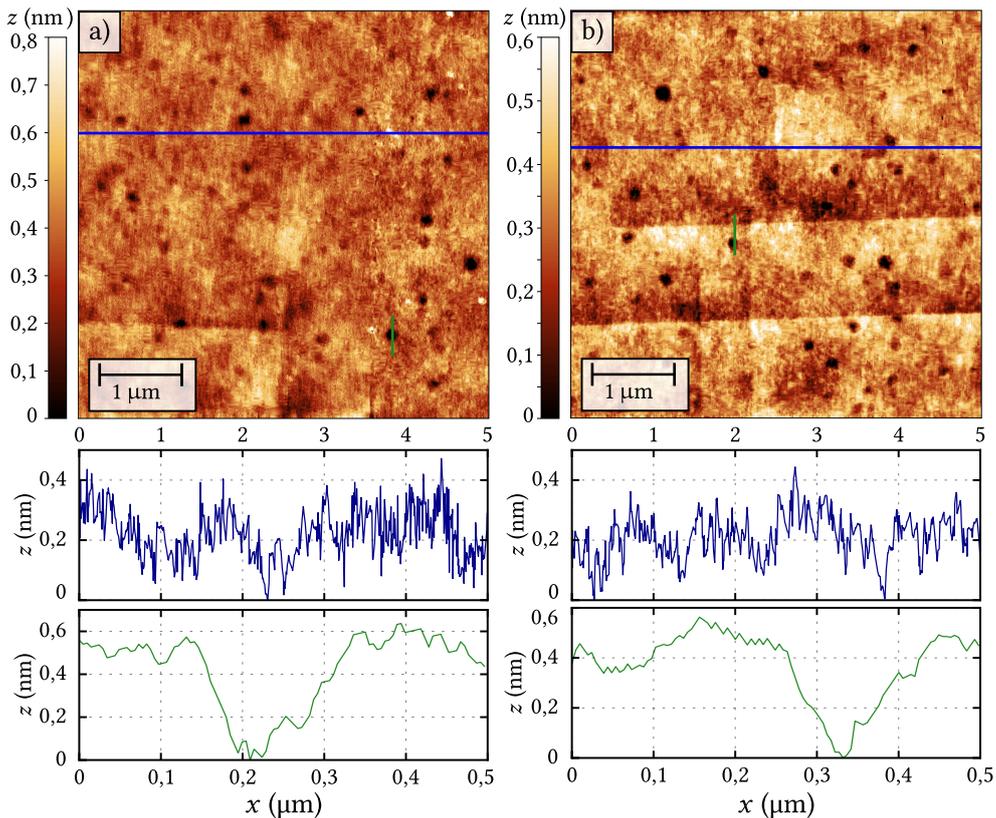


Abbildung 4.9: Nivellierte AFM-Aufnahmen der Topographien von MgO-Substratoberflächen nach unterschiedlichen Präparationsschritten. a) Aufnahme eines typischen Substrats, nachdem dieses chemisch-mechanisch gereinigt (RMSR = 93,4 pm), und b) nachdem das gleiche Substrat für einige Minuten bei 800 °C und 1,1 mbar Sauerstoffhintergrunddruck ausgeheizt wurde (RMSR = 93,6 pm). In beiden Fällen sind statistisch, teilweise auch entlang einer kristallographischen Orientierung verteilte Löcher vorzufinden. Anhand der extrahierten Höhenprofile der nivellierten Daten (entsprechende Farbkodierung) kann deren Tiefe zu 0,4 nm bis 0,6 nm bestimmt werden. Dies entspricht etwa dem ein- bis eineinhalbfachen der Höhe der MgO-Einheitszelle. Die sichtbaren „Kerben“ weisen eine maximale Tiefe von etwa 0,2 nm bis 0,4 nm vor.

Da mir für MgO-Substrate kein Terminierungsprozess bekannt ist und das Ausheizen der SrTiO₃-Substrate unter einer kontrollierten Sauerstoffatmosphäre zu definierten Substratoberflächen führt, habe ich alle MgO-Substrate in dieser Doktorarbeit ebenfalls mechanisch-chemisch gereinigt und vor der Dünnschichtsynthese ausgeheizt. Dies führt ebenfalls zu definierten Substratoberflächen (s. Abb. 4.9): Zwar kann dadurch lokal keine weitere Minimierung des RMSR-Werts erreicht werden, das zusätzliche Ausheizen führt aber auf großer Skala zur Vermeidung von Adsorbaten. Nach beiden Präparationsschritten sind auf den nivellierten AFM-Aufnahmen statistisch verteilte Löcher zu sehen, deren Tiefe bis zu etwa 0,6 nm betragen. Diese zeigen eine radialsymmetrische Ausdehnung mit einem Durchmesser von maximal 100 nm. Zudem sind entlang einer kristallographischen Orientierung „Kerben“ mit einer Tiefe von

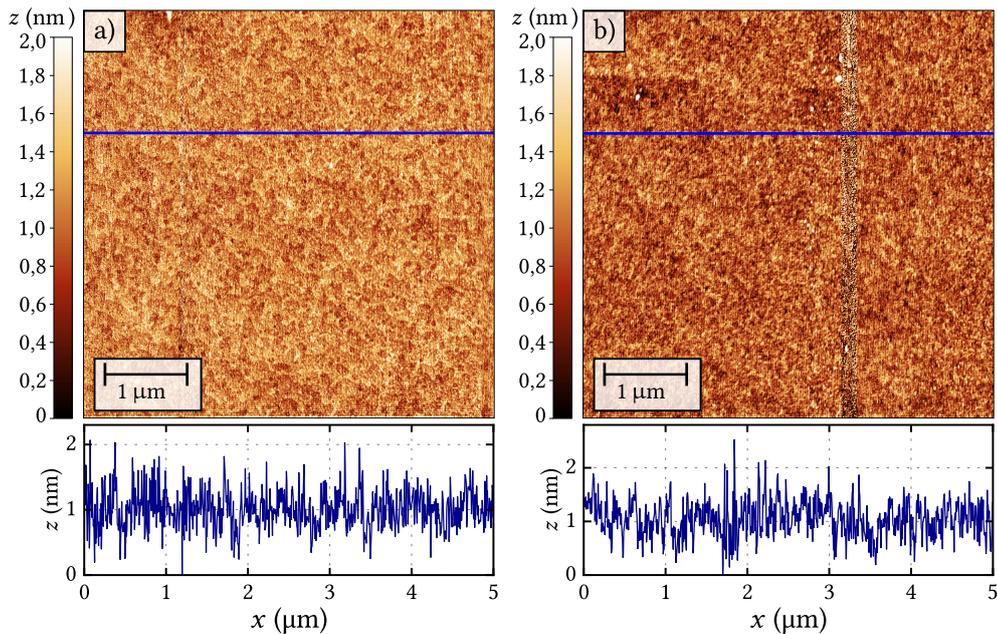


Abbildung 4.10: Nivellierte AFM-Aufnahmen der Topographie der Oberfläche und daraus extrahierte Höhenprofile **a)** einer 11,3-nm-dicken ($RMSR = 287,6 \text{ pm}$) und **b)** einer 24,4-nm-dicken ($RMSR = 310,3 \text{ pm}$) $BaPbO_3$ -Monolagen, gewachsen auf ausgeheizten $SrTiO_3$ -Substraten. Die Filme wachsen flächig auf den Substraten auf. Die angegebenen Oberflächenrauigkeiten wurden in Bereichen ermittelt, welche keine augenscheinlichen Messartefakte aufweisen.

etwa einer halben Einheitszelle erkennbar, die auf eine mögliche Verzwilligung der Substrate schließen lassen. Die extrahierten Höhenprofile der nivellierten Oberflächentopographien bestätigen, dass Oberflächen von MgO -Substraten ähnlich präzise definiert werden können wie diejenigen von $SrTiO_3$ -Substraten.

Topographie der Dünnschichtproben

In den Abbildungen 4.10 und 4.11 sind nivellierte AFM-Aufnahmen der Topographie der Oberflächen unterschiedlich dicker $BaPbO_3$ -Dünnschichten mitsamt extrahierten Höhenprofilen dargestellt, die sowohl auf ausgeheizten $SrTiO_3$ - sowie MgO -Substraten gewachsen wurden. Die Topographien passen zu flächig aufgewachsenen Filmen, wobei die RMSR-Werte mit zunehmender Schichtdicke tendenziell ansteigen. Die Oberflächenrauigkeit der Dünnschichtproben auf MgO -Substraten steigt im Vergleich des dünnsten ($t = 6,3 \text{ nm}$) zum dicksten ($t = 54 \text{ nm}$) vermessenen Films um den Faktor zehn auf einen Wert von $RMSR = 1,23 \text{ nm}$ an (vgl. Abb. 4.11).

Insgesamt bewegt sich der jeweils ermittelte RMSR-Wert bezogen auf die entsprechende $BaPbO_3$ -Schichtdicke bei allen untersuchten Proben in einem Bereich von 1 % bis 3 %. Die maximalen Höhendifferenzen der nivellierten Daten liegen zwischen 7 % bis 26 % der Schichtdicke und unterliegen dabei statistischen Schwankungen.

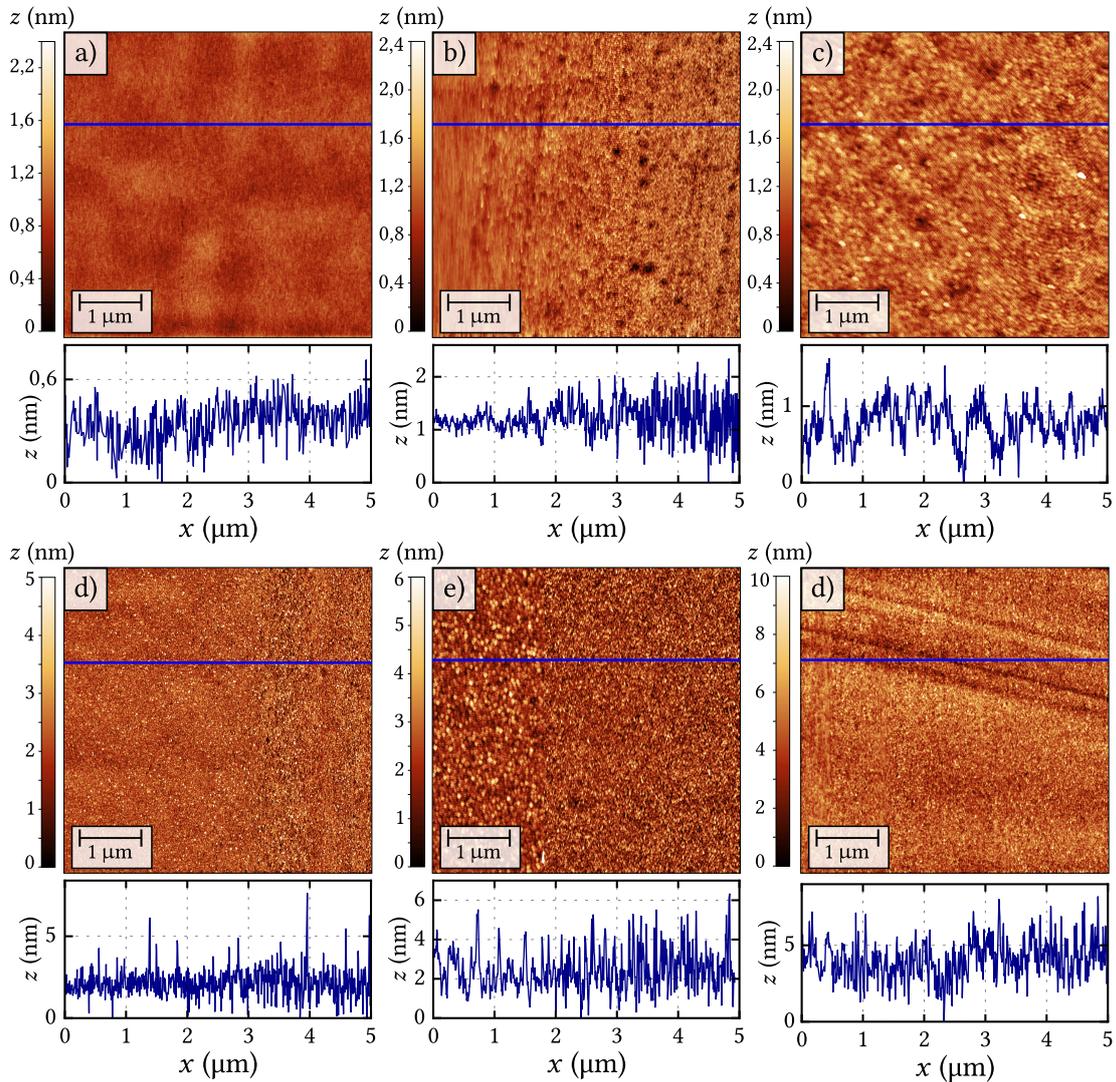


Abbildung 4.11: Nivellierte AFM-Aufnahmen der Topographie der Oberflächen sowie daraus extrahierte Höhenprofile verschieden dicker BaPbO₃-Monolagen, gewachsen auf ausgeheizten MgO-Substraten. Die jeweilige BaPbO₃-Schichtdicke sowie der bestimmte RMSR-Wert beträgt jeweils: a) 6,3 nm (RMSR = 124,8 pm), b) 12,2 nm (RMSR = 295,5 pm), c) 21,1 nm (RMSR = 270,5 pm), d) 29,2 nm (RMSR = 786,6 pm), e) 32,9 nm (RMSR = 941,3 pm) und f) 54 nm (RMSR = 1,23 nm). Damit steigen tendenziell mit zunehmender Schichtdicke auch die Werte für die Oberflächenrauigkeit. Einzig die Werte in Teilbild b) bzw. c) weichen von dem allgemeinen Trend ab. Die mit 54 nm dickste Probe zeigt Rillen mit einer maximalen Tiefe von etwa 4 nm auf. Insgesamt liegt die Oberflächenrauigkeit bei allen Proben bei etwa 1 % bis 3 % der Schichtdicke.

4.2.2 Analysen der Kristallstruktur

Standardmäßig werden im Rahmen dieser Doktorarbeit an den Proben zunächst Kleinwinkelmessungen (XRR) zur Untersuchung der Schichtdicke sowie der Oberflächenbeschaffenheit durchgeführt. Die c-Achsen-orientierte Phasenreinheit der gewachsenen Dünnschichtproben wird anschließend über θ - 2θ -Messungen geprüft. Vereinzelt werden die Texturen der gewachsenen Dünnschichten mittels Φ -Scans oder Polfiguren ermittelt. Durch Aufnahme von reziproken Raumkarten wird zuletzt noch – ebenfalls stichprobenartig – auf Verspannungen im Kristall geprüft.

Röntgenreflektometrie

Reflektogramme werden in einem Winkelbereich von $\theta = 0,05^\circ$ bis maximal etwa 3° aufgezeichnet. Hierfür wird als Primäroptik ein gebogener Hohlspiegel verwendet, der die K_α -Strahlung der Kupferröhre parallelisiert (*Parallel Beam Mirror*). Durch einen zusätzlichen 004-RAD-Kollimator werden nicht parallele Anteile der emittierten Strahlung unterdrückt. Lateral sowie medial wird diese Strahlung zusätzlich durch eine $1/8^\circ$ - beziehungsweise $1/32^\circ$ -Blende und eine 2-mm-Schlitz-Maske eingeschränkt. Der 1,4-mm-Anti-Streu-Schlitz komplementiert den primärseitigen Aufbau der Messanordnung. Der Röntgendetektor wird mit drei offenen horizontalen Pixelreihen auf eine räumliche Ausdehnung von 0,165 mm begrenzt und im 0D-Modus betrieben. Diesem vorangestellt ist ebenfalls ein 004-RAD-Kollimator sowie eine $1/16^\circ$ -Anti-Streu-Maske.

Exemplarisch sind in Abbildung 4.12 Reflektogramme unterschiedlich dicker BaPbO_3 -Dünnschichten dargestellt, die jeweils auf MgO-Substraten aufgewachsen wurden: Sowohl die Hübe als auch der Winkelabstand der mit Pfeilen markierten Intensitätsmaxima nimmt mit zunehmender Schichtdicke ab. Über Gauß-Fits kann die Lage θ_m der Reflexpositionen ermittelt werden. In den innenliegenden Abbildungen ist $\sin^2(\theta_m)$ gegen m^2 aufgetragen, aus der Steigung der linearen Ausgleichsgeraden kann mit Gleichung 4.14 die jeweilige Schichtdicke bestimmt werden. Mit zunehmender Schichtdicke erweist sich diese Auswertemethode als unzuverlässig, da die passende Wahl der Beugungsordnung m nicht mehr eindeutig zugeordnet werden kann. Im Fall der in Abbildung 4.12 d) gezeigten Daten wird aufgrund späterer Ergebnisse dem ersten detektierten Maximum die Beugungsordnung von $m = 6$ zugeordnet, womit sich die Schichtdicke zu $t = 53,4$ nm ergibt. Für $m = 5$ würde eine Schichtdicke von $t = 49,9$ nm resultieren, für $m = 7$ dagegen $t = 56,6$ nm. Aus dem Winkelabstand zweier benachbarter Intensitätsmaxima kann mit Gleichung 4.15 die Schichtdicke dagegen zu $t = (57,8 \pm 1,7)$ nm bestimmt werden.

Eine unabhängige Analyse der Reflektogramme gelingt über die Software *X'Pert Reflectivity* [176], welche im Kern auf der Parrat-Methode basiert. Exemplarische Ergeb-

4 Strukturelle Charakterisierung

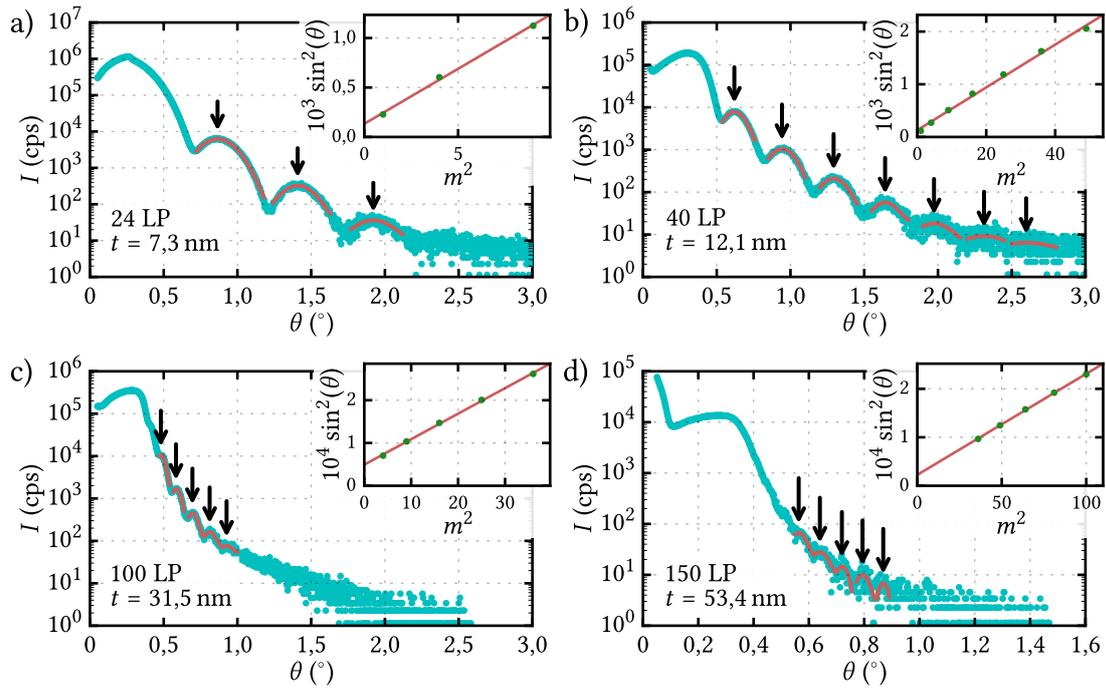


Abbildung 4.12: XRR-Messungen zur Schichtdickenbestimmung von BaPbO₃-Dünnschichten. Die Proben unterscheiden sich in der Anzahl der verwendeten Laserpulse (LP) während der Probensynthese. Die Abbildungen zeigen Reflektogramme von BaPbO₃-Dünnschichtproben, die mit a) 24 LP, b) 40 LP, c) 100 LP und d) 150 LP auf MgO-Substraten aufgewachsen wurden. In blau sind jeweils die gemessenen Intensitäten in Zählungen pro Sekunde (*Counts per Second*, cps) logarithmisch gegen den Einfallswinkel θ der Röntgenstrahlung aufgetragen. Deutlich zu erkennen ist der Porod-Abfall sowie die Oszillationen bei Winkeln größer θ_{cr} , unterhalb dessen das einfallende Signal totalreflektiert wird. Die Lage θ_m der Maxima wird jeweils mit Gauß-Fits (rot) bestimmt. Durch entsprechende Auftragung (innenliegende Abbildungen) kann mit Gleichung 4.14 die Schichtdicke bestimmt werden. Mit zunehmender Schichtdicke a) \rightarrow b) liegen die Maxima in den Reflektogrammen näher zusammen und deren Hübe werden kleiner.

nisse dieser Auswertemethode sind in den Abbildungen 4.13 a) und 4.13 b) dargestellt. Diese Anpassungen (Fits) bilden die Messdaten sehr gut ab, wobei die resultierenden Schichtdicken in etwa den Ergebnissen der vorher dargestellten Messmethoden entsprechen.

Alle folgenden Angaben zu Schichtdicken basieren auf der vollständigen Analyse der Reflektogramme. Bei der Auftragung der Schichtdicke gegen die Anzahl von Laserpulsen (LP) ergibt sich annähernd eine Gerade (vgl. Abb. 4.13 c)). Dabei wurde der Ursprung als legitimer Fixpunkt in die Auswertung mit aufgenommen. Die Steigung entspricht der Wachstumsrate. Mit Werten von $(0,35 \pm 0,04)$ nm LP⁻¹ bzw. $(0,34 \pm 0,03)$ nm LP⁻¹ wächst pro Laserpuls etwa 80 % einer BaPbO₃-Einheitszelle auf den entsprechenden MgO- bzw. SrTiO₃-Substraten auf.

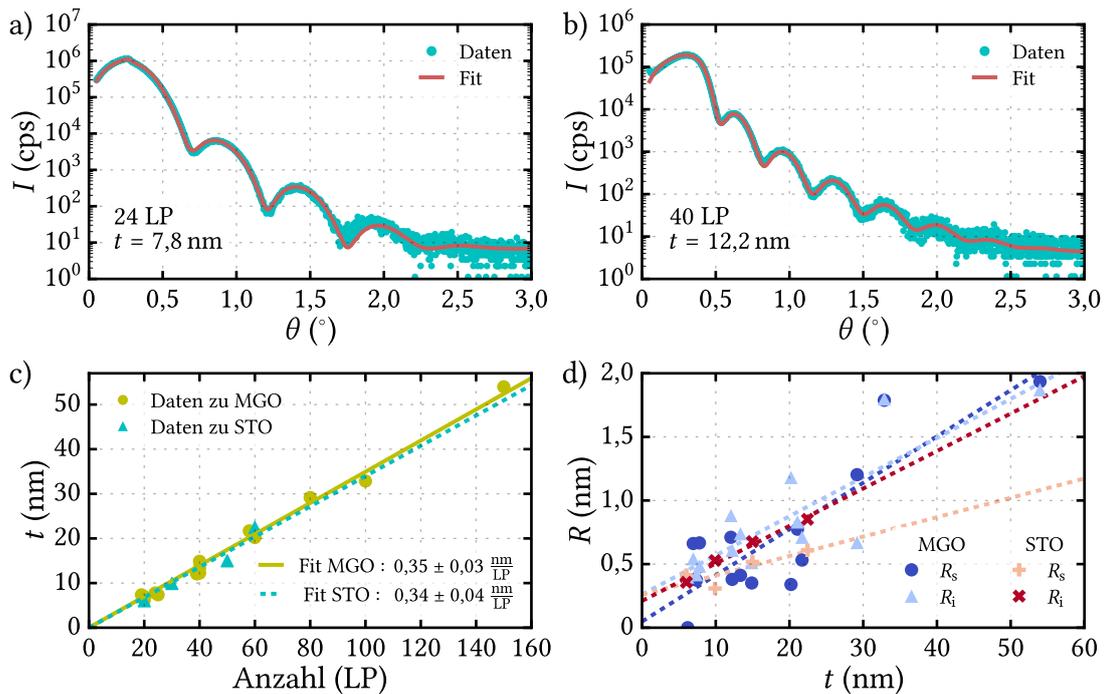


Abbildung 4.13: XRR-Messungen mit Ergebnissen der softwaregestützten Schichtdickenbestimmung. a) und b) zeigen das Ergebnis der Anpassungen zweier unterschiedlich dicker BaPbO₃-Monolagen. Aus dieser Auswertung können jeweils angegebene Schichtdicken t sowie weitere Parameter extrahiert werden. c) Bestimmung der BaPbO₃-Wachstumsrate durch Auftragung der Schichtdicken verschiedener Monolagen gegen die Anzahl geschossener Laserpulse (LP) während der Filmsynthese mittels PLD auf MgO-Substraten (MGO) bzw. SrTiO₃-Substraten (STO). Die Steigung der eingezeichneten Ursprungsgeraden entspricht der Wachstumsrate mit entsprechenden Werten von $0,35 \text{ nm LP}^{-1}$ bzw. $0,34 \text{ nm LP}^{-1}$ für das Filmwachstum von BaPbO₃ auf MgO- bzw. SrTiO₃-Substraten. Dies entspricht etwa einem Aufwachsen von 80 % einer Einheitszelle pro Laserpuls. d) Aus XRR-Analysen ermittelte Grenz- bzw. Oberflächenrauigkeiten (R_i bzw. R_s) in Abhängigkeit der Schichtdicke. Die Trendlinien deuten zunehmende Rauigkeitswerte mit wachsender Schichtdicke an.

Neben der Schichtdicke gibt die vollständige Analyse der Reflektogramme unter anderem Rückschlüsse zu Grenz- sowie Oberflächenrauigkeiten. Beide Werte steigen tendenziell mit zunehmender Schichtdicke an (vgl. Abb. 4.13 d)).

Röntgenbeugung

Die c -Achsen-orientierte Phasenreinheit der gewachsenen Dünnschichtproben wird mittels θ - 2θ -Messungen in einem Winkelbereich von $2\theta = 5^\circ$ bis maximal 120° geprüft. Als Primäroptik wird ein $2 \times \text{Ge}(220)$ -Hybridmonochromator verwendet, welcher die Cu-K $_{\alpha}$ -Strahlung fokussiert und charakteristische Strahlung höherer Ordnung unterdrückt. Die laterale Ausdehnung des emittierten Strahls wird über eine 5-mm-Schlitz-Maske eingeschränkt, die Divergenz über eine $1/8^\circ$ - oder $1/32^\circ$ -Blende begrenzt. Der Röntgen-

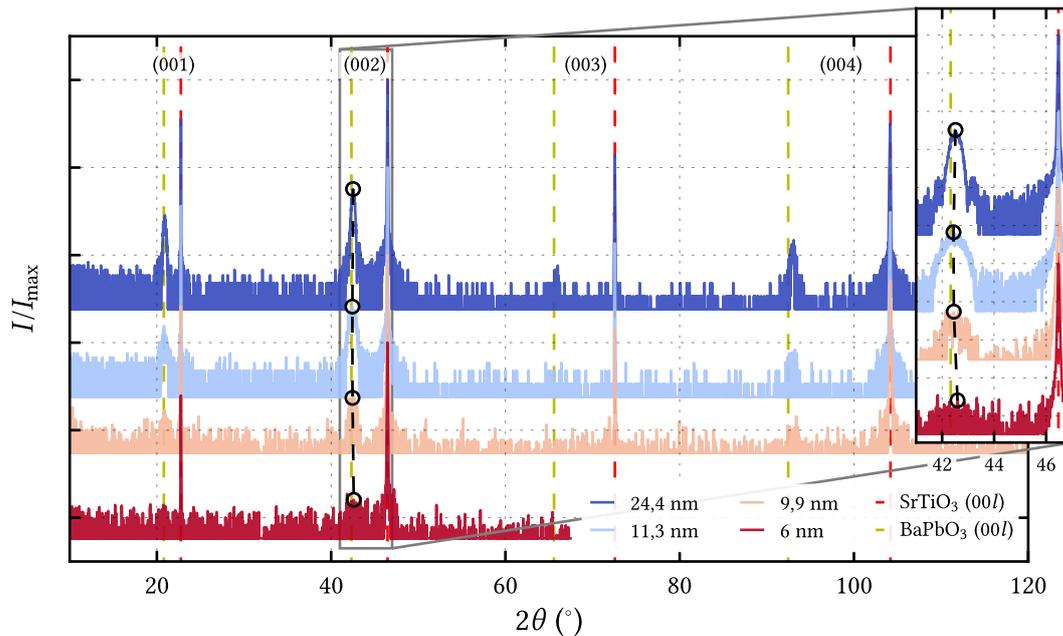


Abbildung 4.14: *Diffraktogramme unterschiedlich dicker BaPbO₃-Dünnschichten auf SrTiO₃-Substraten.* Die Daten wurden jeweils auf das Maximum des SrTiO₃-(002)-Reflexes normiert sowie einjustiert und gegeneinander auf der Ordinate verschoben. Rot bzw. grün gestrichelte Linien indizieren erwartete Reflex-Positionen der (00 l)-Netzebenen von Substrat (mit $a_{pc, STO} = 3,905 \text{ \AA}$) und Film (mit $a_{pc, BPO} = 4,267 \text{ \AA}$). In den Diffraktogrammen sind keine weiteren Intensitätsmaxima vorzufinden, sodass ein phasenreines c-Achsen-orientiertes Wachstum angenommen werden darf. Während die SrTiO₃-(00 l)-Reflexe bei genau den erwarteten Winkeln liegen, sind die der BaPbO₃-(00 l)-Reflexe leicht zu größeren Winkeln verschoben. Dies wird im vergrößerten Bereich verdeutlicht, wobei die jeweils über Gauß-Fits bestimmte Lage der Maxima der BaPbO₃-(002)-Reflexe mit schwarzen Kreisen markiert und als Orientierungshilfe für das Auge mit einer gestrichelten Linie verbunden sind. Je dünner der Film ist, desto schwächer sind die jeweiligen Film-Reflexe ausgebildet, so dass die Bestimmung deren Lagen mit einer Unsicherheit behaftet ist.

detektor wird im 1D-Modus mit allen verfügbaren Kanälen betrieben und ermöglicht somit eine schnelle und gleichzeitig präzise Messung. Durch eine 7.5-P-Anti-Streublende sowie einem 004-RAD-Kollimator wird der gebeugte Strahl vor dem Detektor eingeschränkt und alle nicht parallel eintreffenden Teilstrahlen ausgeblendet. Vor jeder Messung findet eine halbautomatische Justage der Probe auf der Euler-Wiege statt. Zudem werden Röntgenquelle sowie Detektor auf den Reflex der (002)-Netzebenen des Substrats eingestellt.

Typischerweise werden die gemessenen Intensitäten logarithmisch gegen den 2θ -Winkel aufgetragen. In den Abbildungen 4.14 sowie 4.15 sind die Intensitäten zusätzlich auf ihr Maximum normiert und zur besseren Unterscheidung gegenseitig in Richtung höherer Intensitäten verschoben. Dargestellt sind die Diffraktogramme unterschiedlich dicker BaPbO₃-Dünnschichten auf den entsprechenden Substratmaterialien SrTiO₃

und MgO. Da (001)-orientierte Substrate verwendet werden, sind in den Intensitätsmustern nur Reflexe der (00*l*)-Netzebenen des Substrats sowie im Falle epitaktischen Wachstums bei Angleichen der kristallographischen Achsen nur Reflexe der (00*l*)-Netzebenen der BaPbO₃-Dünnschichten zu erwarten, wobei *l* für den Miller'schen-Index steht. Die Abwesenheit weiterer Reflexe kann als Zeichen für phasenreines Wachstum ohne Fremdphasen entlang der *c*-Achse interpretiert werden.

Zunächst sollen die auf SrTiO₃-Substraten gewachsenen Dünnschichten genauer betrachtet werden (vgl. Abb. 4.14): In keiner der untersuchten Dünnschichtproben sind Anzeichen einer Fremdphase vorzufinden. Die Reflexe des Substrats liegen aufgrund des Einmessens genau bei den erwarteten Winkeln. Die Lage der BaPbO₃-Reflexe ist dagegen leicht in Richtung größerer 2θ -Winkel verschoben, was aufgrund der Bragg-Gleichung (Gl. 4.11) auf eine kleinere mediale Gitterkonstante hindeutet.

Die Gitterkonstanten können aus der Lage der (00*l*)-Reflex-Positionen für BaPbO₃ mit der Bragg-Gleichung (Gl. 4.11) direkt berechnet werden. Da diese Methode allerdings von der anfänglichen Justage der Röntgenröhre und des Detektors und damit von der nominellen Gitterkonstante des Substrats abhängig ist, wird hier die Gitterkonstante vom Film und Substrat aus der Differenz der Reflex-Positionen zweier unterschiedlicher Netzebenen zueinander rekursiv genähert:

$$\begin{aligned}\theta_2 - \theta_1 &= \arcsin\left(\frac{\lambda\sqrt{h_2^2 + k_2^2 + l_2^2}}{2a_{pc}}\right) - \arcsin\left(\frac{\lambda\sqrt{h_1^2 + k_1^2 + l_1^2}}{2a_{pc}}\right) \\ &= \arcsin\left(\frac{\lambda l_2}{2a_{pc}}\right) - \arcsin\left(\frac{\lambda l_1}{2a_{pc}}\right), \quad \text{wenn } h = k = 0.\end{aligned}\tag{4.16}$$

Die Indizes 2 und 1 repräsentieren dabei zwei unterschiedliche Netzebenen. Indem die Reflex-Positionen der (001)-, (002)-, (003)- und (004)-Netzebenen des SrTiO₃ bzw. die der (001)-, (002)- und (004)-Netzebenen des BaPbO₃ über Gauß-Fits bestimmt und jeweils zueinander in Relation gesetzt werden, kann die mediale Gitterkonstante *c* für SrTiO₃ durch sechs und die für BaPbO₃ durch drei unterschiedliche Kombinationen berechnet werden. Hieraus ergeben sich die in Tabelle 4.1 angegebenen Werte mitsamt deren Standardabweichung. Die resultierende mittlere Gitterkonstante für SrTiO₃ bestätigt innerhalb der Messgenauigkeit den Raumtemperatur-Literaturwert von 3,905 Å. Dagegen weichen die ermittelten Gitterkonstanten des BaPbO₃ vom Raumtemperatur-Literaturwert ab, was möglicherweise auf eine verspannte Epitaxie hindeutet, aber auch beispielsweise mit einem Neigungswinkel des Films gegenüber dem Substrat oder einer nominell kleineren Einheitszelle zu erklären ist. Es zeigt sich kein schichtdickenabhängiger Trend.

Schichtdicke (nm)	c_{STO} (Å)	c_{BPO} (Å)
9,9	$3,9048 \pm 0,0001$	$4,242 \pm 0,002$
11,3	$3,9063 \pm 0,0001$	$4,251 \pm 0,005$
22,4	$3,9047 \pm 0,0003$	$4,255 \pm 0,001$
24,4	$3,9063 \pm 0,0002$	$4,250 \pm 0,001$
Mittelwert	$3,9055 \pm 0,0009$	—
Literaturwert	3,905	4,267

Tabelle 4.1: Aus XRD-Daten berechnete mediale Gitterkonstanten c für BaPbO_3 -Dünnschichten auf SrTiO_3 -Substraten. Aus der Differenz der über Gauß-Fits bestimmten Reflex-Positionen kann mit Gleichung 4.11 die jeweilige mediale Gitterkonstante berechnet werden. Für SrTiO_3 können die Reflexe der (001)-, (002)-, (003)- sowie (004)-Netzebenen zueinander in Bezug gesetzt werden. Die resultierenden Gitterkonstanten entsprechen dem Raumtemperatur-Literaturwert. Für BaPbO_3 können bis auf die (003)-Netzebenen die gleichen Reflexe ausgewertet werden. Resultierende Gitterkonstante zeigen keine eindeutige Schichtdickenabhängigkeit und sind deutlich kleiner als der angegebene Raumtemperatur-Literaturwert.

Für Diffraktogramme von Dünnschichten auf MgO -Substraten ergibt sich ein etwas anderes Bild (vgl. Abb. 4.15): Zum einen zeigt der mit 175 nm dickste Dünnschicht eindeutig eine Fremdphase auf, die den BaPbO_3 -($0kl$)-Netzebenen mit $k = l$ zuzuordnen ist. Zum anderen liegen die Bragg-Reflexe der Film- und Substrat-Netzebenen aufgrund der kleineren Gitterfehlpassung näher zusammen, was die Analysen bei sehr dünnen Schichten erschwert. Hier gehen die BaPbO_3 -Reflexe, die ohnehin eine sehr geringe Intensität aufzeigen, teilweise in die Flanken der MgO -Substrat-Reflexe über.

Die Gitterkonstanten für MgO und BaPbO_3 können über die bereits beschriebene Methode mit Gleichung 4.16 bestimmt werden. Die Ergebnisse sind in Tabelle 4.2 zusammengefasst. Mit einem Wert von $c_{\text{MGO}} = (4,2115 \pm 0,0004)$ Å weicht die resultierende Gitterkonstante für MgO leicht vom Literatur- und Herstellerwert (4,203 Å) ab, was eventuell am Ausheizschritt vor der Dünnschichtdeposition und einer damit veränderten Sauerstoffstöchiometrie liegen könnte.

Die beiden vergrößerten Bereiche in Abbildung 4.15 zeigen ebenfalls einen leichten Versatz der BaPbO_3 -Reflexe verglichen zum erwarteten Raumtemperatur-Literaturwert, was sich auch an der ermittelten kleineren medialen Gitterkonstante des BaPbO_3 widerspiegelt (vgl. Tabelle 4.2). Augenscheinlich nimmt die Differenz zwischen erwarteter sowie gemessener Reflex-Position bzw. Gitterkonstante mit abnehmender Schichtdicke zu. Dies könnte damit zu erklären sein, dass dünne Schichten verspannt aufwachsen (verspannte Epitaxie) und mit zunehmender Schichtdicke relaxieren (relaxierte Epitaxie). Übersteigt die Schichtdicke einen Wert von 30 nm, stellt sich ein sehr stabiler Wert von 4,262 Å ein, der möglicherweise einen vollständig relaxierten Film beschreibt.

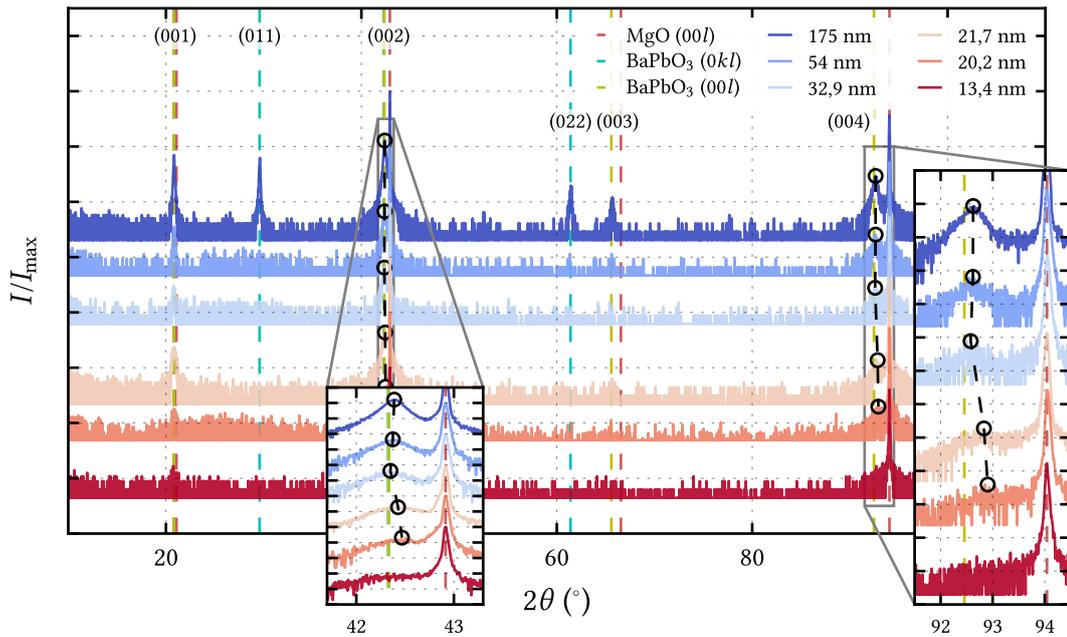


Abbildung 4.15: *Diffraktogramme unterschiedlich dicker BaPbO₃-Dünnschichtproben auf MgO-Substraten.* Die Daten sind über das Maximum des (002)-Reflexes des MgO-Substrats normiert und darauf einjustiert (mit $a_{pc, MgO} = 4,2115 \text{ \AA}$). Die erwarteten Reflexpositionen der (00l)-Netzebenen von Film (grün gestrichelt) und Substrat (rot gestrichelt) liegen aufgrund ähnlicher Gitterkonstanten nah aneinander. Mit Ausnahme des 175-nm-dicken Films liegen keine Fremdphasen vor. Bei dieser Probe sind zusätzlich Reflexe der BaPbO₃-(0kl)-Netzebenen mit $k = l$ vorzufinden (blau gestrichelt). In den vergrößerten Bereichen sind jeweils die (002)- bzw. (004)-Reflexe des MgO- und BaPbO₃-Kristalls zu sehen. Je dünner die Probe, desto weniger heben sich die Reflexe des Films von denen des Substrats ab, bei der mit 13,4 nm dünnsten untersuchten Probe ist der Film-Reflex nicht mehr zu erkennen. Die über Gauß-Fits bestimmte Lage der Maxima ist jeweils mit schwarzen Kreisen indiziert. Die BaPbO₃-Reflexe liegen bei größeren Winkeln als erwartet. Möglicherweise nimmt bedingt durch Verspannungen die Differenz zwischen erwarteter und tatsächlicher Reflex-Position mit abnehmender Schichtdicke zu, was an der schwarz gestrichelten Linie verdeutlicht wird.

Problematisch für diese Diskussion ist allerdings, dass sich die BaPbO₃-Reflexe dünner Filme kaum vom Ansatz der MgO-Reflexe abheben, wodurch die Bestimmung deren Lage mit einer großen Unsicherheit behaftet ist. Aufgrund dessen sei an dieser Stelle nur auf dieses mögliche Szenario hingewiesen.

Zuletzt sei noch erwähnt, dass die Film-Reflexe allgemein verhältnismäßig breiter als die der Substrate sind. Dies deutet auf eine veränderte Kristallstruktur des gewachsenen Films im Vergleich zum nahezu idealen Substrat-Kristall hin. Mosazitäten können zu Inhomogenitäten der medialen Gitterkonstante führen, wodurch sich die Reflexe verbreitern. Des Weiteren können Grenzflächen-induzierte Verspannungen, Vakanzen oder ähnliches Unregelmäßigkeiten in den Netzebenen verursachen. Üblicherweise wird zur quantitativen Analyse dieses Störbeitrags die Halbwertsbreite der Reflexe

Schichtdicke (nm)	c_{MGO} (Å)	c_{BPO} (Å)
13,4	4,2118	—
20,2	4,2110	$4,251 \pm 0,003$
21,7	4,2118	$4,252 \pm 0,001$
32,9	4,2110	$4,262 \pm 0,001$
54	4,2115	$4,262 \pm 0,002$
175	4,2119	$4,262 \pm 0,001$
Mittelwert	$4,2115 \pm 0,0004$	—
Literaturwert	4,203	4,267

Tabelle 4.2: Aus XRD-Daten berechnete mediale Gitterkonstanten c für BaPbO₃-Dünnschichten (BPO) auf MgO-Substraten (MGO). Die Bestimmung der Daten erfolgt analog zu Tabelle 4.1. MgO zeigt nur Reflexe der (002)- und (004)-Netzebenen, sodass hier keine Standardabweichung bestimmt werden kann. Die resultierende mittlere mediale Gitterkonstante weicht etwas vom Raumtemperatur-Literaturwert ab. Für BaPbO₃ ergibt sich ein Wert von 4,262 Å, dünnere Proben zeigen eine etwas geringere mediale Gitterkonstante. Alle berechneten Werte sind kleiner als der Raumtemperatur-Literaturwert. Beim dünnsten konnte keine Gitterkonstante bestimmt werden, da sich hier die Reflexe des Films nicht mehr gegenüber denen des Substrats abheben.

in Betracht gezogen. Diese wird aufgrund der schwach ausgeprägten Maxima des Filmmaterials bei gleichzeitigem Einfluss der Substrat-Reflexe nicht genauer bestimmt. Die Verbreiterung der Film-Reflexe kann bei Dünnschichten häufig beobachtet werden. Anzeichen für Nebenmaxima, die sogenannten Laue-Oszillationen, die in sehr reinen Filmen zum Vorschein kommen können, sind nur in der dicksten Probe auf SrTiO₃ ansatzweise zu beobachten.

Textur

In dieser Arbeit wird die Textur anhand von Φ -Scans und Aufnahmen von Polfiguren der (110)- bzw. (220)-Netzebenen von Film und Substrat untersucht. Als Primäroptik wird hierfür der *Parallel-Beam-Mirror*-Aufsatz mit dem 004-RAD-Kollimator und den folgenden Schlitz-Masken bzw. Blenden verwendet: $1/32^\circ$, 1,4 mm und 2 mm. Damit kann auch bei den dünnen Schichten eine ausreichende Intensität garantiert werden. Der Röntgendetektor wird im 0D-Modus mitsamt der 7.5-P-Anti-Streu-Blende sowie einem 004-RAD-Kollimator betrieben. Die Φ -Scans werden durch eine vollständige Rotation um 360° bei $\chi = 45^\circ$ aufgezeichnet, Polfiguren bei äquidistanten χ -Winkeln von $\Delta\chi = 1^\circ$ im Bereich von minimal 40° bis maximal 50° .

In Abbildung 4.16 b) ist exemplarisch die Polfigur der (220)-Netzebenen einer 32,9-nm-dicken BaPbO₃-Schicht auf einem MgO-Substrat zu sehen. Die logarithmisch

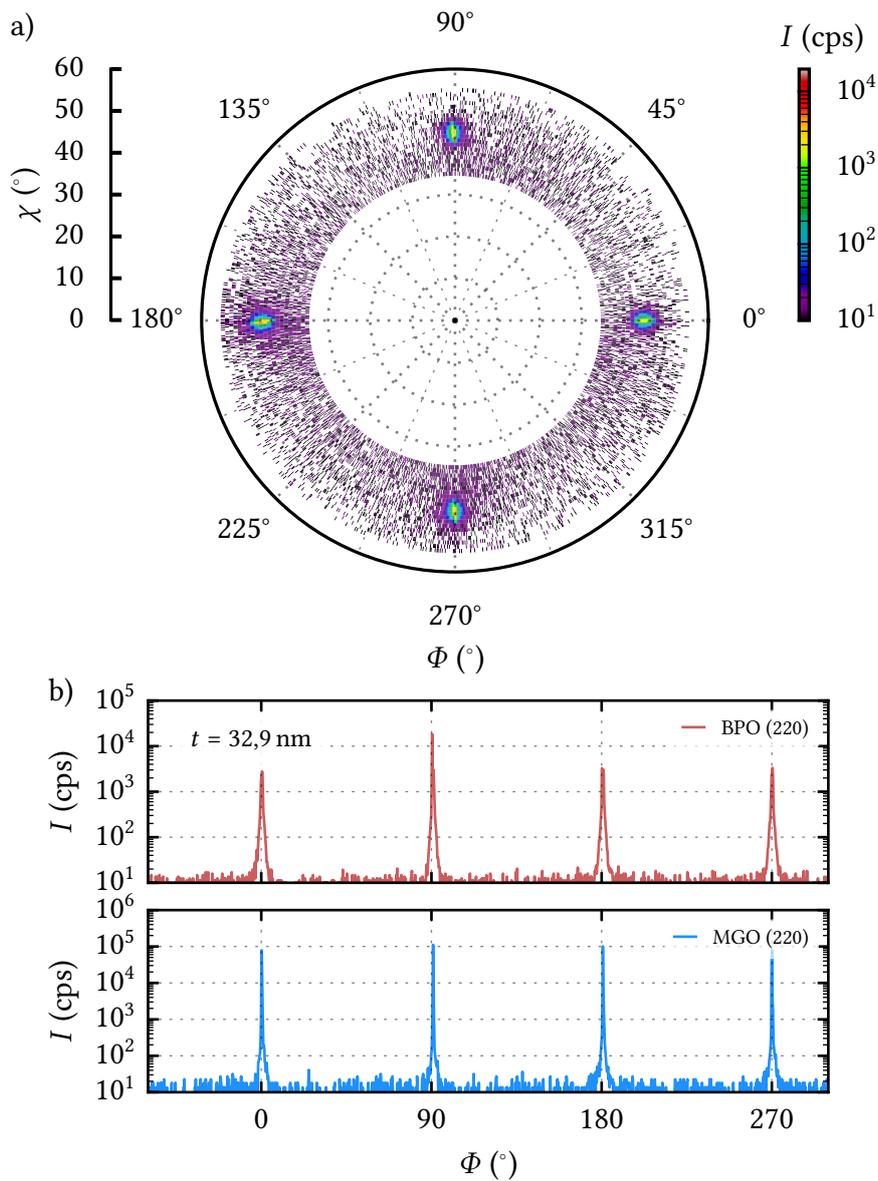


Abbildung 4.16: Polfigurmessungen zur Bestimmung der Textur anhand der (220)-Netzebenen eines 32,9-nm-dicken BaPbO_3 -Films auf einem MgO -Substrat. **a)** Polfigur des Films in Polardarstellung mit einer farblichen Kodierung der logarithmisch skalierten Intensitäten in Einheiten von Zählungen pro Sekunde (cps). Es zeigt sich eine vierzählige Rotationssymmetrie mit Maxima entlang der Kristallachsen. **b)** Darstellung der Φ -Scans des Dünnsfilms (rot) und Substrats (blau). Die Intensitäten sind ebenfalls logarithmisch in Zählungen pro Sekunde (cps) gegen den Φ -Winkel aufgetragen. Die Daten entsprechen Umläufen der Polfiguren bei $\chi = 45^\circ$. Maxima von Film- und Substrat-Reflexe liegen bei den gleichen Positionen – entlang der Kristallachsen – und weisen auf die Übernahme der lateralen kristallographischen Vorzugsrichtung hin. Mit einer Halbwertsbreite von $(0,31 \pm 0,05)^\circ$ sind die MgO -Reflexe deutlich schärfer als die BaPbO_3 -Reflexe, deren Halbwertsbreite im Mittel bei etwa $(0,89 \pm 0,42)^\circ$ liegen.

skalierten und farblich kodierten Intensitäten zeigen vier Maxima in Winkelabständen von $\Delta\Phi = 90^\circ$ entlang der Kristallachsen, wie es für die vierfache Rotationssymmetrie eines (pseudo-)kubischen Systems zu erwarten ist.

Ein den Polfiguren zugrunde liegender Φ -Scan, aufgenommen bei $\chi = 45^\circ$, ist exemplarisch in Abbildung 4.16 b) dargestellt. Auch hier ist die vierfache Rotationssymmetrie erkennbar. Durch Vergleich mit einem Φ -Scan der (220)-Netzebenen des MgO-Substrats ist ersichtlich, dass die Maxima bei gleichen Winkeln vorzufinden sind, was für die Übernahme der kristallographischen Vorzugsrichtung spricht. Für gewachsene Filme auf SrTiO₃-Substraten ergeben sich ähnliche Ergebnisse. Exemplarisch hierfür sei auf Abbildung A.1 verwiesen.

Als ein Maß für die Mosaizität des aufgewachsenen Films können die Halbwertsbreiten der Reflexe bestimmt werden. Diese wurden durch lineare Approximationen zwischen zwei Datenpunkten möglichst exakt graphisch ermittelt. Für die Substrate ergeben sich in den beiden exemplarisch gezeigten Datensätzen (Abb. 4.16 und A.1) für die vier Maxima Mittelwerte von $(0,31 \pm 0,05)^\circ$ bzw. $(0,32 \pm 0,07)^\circ$. Die entsprechenden Filme zeigen mit $(0,89 \pm 0,42)^\circ$ bzw. $(0,90 \pm 0,42)^\circ$ breitere Reflexe, was aber bei Dünnschichten zu erwarten ist. Zudem ist die ermittelte Standardabweichung groß, was möglicherweise mit einer etwaigen Unexaktheit bei der Ausrichtung der Probe zu begründen ist. Diese Messmethode wird lediglich stichprobenartig durchgeführt, da die Filme mit ihrer phasenreinen c-Achsenorientierung keinen Grund zur Annahme eines nicht epitaktischen Wachstums liefern.

Reziproke Raumkarten

Reziproke Raumkarten werden aufgenommen, indem 2θ -Scans bei variierenden ω -Winkeln aufgezeichnet werden. Als Primäroptik wird der Hybridmonochromator mit einer 5-mm-Schlitz-Maske und einer $1/8^\circ$ -Blende verwendet. Der Detektor wird im 1D-Modus mit einer 7.5-P-Anti-Streu-Blende betrieben. Zur Untersuchung bestimmter Netzebenen wird das Diffraktometer entsprechend auf dessen Substrat-Reflex einjustiert.

Bei Dünnschichtproben auf SrTiO₃-Substraten eignen sich zur Aufzeichnung von reziproken Raumkarten in symmetrischer Messgeometrie beispielsweise die (002)-Netzebenen und in asymmetrischer Messgeometrie die (103)-Netzebenen. In Abbildung 4.17 sind die Daten von RSM-Messungen zweier unterschiedlich dicker Monolagen gezeigt: Die im Verhältnis zu den scharfen Substrat-Reflexen deutliche radiale sowie umlaufende Aufweitung der Film-Reflexe deutet auf Variationen der Gitterparameter bzw. auf die Mosaizität des Films hin [169]. Die Reflexe der (002)-Netzebenen von Film und Substrat sind achsensymmetrisch bezüglich der Ordinate (Q_z -symmetrisch),

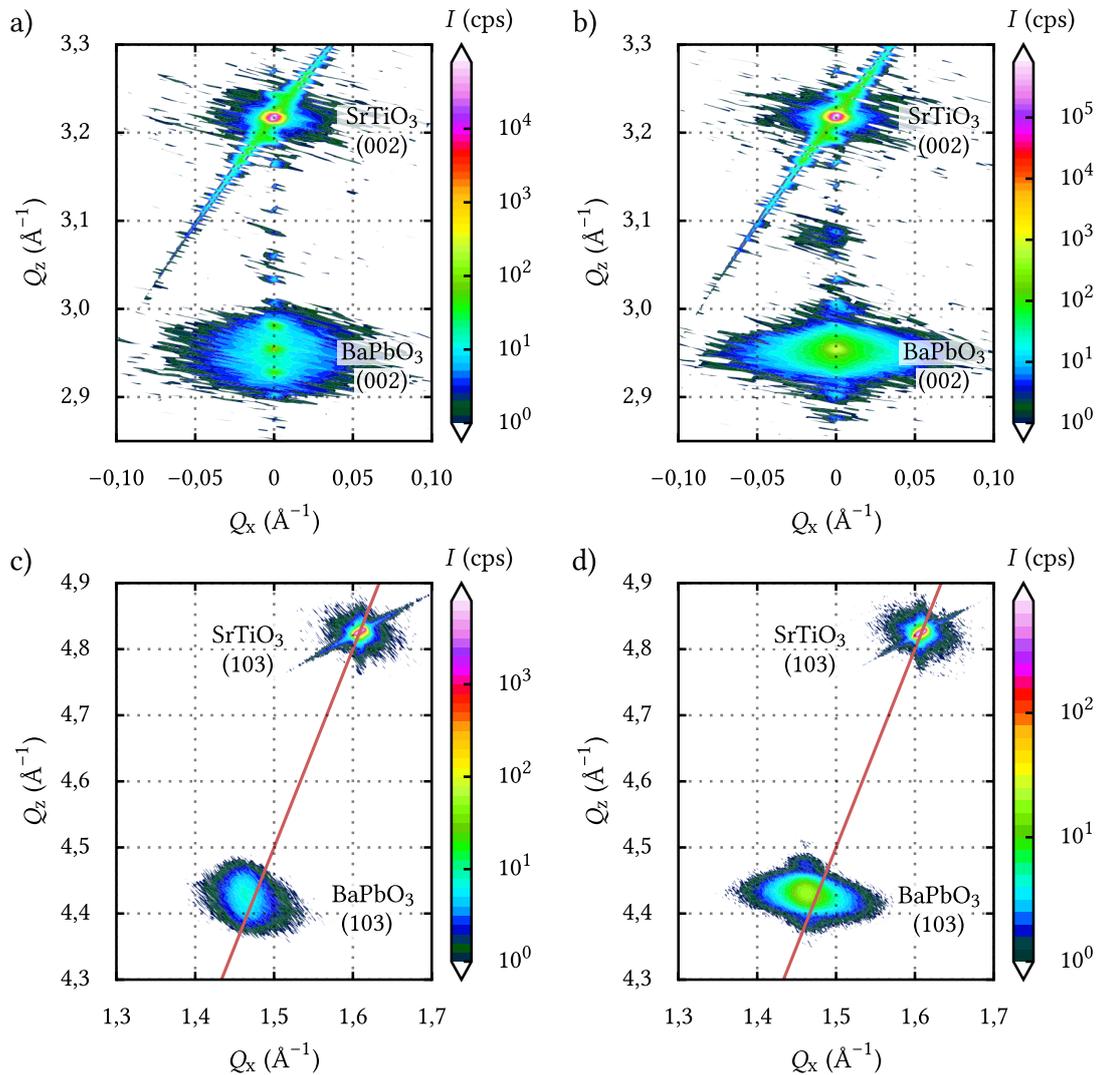


Abbildung 4.17: Darstellung der reziproken Raumkarten zweier unterschiedlich dicker BaPbO₃-Filme auf SrTiO₃-Substraten. Die Abbildungen auf der linken Seite zeigen Daten einer 11,3-nm-dicken, auf der rechten Seite die einer 21,4-nm-dicken Schicht. In a) sowie b) sind die Daten der symmetrischen (002)-Netzebenen und in c) sowie d) die der asymmetrischen (103)-Netzebenen abgebildet. In allen Teilabbildungen ist jeweils der Reflex mit der höheren Intensität dem SrTiO₃-Substrat zuzuordnen und der verbreiterte Reflex mit geringerer Intensität dem BaPbO₃-Dünnsfilm. Die Q_z -Symmetrie der symmetrischen Messungen deuten auf eine geringe Missorientierung der Filme hin. Die rot eingezeichnete Geraden in c) und d) repräsentieren eine Ursprungsgerade mit der Steigung 3. Diese durchquert mittig den Substrat-Reflex. Der Film-Reflex liegt augenscheinlich leicht versetzt auf der linken Seite der Geraden. Dies deutet auf eine tetragonale Verspannung hin. In Tabelle 4.17 sind die aus den Reflexpositionen extrahierten Größen zusammengefasst.

Material	Reflex	c_1 (Å)	a_1 (Å)	c_2 (Å)	a_2 (Å)
SrTiO ₃	(103)	3,907 ± 0,001	3,914 ± 0,004	3,908 ± 0,002	3,911 ± 0,007
SrTiO ₃	(002)	3,906 ± 0,001		3,905 ± 0,002	
BaPbO ₃	(103)	4,257 ± 0,006	4,287 ± 0,014	4,254 ± 0,008	4,293 ± 0,019
BaPbO ₃	(002)	4,252 ± 0,003		4,253 ± 0,003	

Tabelle 4.3: Ermittelte Gitterkonstanten aus Analysen der RSM-Daten für zwei unterschiedlich dicke BaPbO₃-Dünnschichten auf SrTiO₃. Die laterale Gitterkonstante a wurde mit Gl. 4.13a, die mediale Gitterkonstante c mit Gl. 4.13b bestimmt. Die Indizes 1 und 2 stehen für die in Abb. 4.17 a) und c) gezeigte 11,3-nm- bzw. für die in Abb. 4.17 b) und d) gezeigte 24,4-nm-dicke BaPbO₃-Dünnschichtprobe, woraus die Reflex-Positionen optisch ermittelt wurden⁴.

was darauf hindeutet, dass der Neigungswinkel zwischen Film und Substrat (Missorientierung) gering ausfällt. Der Reflex der (103)-Netzebenen der Filme liegt in beiden Fällen augenscheinlich auf der linken Seite der rot eingezeichneten Linie, die als Ursprungsgerade mit der Steigung von $m = 3$ bei diesen Netzebenen ein relaxiertes Wachstum andeutet³. Während ein Verschieben in Richtung der Q_x -Position des Substrats für die Übernahme der lateralen Gitterkonstante spricht, ist das Verschieben des Reflexes in die entgegengesetzte Richtung ungewöhnlich.

Aus der Lage der Reflexe können mit den Gleichungen 4.13a und 4.13b die lateralen sowie medialen Gitterkonstanten berechnet werden. Die Reflex-Positionen werden hierfür optisch bestimmt⁴. Auf diese Weise resultieren aus den in Abbildung 4.17 gezeigten RSM-Aufnahmen die in Tabelle 4.3 aufgelisteten Werte für die Gitterkonstanten. Die tetragonale Verzerrung der BaPbO₃-Einheitszelle spiegelt sich beim Vergleich der berechneten lateralen und medialen Gitterkonstante wider. Die mediale Gitterkonstante ist durchschnittlich um 0,036 Å größer und mit einem Wert von etwa 4,290 Å auch größer als der Raumtemperatur-Literaturwert. Die ermittelten Gitterkonstanten in SrTiO₃ entsprechen innerhalb der Messunsicherheit dem Literaturwert.

³ Üblicherweise wird diese Linie definiert, indem die Ursprungsgerade linear mit dem Maximum des Substrat-Reflexes verbunden wird. Da allerdings bei den hier aufgezeichneten Daten das Maximum nicht zentral im Reflex vorzufinden ist, wurde in diesem Fall die Steigung von 3 explizit fixiert. Hierfür ursächlich ist vermutlich eine leichte Missorientierung der Probe im Diffraktometer. Wie zu sehen, verläuft die resultierende Gerade näherungsweise mittig durch den Substrat-Reflex – wie es für das unverspannte kubische System zu erwarten ist. Die Abweichung der Steigung m der Ursprungsgeraden, die durch das Maximum des Substrat-Reflexes läuft, fällt mit $m = 3,006$ bzw. $m = 3,003$ gering aus.

⁴ Die Reflex-Positionen werden durch Flächen gleicher Intensität auf einen gewissen Bereich optisch eingegrenzt. Die in Tabelle 4.3 und 4.4 angegebenen Werte werden bestimmt, indem die Schichtdicke an den Grenzen der Flächen gleicher Intensität berechnet und daraus das Mittel gebildet wird. Der Fehlerbereich wird aus der Differenz zum Mittelwert abgeschätzt.

Material	Reflex	c_1 (Å)	a_1 (Å)	c_2 (Å)	a_2 (Å)
MgO	(-224)	$4,211 \pm 0,000$	$4,212 \pm 0,000$	$4,211 \pm 0,001$	$4,212 \pm 0,001$
MgO	(002)	$4,211 \pm 0,003$		$4,213 \pm 0,002$	
BaPbO ₃	(-244)	$4,271 \pm 0,014$	$4,262 \pm 0,022$	$4,267 \pm 0,011$	$4,266 \pm 0,020$
BaPbO ₃	(002)	$4,270 \pm 0,015$		$4,263 \pm 0,009$	

Tabelle 4.4: Ermittelte Gitterkonstanten aus Analysen der RSM-Daten zweier unterschiedlich dicker BaPbO₃-Dünnschichten auf MgO-Substraten. Die laterale Gitterkonstante a wurde mit Gl. 4.13a, die mediale Gitterkonstante c mit Gl. 4.13b bestimmt. Die Indizes 1 und 2 stehen für die in Abb. 4.18 a) und c) gezeigte 14,9-nm- bzw. die in Abb. 4.18 b) und d) gezeigte 21,1-nm-dicke BaPbO₃-Dünnschichtprobe, woraus die Reflex-Positionen optisch ermittelt wurden (vgl. Fußnote 4 auf S. 62).

Bei Dünnschichtproben auf MgO-Substraten erweist sich die Aufnahme von RSM-Messungen der asymmetrischen Messgeometrie schwieriger, da sich hier alle Reflexe, bei denen sich die Miller'schen Indizes aus einer Mischung aus geraden und ungeraden Zahlen zusammensetzen, auslöschen [169]. Im Gegenzug zeigen Reflexe von Netzebenen, die bei MgO zu hohen Intensitäten führen, bei BaPbO₃ nur geringe Intensitäten. Beste Ergebnisse konnten bei der Untersuchung der (-224)-Netzebenen gewonnen werden. In Abbildung 4.18 sind reziproke Raumkarten der symmetrischen (002)-Netzebenen sowie der asymmetrischen (-224)-Netzebenen zweier unterschiedlich dicker BaPbO₃-Filme, die auf MgO-Substraten gewachsen wurden, dargestellt. Die symmetrischen Reflexe zeigen wieder eine Q_z -Symmetrie und deuten damit eine geringe Missorientierung der Filme an. Aufgrund der ähnlichen Gitterparameter des BaPbO₃- und MgO-Kristalls liegen die Reflexe bei ähnlichen Positionen. Die Film-Reflexe der asymmetrischen Messgeometrie besitzen, verglichen zu den Substrat-Reflexen, nur eine sehr geringe Intensität und sind bei der dünneren Probe nur noch ansatzweise zu erkennen. In beiden Fällen liegt der Film-Reflex jedoch augenscheinlich mittig auf der rot eingezeichneten Ursprungsgeraden, was für ein relaxiertes und (pseudo-)kubisches Aufwachsen des Films spricht. In diesem Fall wurden der Ursprung linear mit dem Maximum des Substrat-Reflexes verbunden. Resultierende Steigungen von $m = -1,414$ bzw. $m = -1,415$ entsprechen nahezu perfekt dem erwarteten Wert von $-\sqrt{2}$.

In Tabelle 4.4 sind die aus den reziproken Raumkarten extrahierten Gitterkonstanten aufgelistet. Aufgrund der geringen Intensitäten der asymmetrischen Film-Reflexe sind die hieraus bestimmten Werte mit relativ großen Fehlerbereichen behaftet. Die näherungsweise isotropen Gitterkonstanten von BaPbO₃ und MgO deuten auf deren (pseudo-)kubische Kristallstruktur hin und bestätigen die Annahme ei-

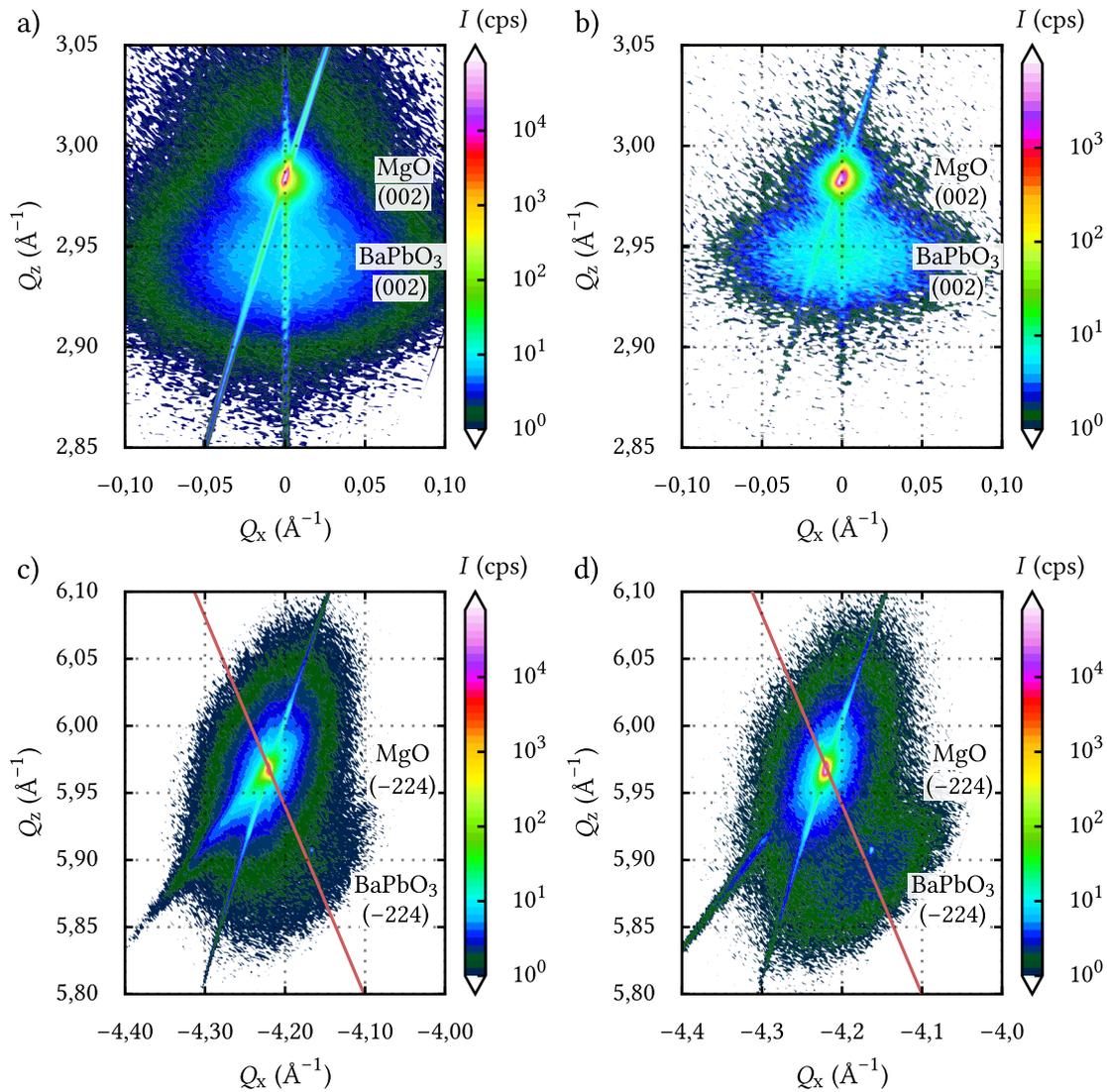


Abbildung 4.18: Darstellungen reziproker Raumkarten zweier unterschiedlich dicker BaPbO₃-Filme auf MgO-Substraten. Die Abbildungen auf der linken Seite zeigen Daten einer 14,9-nm-dicken, auf der rechten Seite die einer 21,1-nm-dicken Dünnschichtprobe. In a) sowie b) sind die Aufnahmen der symmetrischen (002)-Netzebenen und in c) sowie d) die der asymmetrischen (-224)-Netzebenen abgebildet. Die symmetrischen Raumkarten zeigen eine Q_z -Symmetrie. Bei den asymmetrischen Raumkarten haben die BaPbO₃-Reflexe wesentlich geringere Intensitäten als die MgO-Reflexe. Die rot eingezeichnete Geraden in c) und d) repräsentieren eine lineare Verbindung zwischen dem Ursprung und dem Maximum der Substrat-Reflexe und haben die Steigung von $m = -1,414$ bzw. $m = -1,415$. Dass die Film-Reflexe – sofern ersichtlich – mittig auf dieser Linie zu liegen scheinen, deutet auf ein relaxiertes Wachstum hin. Aus der genauen Position der jeweiligen Reflexe können die Gitterkonstanten berechnet werden. Diese sind in Tabelle 4.4 aufgelistet.

nes relaxierten Wachstums. Die ermittelte Gitterkonstante der MgO-Einheitszelle von $(4,2117 \pm 0,0008) \text{ \AA}$ bestätigt indes den zuvor bestimmten Wert von $4,2115 \text{ \AA}$.

Die Herkunft des in den Abbildungen 4.18 c) und d) relativ scharfen Intensitätsmaxima innerhalb des Bereichs des BaPbO₃-Reflexes bleibt zunächst ungeklärt. Da eine ähnliche Intensitätsmaxima sich auch in nicht gezeigten anderen Analysen ergibt, ist dieses möglicherweise auf ein Messartefakt zurückzuführen.

4.3 Zusammenfassung und Interpretation

Es folgt eine Auflistung und Interpretation der wichtigsten Erkenntnisse aus den strukturellen Untersuchungen:

- *SrTiO₃-Substrate*: Die gesäuberten Oberflächen zeigen sowohl nach einer HF-Terminierung als auch nach der mechanisch-chemischen Reinigung und anschließenden Ausheizen Stufen einer möglichen TiO₂-Terminierung. Die ermittelten Rauigkeitswerte lassen mit $\text{RMSR} < 200 \text{ pm}$ auf definierte Oberflächen schließen.

Die Literatur- und Herstellerangaben der Raumtemperatur-Gitterkonstante wird durch XRD- sowie RSM-Analysen innerhalb der Messunsicherheit mit einem Wert von $(3,9073 \pm 0,0030) \text{ \AA}$ bestätigt.

- *MgO-Substrate*: Bereits nach der mechanisch-chemischen Reinigung erhält man definierte Oberflächen mit $\text{RMSR} < 100 \text{ pm}$. Ein kurzes Ausheizen bei nominell $800 \text{ }^\circ\text{C}$ führt – im Gegensatz zu einem zwölfstündigen Ausheizen bei anderen Arbeitsgruppen [63] – lokal zu keiner weiteren Reduktion des RMSR-Werts, garantiert jedoch auf großer Skala die Abwesenheit von Adsorbaten. Es sind statistisch und teilweise auch entlang der Kristallachsen verteilte Löcher mit einer Tiefe entsprechend dem ein- bis eineinhalbfachen der Höhe der MgO-Einheitszelle und einem Durchmesser von maximal 100 nm vorzufinden. Auch können vereinzelt „Kerben“ entlang der Kristallachsen beobachtet werden, die eine Tiefe entsprechend einer halben bis ganzen MgO-Einheitszelle aufweisen und möglicherweise auf eine lokale Verzwilligung des Kristalls hinweisen. Anhand der RSM- und XRD-Analysen wird die Raumtemperatur-Gitterkonstante auf einen Wert von $(4,2115 \pm 0,0007) \text{ \AA}$ bestimmt. Damit weicht dieser leicht von Hersteller- und Literaturangaben ab, was womöglich dem zusätzlichen Ausheizenschritt vor der Dünnfilmdeposition geschuldet ist.
- *Grenzfläche zwischen Substrat und Film*: XRR-Analysen zeigen, dass für beide Substratmaterialien die Grenzflächenrauigkeit mit zunehmender Schichtdicke tendenziell ansteigt (vgl. Abb. 4.13 d)). Dies lässt vermuten, dass die Filme unmittel-

telbar während der Ablation eine ungeordnete Grenzfläche zum Substrat bilden, welche sich erst mit dem nachträglichen Annealing-Schritt – möglicherweise in Kombination mit dem zusätzlich angebotenen Sauerstoff – definiert. Mit zunehmender Schichtdicke kann die Sauerstoffdiffusivität abnehmen, was beim Ausheilen zu einem Sauerstoffdefizit führen kann.

- *Oberflächentopografie der Filme:* Sowohl die Analysen der AFM-Daten (Abb. 4.10/4.11) als auch die der XRR-Daten (Abb. 4.13 d)) deuten auf eine zunehmende Oberflächenrauigkeit mit ansteigender Schichtdicke hin. Dünne Filme haben lediglich eine geringfügig höhere Oberflächenrauigkeit im Vergleich zu den Substraten, wodurch anzunehmen ist, dass die ersten Schichten flächig aufwachsen. XRD-Analysen eines BaPbO₃-Films mit einer Schichtdicke von $t = 175$ nm weist Fremdphasen auf (Abb. 4.15). Ich nehme an, dass mit wachsender Schichtdicke das Lagenwachstum durch Inselwachstum abgelöst wird.
- *Wachstumsrate der Filme:* Mit $(0,35 \pm 0,03)$ nm LP⁻¹ bzw. $(0,34 \pm 0,04)$ nm LP⁻¹ wachsen auf den entsprechenden SrTiO₃- bzw. MgO-Substraten in etwa 80 % einer Einheitszelle des BaPbO₃ pro Laserpuls auf (Abb. 4.13 c)). Die Streuung von etwa 10 % kann mehrere Ursachen haben: Die wohl größten Unsicherheiten beim Wachstumsprozess stellen die exakte Ausrichtung der Plasmawolke sowie die Energie des Lasers pro Laserpuls dar. Letztgenannte wird über eine interne Regelung stabilisiert, indem der Laser einen Teil der emittierten Strahlung über einen internen Energiemonitor abgleicht und die angelegte Hochspannung entsprechend nachjustiert. Dabei kommt es unvermeidlich zu Schwankungen in der Laserenergie in Höhe von etwa 5 % bis 10 %. Vor allem bei geringen Schusszahlen mitteln sich die Energieschwankungen möglicherweise nicht vollständig heraus. Zudem können alterungsbedingte Verunreinigungen an der Optik des Lasers sowie leichte Bewegungen der Spiegel mit der Zeit zu erhöhten Streuverlusten führen. Die Spiegel und Optiken werden in regelmäßigen Abständen gewartet und nachjustiert, was direkt im Anschluss trotz nominell gleicher Laserenergien zu einer Erhöhung des Energieeintrags auf dem Target führen kann.
- *Mosaizität und Textur der Dünnsfilme:* Die Halbwertsbreiten der Φ -Scan-Reflexe des BaPbO₃-Dünnsfilms sind mit Werten von $(0,89 \pm 0,42)^\circ$ bzw. $(0,90 \pm 0,42)^\circ$ in etwa dreimal so breit, wie die der Substrate (Abb. 4.16/A.1). Dies deutet auf eine erhöhte Mosaizität des Films hin. Diese Vermutung wird durch die radiale sowie umlaufende Ausweitung der Film-Reflexe bei den reziproken Raumkarten (Abb. 4.18/4.17) und breiteren Maxima bei XRD-Analysen (Abb. 4.14/4.15) bestätigt. Zwischen Dünnsfilmproben auf SrTiO₃- und MgO-Substraten ist kein wesentlicher Unterschied erkennbar.

Die Q_z -Symmetrie der reziproken Raumkarten der (002)-Netzebenen (Abb. 4.17/4.18) deuten auf einen geringen Neigungswinkel zwischen Film- und Substrat-Netzebenen hin. Aufgezeichnete Polfiguren (Abb. 4.16/A.1) zeigen eine vierwertige Rotationssymmetrie, wobei die Kristallachsen der Einheitszellen des Films parallel zu denen des Substrats ausgerichtet sind.

- *Gitterkonstanten, Epitaxie und Verspannungen von Dünnschichtproben auf SrTiO₃-Substraten:* Alle Untersuchungen am Diffraktometer deuten auf ein epitaktisches Wachstum der Dünnschichten hin. Mit einer aus RSM- und XRD-Analysen ermittelten medialen Gitterkonstante von $c \approx (4,252 \pm 0,004) \text{ \AA}$ ist diese kleiner als entsprechende Literaturangaben von $4,267 \text{ \AA}$.

Die laterale Gitterkonstante übersteigt dagegen mit einem bestimmten Mittelwert von $a \approx (4,290 \pm 0,004) \text{ \AA}$ den Literaturwert und deutet damit auf eine tetragonale Verzerrung des BaPbO₃-Kristalls hin. Aufgrund der kleineren Gitterkonstante des Substrats ($a_{c, \text{STO}} = 3,905 \text{ \AA}$) ist eine verspannte Epitaxie damit ausgeschlossen. Eine Möglichkeit, die laterale Streckung sowie mediale Stauchung zu erklären, ist die Annahme einer domänenangepassten Epitaxie: Ist die Größe der gesamten Domäne des Substrats größer als die des Films, kann die gesamte Film-Domäne eine laterale Streckung erfahren. Möglicherweise könnte das Verhältnis $m/n = 11/10$ lauten. Damit wäre der Betrag der mit Gleichung 3.1 bestimmten Gitterfehlpassung minimal und mit einem Wert von $f = 2,4 \%$ dennoch positiv. Aufschlüsse hierüber könnten Untersuchungen mit einem Transmissions-Elektronen-Mikroskop (TEM) geben. Im Rahmen dieser Arbeit durchgeführte TEM-Untersuchungen ergaben keine auswertbaren Ergebnisse, da die bleihaltigen Filme unter Einwirkung des Elektronenstrahls schnell degradieren [D1, 177]. Die Auswertungen der Gitterkonstante zeigen keine Schichtdickenabhängigkeit, was darauf hindeutet, dass alle untersuchten Dünnschichtproben etwa gleich stark verspannt aufwachsen (verspannte Epitaxie). Berechnet man aus den extrahierten Gitterkonstanten a und c das Volumen der Einheitszelle, kommt man auf einen Wert von $78,254 \text{ \AA}^3$. Überführt man diesen auf ein kubisches System, so hätte dieses eine pseudokubische Gitterkonstante von $a_{\text{pc}} = 4,277 \text{ \AA}$ zur Folge und wäre damit um $0,01 \text{ \AA}$ größer als der Literaturwert für BaPbO₃.

- *Gitterkonstanten, Epitaxie und Verspannungen von Dünnschichtproben auf MgO-Substraten:* An Dünnschichtproben auf MgO-Substraten zeigt sich ein ähnlicher Zusammenhang wie in [120]: Ein phasenreines Wachstum scheint nur bis zu einer bestimmten Schichtdicke energetisch begünstigt zu sein. Im Gegensatz zur kritischen Schichtdicke von $t = 20 \text{ nm}$ in [120] ist bei meinen Dünnschichtproben augenscheinlich epitaktisches Wachstum bis $t = 54 \text{ nm}$ gelungen. Die mit 175 nm

dickste Probe zeigt Anzeichen einer Fremdphase der $(0kl)$ -Netzebenen mit $k = l$. Möglicherweise steigt die mediale Gitterkonstante mit zunehmender Schichtdicke an und sättigt oberhalb von 30 nm. Dies ist mit einem Übergang von verspannter zur relaxierten Epitaxie erklärbar sein. Allerdings heben sich bei den vermeintlich verspannten Filmen die Film-Reflexe im XRD kaum aus den Flanken der Substrat-Reflexe hervor, wodurch die Bestimmung deren Gitterkonstante mit einer Unsicherheit verbunden ist. Asymmetrische RSM-Untersuchungen, die Aufschlüsse zu Spannungseffekten liefern könnten, werden dadurch erschwert, dass Substrat-Reflexe hoher Intensitäten eine geringe Intensität im Film-Reflex aufweisen und umgekehrt. Augenscheinlich liegen allerdings auch die dünnsten Film-Reflexe auf der Ursprungsgeraden, die ein relaxiertes Wachstum andeutet. Daher liegt die Vermutung nahe, dass die Filme unverspannt aufwachsen und der schichtdickenabhängige Trend ein Messartefakt der Substrat-Flanken ist. Aus denjenigen Daten, bei denen der BaPbO_3 -Reflex eindeutig identifizierbar sind, resultiert zusammen mit XRD- und RSM-Analysen eine mittlere mediale Gitterkonstante von $c = (4,264 \pm 0,003) \text{ \AA}$ und eine laterale Gitterkonstante von $a = (4,266 \pm 0,020) \text{ \AA}$. Damit bestätigen die Werte innerhalb ihrer Messgenauigkeit den Literaturwert von $4,267 \text{ \AA}$ bei Raumtemperatur und sind näherungsweise isotrop, deuten also eine (pseudo-)kubische Einheitszelle an. Mit einem Volumen von $77,599 \text{ \AA}^3$ fällt die hieraus berechnete BaPbO_3 -Einheitszelle geringfügig kleiner aus sowohl im Vergleich mit derjenigen, die aus BaPbO_3 -Dünnschichten auf SrTiO_3 -Substraten folgt, als auch im Vergleich mit derjenigen, die sich aus dem Raumtemperatur-Literaturwert ergibt.

5 Elektronische Transporteigenschaften

Dieses Kapitel befasst sich mit der experimentellen Erfassung und theoretischen Beschreibung des elektrischen Transports in Dünnschichtproben in Abhängigkeit der Temperatur oder eines externen Magnetfelds. Darin erkläre ich zunächst, wie mittels Fotolithografie aus den flächigen, epitaktischen Filmen Messstrukturen herausgearbeitet werden, um die elektronischen Transporteigenschaften präzise vermessen zu können. Anschließend gebe ich einen Überblick über verschiedene Theorien, die sowohl das Hochtemperatur-, als auch das Tieftemperaturverhalten des elektrischen Widerstands, auch in Abhängigkeit eines externen Magnetfelds, beschreiben. Dabei soll dem zeitlichen Verlauf der Wissenschaft gefolgt werden, indem ich zunächst Theorien zu einfachen, nahezu defekt-freien Metallen beschreibe, ehe ich auf komplexe, durch Grenzflächen und Störstellen beeinflusste Systeme eingehe. Das Kapitel schließt mit einem Überblick zum aktuellen Stand der Wissenschaft ab.

5.1 Messung des elektrischen Transports

Alle elektrischen Transportmessungen, die in dieser Arbeit vorgestellt werden, sind an strukturierten Dünnschichtproben durchgeführt worden. Dies hat den Vorteil, dass in Kombination mit den ermittelten Schichtdicken materialspezifische Größen wie der spezifische Widerstand oder die Ladungsträgerdichte bestimmbar sind. Dabei wurde eine Messgeometrie gewählt, die sowohl Vier-Punkt- als auch Hall-Messungen ermöglicht. Damit sich die dafür notwendigen elektrischen Felder möglichst homogen in der Probe und speziell an den Kontakten ausbilden, werden die Kontaktflächen mit großflächigen Goldkontakten versehen, die als Äquipotentialflächen dienen. In den folgenden Abschnitten beschreibe ich zunächst die Strukturierung der Dünnschichtproben mittels Fotolithografie, ehe ich auf die Ankontaktierung der Proben und das Messverfahren zur Erfassung des elektrischen Transports eingehe.

5.1.1 Strukturierung

Fotolithografie gilt als eine Schlüsseltechnologie in der mikroelektronischen Fertigung. Der Prozess beschreibt im Allgemeinen die Übertragung eines zweidimensionalen Musters in eine Schicht aus Fotolack (*Resist*), welche zuvor meist über eine Rotationsbeschichtung (*Spin-Coating*) flächig auf die Probe aufgetragen wird. Das Muster wird mithilfe einer Maske aufgebracht, die präzise über der Fotolackschicht ausgerichtet wird. Durch Bestrahlung mit meist ultraviolettem Licht wird der freiliegende Fotolack, der üblicherweise aus langkettigen Polymeren besteht, in seinen physikalisch-chemischen Eigenschaften so geändert, sodass dieser an den belichteten Stellen mit einer passenden Entwicklerlösung ausgewaschen werden kann. Durch Andrücken der belackten Probe gegen die Maske im sogenannten Kontakt-Druck-Modus (*Contact-Printing*) können Beugungseffekte des verwendeten Lichts minimiert werden. Am Ende bleibt eine teilbelackte Probenoberfläche zurück, die mittels nasschemischen oder mechanischen Ätzen oder auch mit Hilfe von Beschichtungen weiter behandelt werden kann. Dabei ist ein Vorteil gegenüber anderen Verfahren, wie beispielsweise der Elektronenstrahlithografie, bei der ein fokussierter Elektronenstrahl die belackte Probenoberfläche abrästert und so die Struktur überträgt, die Möglichkeit zur schnellen und großflächigen zweidimensionalen Strukturierung von Oberflächen. Dagegen ist bei der Fotolithografie die Auflösung aufgrund der Wellenlänge und Lichtbeugung limitiert. Um die Vorteile beider Verfahren zu vereinen, können auch große Flächen mittels Fotolithografie vorstrukturiert und mittels Elektronenstrahlithografie weiter prozessiert werden. Aufgrund einer Vielfalt an zur Verfügung stehender Fotolackmischungen und passender Entwicklerlösungen können heutzutage chemische Reaktionen mit den Probenmaterialien weitgehend vermieden werden. [178]

Zur Erzeugung der in dieser Doktorarbeit gewählten Messgeometrie wird der Prozess der Fotolithografie zweimal durchlaufen, wobei im ersten Durchlauf Goldkontakte auf die Probenoberfläche aufgebracht werden, ehe im zweiten Durchlauf die Struktur in den Film geätzt wird¹. Die hierfür notwendigen Schattenmasken wurden mit dem Programm CleWin [179] selbst entworfen und extern per Auftragsarbeit auf chrombeschichtete Glasplatten übertragen (Delta Mask B.V.). Die Schattenmaske der Goldkontakte (s. Abb. 5.1 a)) stellt ein Negativ der gewünschten Struktur dar und ist so gestaltet, dass diese mit einer Fläche von $6 \times 6 \text{ mm}^2$ die Probenoberfläche vollständig abdeckt und die Strukturen gleichzeitig ausreichend weit vom Probenrand entfernt platzierbar sind. An den gedoppelten Quadraten (*Finding Pattern*) am Probenrand kann die Schattenmaske der Messstruktur (Abb. 5.1 b)) ausgerichtet werden. Das Po-

¹ Diese Reihenfolge empfiehlt sich, da beim Aufbringen der Goldkontakte zusätzlich Orientierungsmarker aufgebracht werden, an denen man im zweiten Schritt die Maske für die Transportstege ausrichten kann.

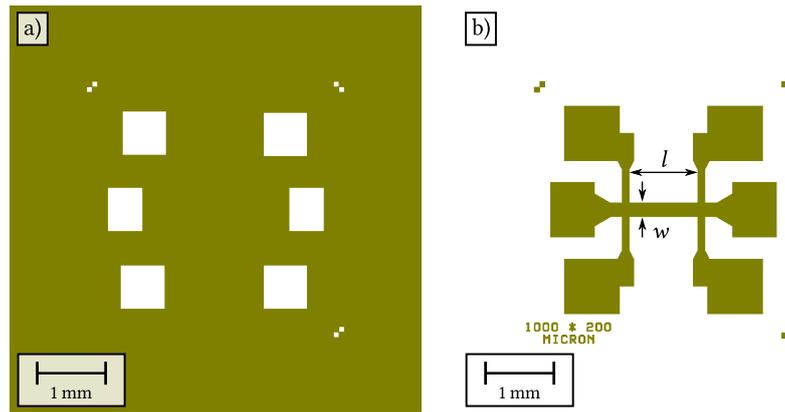


Abbildung 5.1: Technische Zeichnung zweier Schattenmasken, die in dieser Doktorarbeit zur Strukturierung der Proben verwendet werden: **a)** Schattenmaske für Goldkontakte. Deren Negativ entspricht den Positionen auf der $5 \times 5 \text{ mm}^2$ groß angenommenen Dünnsfilmoberfläche, an denen die Goldkontakte aufgebracht werden. Die kleinen, gedoppelten Quadrate in den Ecken der eigentlichen Goldkontakte dienen als Orientierungsmarker zur Ausrichtung der zweiten Maske auf den dann präparierten Goldkontakten. **b)** Schattenmaske für die Messstruktur. Deren Positiv entspricht der gewünschten Struktur auf der Dünnsfilmprobe. Die oberen sowie unteren beiden quadratischen Flächen dienen als Kontakte zum Abgreifen der elektrischen Spannung, die mittleren beiden zum Ein- und Auskoppeln des elektrischen Messstroms. Der Messsteg hat eine nominelle Länge von $l = 1000 \mu\text{m}$ und eine Breite von $w = 200 \mu\text{m}$.

sitiv dieser Schattenmaske beschreibt die gewünschte Struktur der Probe nach dem Ätzprozess. Die in dieser Arbeit am häufigsten verwendete Messstruktur definiert einen rechteckigen Messbalken mit einer nominellen Länge von $l = 1000 \mu\text{m}$ und einer Breite von $w = 200 \mu\text{m}$. Diese vergleichsweise großen Abmessungen wurden gewählt, um Messstrukturen gut händisch ankontaktieren zu können (siehe folgendes Kapitel). Des Weiteren sind die Masken so ausgelegt, dass damit auch Feldeffektmessungen möglich sind (s. Abb. 7.1).

Die Fotolithografie läuft in den folgenden Einzelschritten ab. Zunächst wird ein Tropfen eines Fotolacks (AZ 1512HS, MicroChemicals GmbH) mittig auf der Oberfläche der Dünnsfilmprobe aufgebracht und mithilfe einer Schleuder (*Spinner*) bei nominell 6000 Umdrehungen pro Minute über eine Zeitdauer von 30 Sekunden gleichmäßig auf der Probenoberfläche verteilt. Anschließend wird die belackte Probe für etwa eine Minute in einem Umluftofen einer Temperatur von etwa 95°C ausgesetzt, so dass Lösungsmittel aus dem Fotolack abdampfen und der Lack antrocknet. Daraufhin wird mikroskopgestützt die Maskenjustierung (Mask Aligner MJB4, Süss MicroTec) mikrometergenau auf der Probenoberfläche vorgenommen. Durch zeitlich begrenztes Belichten (etwa 5,5 s) der belackten Probenoberfläche samt aufgelegter Schattenmaske mittels UV-Licht einer Quecksilberdampfampe im Kontakt-Druck-Modus wird nun der freiliegende Fotolack chemisch verändert: Die langkettigen Polymere des Fotolacks

zerfallen in kurzkettinge Polymerstränge, die anschließend in einer Entwicklerlösung ausgewaschen werden können. Hierfür wird die Probe für etwa 17 Sekunden in eine Lösung bestehend aus einem passenden Entwickler (AZ400 K MicroChemicals GmbH) und vier Teilen bidestilliertem Wasser gegeben, wodurch nur das gewünschte Positiv der entsprechenden Schattenmaske zurück bleibt. Schließlich wird der Entwicklungsprozess in einem Bad aus bidestilliertem Wasser gestoppt, da so der auf der Probenoberfläche anhaftende Entwickler ausreichend verdünnt wird.

Eine etwa 150-nm-dicke Goldschicht wird auf die verbleibende Fotolackschicht und die partiell freigelegte Probenoberfläche (Positiv von Abb. 5.1 a)) flächig mithilfe einer Tischsputteranlage (Kathodenzerstäuber) im DC-Modus aufgebracht [180]. Die Sputterzeiten betragen zwischen 200 s und 600 s bei einem Argon-Hintergrunddruck von etwa 0,1 mbar. Ein anschließendes Ultraschallbad in Aceton für etwa 30 Sekunden löst den auf der Probenoberfläche verbliebenen langkettigen Fotolack und entfernt damit diesen mitsamt der darauf befindlichen Goldschicht.

Im nun folgenden Ätzprozess wird die Messstruktur in den Film übertragen. Dabei schützt das Positiv der Schattenmaske (Abb. 5.1 b)) den teilbelackten Film. Vor dem Ätzprozess wird die Probe mit Leitsilber auf einen Probenhalter befestigt und nach dem Aushärten in die Vakuumkammer der Ionenätzanlage (Eigenbau mit Steuergeräten und Ionenstrahlkanone der Firma Ion Tech) eingeschleust. Diese erzeugt in einer Argonatmosphäre von typischerweise 10^{-3} mbar mit Hilfe einer Kaufmann-Quelle [181] in einem ersten Schritt Argon-Ionen, die in einem elektrischen Feld beschleunigt und anschließend über ein Metallfilament neutralisiert werden. Die so beschleunigten Argon-Atome treffen auf die mittig darunter positionierte Probe auf und entfernen abrasiv den freiliegenden Dünnsfilm. Um Rand-Inhomogenitäten im ausgebildeten Argonstrahl auszugleichen, wird die Probe langsam im Strahlprofil rotiert. Ein starker thermischer Eintrag durch die Wechselwirkung der auftreffenden Argonatome mit der Probenoberfläche wird dadurch minimiert, dass der Atomstrahl im Abstand mehrerer Minuten durch eine schützende Metallplatte (*Shutter*) abgeschirmt wird. Mit der aus meiner Masterarbeit [A3] ermittelten Ätzrate von $6,66 \text{ nm min}^{-1}$ wird die Ätzzeit an die jeweilige Schichtdicke angepasst, sodass der Film an den ungeschützten Stellen vollständig abgetragen wird. Das Ergebnis ist ein strukturierter Film in Form der verwendeten Schattenmaske. Der verbliebene Photolack wird wiederum in einem Aceton-Ultraschallbad sowie durch eine Spülung in Isopropanol vollständig entfernt.

5.1.2 Ankontaktierung

Die Strukturierung der Proben ermöglicht eine elektrische Ankontaktierung der Filme sowohl in Vier-Punkt- als auch in Hall-Messgeometrie. Im erstgenannten Fall wird

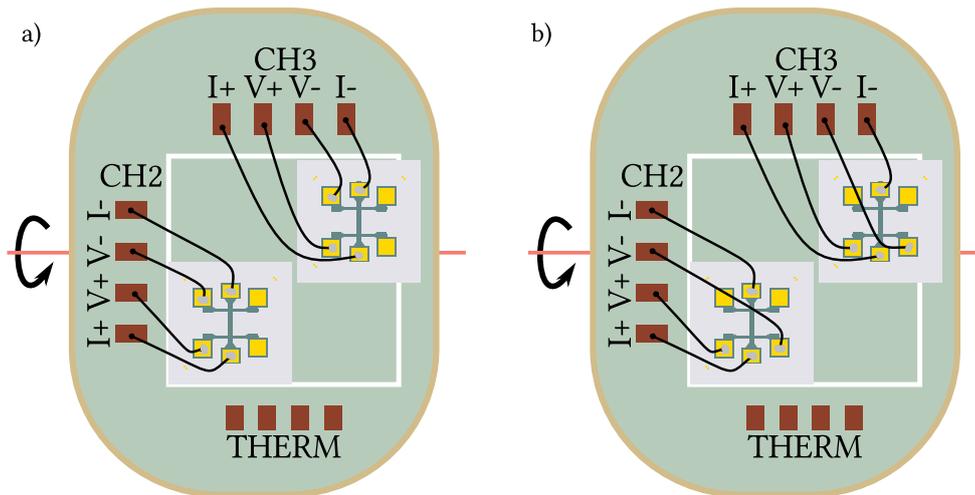


Abbildung 5.2: Schematische Zeichnungen zur Veranschaulichung der Ankontaktierung der strukturierten Proben auf einem PPMS-Messpuck. Es können jeweils zwei Proben (Probenoberfläche $5 \times 5 \text{ mm}^2$) gleichzeitig vermessen werden. a) Ankontaktierung in Vier-Punkt-Messgeometrie: Dabei wird die elektrische Spannung entlang des Messstegs abgegriffen. b) Ankontaktierung in Hall-Messgeometrie: Die elektrische Spannung wird senkrecht zum elektrischen Stromfluss abgegriffen. In beiden Fällen werden abisolierte Kupferdrähte auf den Kontakten auf dem Puck gelötet, zum entsprechenden Goldkontakt auf der Probe geführt und dort mit Leitsilber fixiert. Um zwischen beiden Ankontaktierungsmöglichkeiten zu wechseln, muss jeweils nur der Kontakt „V-“ neu gesetzt werden. Die Kontakte mit der Bezeichnung „THERM“ sind vom Hersteller vorgegeben und werden vom Messgerät verwendet, um die Temperatur in unmittelbarer Nähe zur Probe zu bestimmen.

die von außen induzierte elektrische Potentialdifferenz über die Länge l des Messstegs in Richtung des angelegten elektrischen Stromflusses (vgl. Abb. 5.2 a)), im zweiten Fall senkrecht dazu über die Breite w des Stegs abgegriffen (vgl. Abb. 5.2 b)). Da an den elektrischen Spannungsabgriffen kein externer elektrischer Strom getrieben wird, werden in dieser Messgeometrie keine Kontaktwiderstände mitgemessen.

In beiden Fällen muss die Messstruktur elektrisch leitend ankontaktiert werden, wobei sie gegenüber der Umgebung elektrisch isoliert werden muss. Hierfür wird in dieser Arbeit die Probe zunächst durch doppelseitiges Klebeband elektrisch isolierend auf einen Messpuck angebracht. Ein nominell 0,1 mm dicker Kupferdraht wird einerseits auf den Kontaktflächen des Messpucks gelötet, andererseits probenseitig mittels Leitsilber auf den entsprechenden Goldkontakten fixiert. Nach dem vollständigen Ankontaktieren der Probe wird das Leitsilber mittels Wärmeeintrag über Infrarotlicht ausgehärtet.

Typischerweise werden die Proben jeweils zunächst in der Vier-Punkt-Messgeometrie elektrisch untersucht und anschließend in der Hall-Geometrie vermessen. Hierfür muss – wie in Abbildung 5.2 zu sehen – lediglich der Kontakt „V-“ neu gesetzt werden.

5.1.3 Messung der elektronischen Transporteigenschaften

Die elektronischen Transporteigenschaften der Dünnschichten werden standardmäßig an einem 14-T-PPMS (*Physical Property Measurement System*) der Firma Quantum Designs durchgeführt. Dieses Gerät ermöglicht eine kontrollierte Einstellung der Temperatur im Bereich von 300 K bis 1,8 K mit einer spezifizierten Präzision von $\pm 0,5\%$ [182]. Über eine longitudinal ausgerichtete supraleitende Spule können Magnetfelder von bis zu ± 14 T eingestellt werden [182].

Zur Vermessung der elektronischen Transporteigenschaften wird die eigens dafür angebotene ETO-Einheit (*Electrical Transport Option*) verwendet. Diese kann einen sinusförmigen elektrischen Wechselstrom (AC-Strom) mit Amplituden von 1 nA bis 100 mA in einem Frequenzbereich von etwa 0,1 Hz bis 200 Hz bereitstellen. Über die interne Elektronik des PPMS werden automatisch unerwünschte Beiträge wie beispielsweise frequenzabhängiges Rauschen, elektrische Gleichstrom-Offsets oder Instrumentendrifts weitgehend minimiert. Zusammen mit mehreren Vorverstärkern wird das Grundrauschen der ETO-Einheit auf $10\text{ n}\Omega$ reduziert und so das Messen von elektrischen Widerständen von bis zu $5\text{ G}\Omega$ ermöglicht. [183]

Für alle durchgeführten Messungen wird die Amplitude des elektrischen Stroms mit Werten zwischen $1\text{ }\mu\text{A}$ und $10\text{ }\mu\text{A}$ möglichst gering gehalten, um die einwirkende Joule'sche Leistung ($P = RI^2$) auf die Dünnschichtproben mit vergleichsweise hohen elektrischen Widerständen zu minimieren. Während die Frequenz des Wechselstroms keinen Einfluss auf magnetfeldabhängige Transportuntersuchungen hat, wird dessen Einfluss auf die Messung der temperaturabhängigen elektrischen Widerstände in Kapitel A.4 ausführlicher diskutiert.

Ein Teil der strukturierten Proben wird mithilfe einer zusätzlichen Option, dem horizontalen Rotator, vermessen. Dieser ermöglicht ein Verkippen der Probe relativ zu einem angelegten Magnetfeld in einem Winkelbereich von -10° bis 370° (entlang der eingezeichneten Achse in Abb. 5.2). Dabei entsprechen die Winkel $\alpha = 0^\circ$ und 180° einer senkrechten Ausrichtung des äußeren Magnetfelds zur Filmebene, $\alpha = 90^\circ$ und 270° einer parallelen Ausrichtung.

Mithilfe dieser Konfigurationsmöglichkeiten können die Auswirkungen der Variation jeweils einer der folgenden externen Parameter auf den elektrischen Widerstand untersucht werden: Die Temperatur ($R(T)$ -Messung), das Magnetfeld (MR-/Hall-Messung) sowie die Orientierung der Probe (Rotator-Messungen). Die jeweils anderen freien Parameter werden dabei auf einem konstanten Wert gehalten.

Am PPMS stehen zwei Möglichkeiten zur Verfügung, den Einfluss eines freien Parameters zu untersuchen. Im kontinuierlichen Modus wird dessen Wert kontinuierlich mit einer bestimmten Rate variiert. Messungen finden davon unabhängig statt, was

zur Folge hat, dass sich der freie Parameter während einer Einzelmessung, die je nach Messfrequenz eine Zeit von 0,5 s bis 2,5 s benötigen kann, nicht fixiert ist. Somit wird jeder Datenpunkt über einen gewissen Wertebereich des freien Parameters gemittelt bestimmt, wobei mit steigender Rate der Veränderung des freien Parameters die Breite des Wertebereichs und damit die mögliche Messungenauigkeit zunimmt. Diesem Nachteil steht der Vorteil gegenüber, dass innerhalb kurzer Zeit viele Datenpunkte aufgenommen werden können. Dies ist beim zweiten Modus, dem sogenannten *Perform-N-Measurements-Modus*, anders: Hier wird der zu untersuchende freie Parameter zunächst auf den jeweiligen Wert stabilisiert, ehe die Einzelmessung stattfindet. Dadurch benötigt dieser Modus mehr Zeit, dafür können auch mehrere Messpunkte beim gleichen Wert des externen Parameters gesetzt werden, um später darüber mitteln zu können.

Temperaturabhängige Messungen werden im Rahmen dieser Arbeit typischerweise bei moderaten Abkühlraten im kontinuierlichen Modus aufgenommen. Beim Vergleich der beiden Modi resultiert hier eine Abweichung der elektrischen Widerstandsverläufe, die üblicherweise geringer als die Messgenauigkeit ist. Für magnetfeldabhängige Messungen wird der *Perform-N-Measurements-Modus* verwendet und jeweils über drei Messpunkte gemittelt.

5.2 Klassische elektrische Leitfähigkeit

Die spezifische Leitfähigkeit σ beschreibt allgemein den Zusammenhang zwischen einem angelegten elektrischen Feld E_{el} und der resultierenden elektrischen Stromdichte j . Im einfachsten Modell eines isotropen Materials mit longitudinaler Beziehung zwischen elektrischem Feld und elektrischer Stromdichte wird die spezifische Leitfähigkeit zu einer skalaren Größe:

$$\sigma = \frac{|j|}{|E_{\text{el}}|}. \quad (5.1)$$

Der lineare Zusammenhang zwischen elektrischer Feldstärke und Stromdichte ist auch als Ohm'sches Gesetz bekannt. Der resultierende elektrische Stromfluss entspricht in diesem Fall der Summe der jeweiligen transportierten Ladungen q multipliziert mit deren Geschwindigkeitskomponenten v_i [184]. Mittels der Ladungsträgerdichte n und einer durchschnittlichen Driftgeschwindigkeit v_{drift} ergibt sich:

$$j = nq v_{\text{drift}}. \quad (5.2)$$

Die einfachste Beschreibung der elektrischen Leitfähigkeit liefert das sogenannte Drude-Modell [185]. Hierbei werden frei bewegliche Elektronen als ein Gas nicht

wechselwirkender Ladungsträger angenommen, die in einem angelegten elektrischen Feld beschleunigt werden. Aufgrund von Streuprozessen nach einer charakteristischen Transportzeit τ_{tr} (Relaxationszeit) stellt sich im Gleichgewichtszustand ein konstanter elektrischer Stromfluss ein. Die spezifische Leitfähigkeit berechnet sich in diesem Modell zu

$$\sigma = \frac{nq^2\tau_{\text{tr}}}{m^*} = nq\mu, \quad (5.3)$$

wobei m^* der effektiven Masse der Ladungsträger und

$$\mu = \frac{|\mathbf{v}_{\text{drift}}|}{|E_{\text{el}}|} = \frac{q\tau_{\text{tr}}}{m^*} \quad (5.4)$$

deren Mobilität entspricht². In dieses Modell gehen viele Annahmen ein: beispielsweise werden die Elektronen als voneinander unabhängig angenommen, wobei deren mittlere freie Weglänge größer als die Materie-Wellenlänge der Elektronen ist (Ioffe-Regel-Mott-Prinzip: $l_{\text{mf}} \gg \lambda = \hbar p^{-1}$, mit dem Elektronenimpuls p [186, 187]), wodurch sich die Bewegung der Elektronen zwischen zwei Stoßprozessen mit klassischen Laufbahnen beschreiben lassen. Dennoch gilt die Drude-Theorie als gute Näherung.

Die quantenmechanische Erweiterung des Modells durch Sommerfeld [188] oder auch die umfangreiche Beschreibung des elektrischen Transports auf Basis der räumlichen und zeitlichen Änderung der Fermiverteilungsfunktion im Rahmen der sogenannten Boltzmann-Transportgleichung erlauben zwar weitreichendere Einblicke in den mikroskopischen Ablauf des elektrischen Stromtransports, lassen sich aber in vielen Fällen auf Gleichung 5.3 reduzieren. Als ein wesentlicher Unterschied ändert sich dabei die Relaxationszeit τ_{tr} , die in der Theorie nach Drude als Stoßzeit aller Elektronen nicht genauer spezifiziert wird, zu einer Relaxationszeit der Elektronen mit der Fermienergie E_{F} an der Fermifläche $\tau_{\text{tr}}(E_{\text{F}})$. [168, 184]

Relaxationen können aufgrund unterschiedlicher Streumechanismen stattfinden. Im Rahmen der Einelektron-Näherung, bei der Wechselwirkungen zwischen Elektronen aufgrund von orthogonalen Eigenfunktionen vernachlässigt werden, unterscheidet man im Wesentlichen zwei Beiträge: Streuungen an Defekten mit der charakteristischen Zeit $\tau_{\text{el-d}}$ sowie Streuungen an Phononen mit der charakteristischen Zeit $\tau_{\text{el-ph}}$. Während die Abweichungen vom periodischen Gitterpotential durch Defekte zu einem weitestgehend temperaturunabhängigen Beitrag führt, ist der Beitrag der Elektronen-

² Das Drude-Modell liefert auch einen Ausdruck zur Beschreibung der Wechselstromleitfähigkeit. Mit einem angelegten elektrischen Wechselfeld der Form $E_{\text{el}} = E_0 \exp(-i\omega t)$ und der Frequenz ω resultiert der Ausdruck [167]:

$$\sigma = \frac{ne^2\tau}{m^*} \frac{1}{1 - i\omega\tau}. \quad (5.5)$$

Da ich in dieser Arbeit nur mit geringen Messfrequenzen gearbeitet habe, gehe ich im Folgenden von einer Gleichstromleitfähigkeit aus.

Phonon-Streuung allgemein abhängig von der Temperatur. Deren Streurrate kann oberhalb der materialabhängigen Debye-Temperatur θ_D mit einer direkten Proportionalität ($\tau_{\text{el-ph}}^{-1} \propto T$), unterhalb davon mit einer polynomiellen Abhängigkeit ($\tau_{\text{el-ph}}^{-1} \propto T^5$) von der Temperatur T beschrieben werden. Die Temperaturabhängigkeit des spezifischen Widerstands ($\rho(T) = 1/\sigma(T)$) kann in Kombination aus der Matthiessen'schen Regel und der auf der Boltzmann-Transportgleichung basierenden Bloch-Grüneisen-Theorie beschrieben werden [167, 189, 190]:

$$\begin{aligned} \rho(T) &= \rho_{\text{el-d}}(0) + \rho_{\text{el-ph}}(T), \\ \rho_{\text{el-ph}}(T) &= \alpha_{\text{el-ph}} \left(\frac{T}{\theta_D} \right)^n \int_0^{\theta_D/T} \frac{x^n}{(e^x - 1)(1 - e^{-x})} dx. \end{aligned} \quad (5.6)$$

Dabei ist $\alpha_{\text{el-ph}}$ die Elektron-Phonon-Kopplungskonstante und n ein Exponent, der üblicherweise einen Wert von fünf annimmt, durch Berücksichtigung anderer Wechselwirkungen unter bestimmten Umständen aber auch im Bereich zwischen zwei und fünf liegen kann [189, 190]. [167, 191]

Im Rahmen dieser Theorie wird der elektrische Transport einfacher dreidimensionaler Metalle sehr gut beschrieben. Im Folgenden werden Auswirkungen eines externen Magnetfelds auf den elektrischen Transport diskutiert. [167, 168, 184, 191, 192]

5.2.1 Magnetwiderstand

Ein zusätzlich angelegtes magnetisches Feld hat auf die longitudinale Bewegung von Ladungsträgern keinen Einfluss, wohingegen in jede andere Bewegungsrichtung der Elektronen anteilig die Lorentzkraft wirkt, die die Ladungsträger ohne weitere Wechselwirkungen auf Spiralbahnen lenkt. Im weiteren Verlauf gehe ich von einem senkrecht entlang der z -Richtung einwirkenden Magnetfeld B_z und einem in x -Richtung angelegten elektrischen Feld E_x aus. Der elektrische Widerstand ist nun keine richtungsunabhängige Größe mehr, sondern eine tensorielle Größe, wobei in der beschriebenen Messanordnung die Komponenten R_{xx} den longitudinalen und R_{xy} den transversalen elektrischen Widerstand beschreiben. Der erste Fall entspricht dem magnetoresistiven Effekt (*Magnetoresistance*, MR), der Zweite dem Hall-Widerstand.

Ein allgemeiner Ausdruck für die longitudinale elektrische Leitfähigkeit zweidimensionaler Systeme in Anwesenheit eines magnetischen Feldes lautet [193, 194]:

$$\sigma_{xx}(T, B) = \frac{R_{s,xx}(T, B)}{R_{s,xx}^2(T, B) + R_{s,xy}^2(T, B)}. \quad (5.7)$$

Ist der Schichtwiderstand $R_{s,xx}$ (s. Gl. 5.21) wesentlich größer als der Hall-Schichtwiderstand ($R_{s,xx} \gg R_{s,xy}$), vereinfacht sich der Ausdruck zu: $\sigma_{xx}(T,B) \approx R_{s,xx}^{-1}(T,B)$. Transversale Störbeiträge aufgrund der Messgeometrie können durch eine Symmetrisierung der Daten bereinigt werden:

$$R_{xx}(B) = \frac{R_{xx}(B) + R_{xx}(-B)}{2}. \quad (5.8)$$

Äquivalent dazu werden longitudinale Störbeiträge, die erneut prinzipbedingt aufgrund der Messgeometrie auf R_{xy} einwirken können, durch eine Antisymmetrisierung eliminiert:

$$R_{xy}(B) = \frac{R_{xy}(B) - R_{xy}(-B)}{2}. \quad (5.9)$$

Hall-Widerstand

In einem räumlich begrenzten System der Länge l , der Breite w und der Dicke t mit nur einer Sorte an Ladungsträger und Einbandverhalten baut sich aufgrund der Lorentzkraft senkrecht zur Strom- und Magnetfeldrichtung ein elektrisches Feld E_y auf. Im dynamischen Gleichgewicht gilt:

$$qv_{\text{drift},x}B_z = qE_y. \quad (5.10)$$

Entlang diesem elektrischen Querfeld E_y kann die sogenannte Hall-Spannung $U_H \equiv U_y$ abgegriffen und daraus der Hall-Widerstand

$$R_H \equiv R_{xy}(B_z) = \frac{U_H}{I_x} = \frac{B_z}{nqt} = \frac{A_H}{t} B_z, \quad (5.11)$$

berechnet werden, wobei $A_H = (nq)^{-1}$ als Hall-Konstante bezeichnet wird. Der Hall-Widerstand als Funktion des Magnetfelds zeigt dann im einfachsten Fall einen linearen Zusammenhang, aus dessen Steigung $s = \Delta R_H / \Delta B$ sich die Flächen- bzw. Volumenladungsträgerdichte ergeben:

$$n_{2D} = \frac{1}{sq} \quad [\text{m}^{-2}], \quad (5.12a)$$

$$n_{3D} = \frac{n_{2D}}{t} = \frac{1}{sqt} \quad [\text{m}^{-3}]. \quad (5.12b)$$

Magneto-resistiver Effekt

Durch ein äußeres magnetisches Feld B_z werden die Ladungsträger auf stabile Spiralbahnen gelenkt, sofern keine weiteren Wechselwirkungen (insbesondere Streuungen beispielsweise auch an den Rändern der Probe) stattfinden. Diese Ladungsträger tragen

folglich nicht zum Stromtransport bei und führen somit zu einem erhöhten elektrischen Widerstand $R_{xx}(B)$. Durch Streuprozesse auf einer Zeitskala τ_{tr} wird diese gebundene Bewegung der Elektronen unterbrochen. Dabei werden die Elektronen in beliebige Richtung abgelenkt. Das Verhältnis aus Streurrate τ_{tr}^{-1} und der Zyklotronfrequenz

$$\omega_c = \frac{qB_z}{m^*} \quad (5.13)$$

gibt an, wie groß der Einfluss der Lorentzkraft ist. Ist die Relaxationsstreurrate deutlich größer als die Zyklotronfrequenz ($\tau_{tr}^{-1} \gg \omega_c$), so streuen die Ladungsträger mit Beginn der gebundenen spiralen Bewegung. Die Auslenkung der Ladungsträger und damit der Einfluss des Magnetfelds auf den elektrischen Widerstand wird sehr klein und dadurch vernachlässigbar. Diese Abschätzung ist auch als Kohler'sche Regel bekannt. [184]

Im einfachen Modell nach Drude kann das Produkt $\omega_c \tau_{tr}$ auch als μB_z ausgedrückt werden. Für den Magnetwiderstand, der über

$$\text{MR} = \frac{\rho_{xx}(B) - \rho_{xx}(0)}{\rho_{xx}(0)} = \frac{R_{xx}(B) - R_{xx}(0)}{R_{xx}(0)} \quad (5.14)$$

definiert ist, ergibt sich

$$\text{MR} \propto \begin{cases} (\mu B_z)^2 & \mu B_z < 1, \\ C & \mu B_z > 1, \end{cases} \quad (5.15)$$

wobei C eine Konstante darstellt [195]. Je größer der spezifische Widerstand eines Materials (geringe Mobilität), desto geringer ist der Einfluss des angelegten Magnetfelds.

Nachdem bisher nur einfache dreidimensionale Systeme betrachtet wurden, soll im folgenden Abschnitt darauf eingegangen werden, welche Auswirkungen die Einschränkung einer Dimension auf den elektrischen Transport hat.

5.2.2 Elektrischer Transport dünner Filme

Die im Rahmen dieser Arbeit hergestellten Dünnsfilme sind naturgemäß in z -Richtung räumlich eingeschränkt. Propagierende Elektronen haben dadurch eine erhöhte Wahrscheinlichkeit, an den Grenzflächen des Films zu streuen. Dieser Oberflächenbeitrag kann als ein zusätzlicher spezifischer Widerstand ρ_s aufgefasst werden. Aufgrund der Matthiessen'schen Regel – deren Anwendung bei Dünnsfilmen trotz einer möglichen gegenseitigen Beeinflussung der Beiträge weiterhin eine gute Näherung ist [108, 196] – trägt dieser Beitrag additiv zum Bulkwiderstand ρ_b (Gl. 5.6) bei [191]. Der spezifische Filmwiderstand ρ_f ist demnach

$$\rho_f = \rho_b + \rho_s = \rho_{el-d} + \rho_{el-ph} + \rho_s. \quad (5.16)$$

Der Einfluss der Grenzfläche wird umso größer, je kleiner die Schichtdicke im Verhältnis zur mittleren freien Weglänge ist: $\kappa = t/l_{\text{mfp}}$. Im Grenzfall einer unendlich dicken Schicht bei gleichbleibender mittleren freien Weglänge ($\kappa \rightarrow \infty$) wird $\rho_s = 0$ und damit $\rho_f = \rho_b$.

Die Streuung der Elektronen an Grenzflächen können sowohl elastischer als auch inelastischer Natur sein, wobei das Verhältnis von elastischer zur inelastischer Streuung als Spekularität p einer Grenzfläche bezeichnet wird. Der Einfluss der Grenzfläche wird umso größer, je mehr inelastische Streuprozesse an der Grenzfläche stattfinden ($p \rightarrow 0$). Mithilfe eines einfachen Modells kann ausgehend von der Boltzmann-Transport-Gleichung der Beitrag der Grenzflächenstreuung auf den spezifischen Widerstand abgeschätzt werden [197, 198]:

$$\frac{\sigma_f}{\sigma_b} = 1 - \frac{3}{2\kappa}(1-p) \int_1^\infty (\theta^{-3} - \theta^{-5}) \frac{1 - \exp(-\kappa\theta)}{1 - p \exp(-\kappa\theta)} d\theta. \quad (5.17)$$

Dabei ist θ eine Integrationsvariable. Diese Relation ist als Fuchs-Gleichung bekannt [198]. Die Theorie kann noch um unterschiedliche Spekularitäten für die beiden Grenzflächen des Films erweitert werden [199, 200], auf die aber in dieser Arbeit nicht näher eingegangen werden soll.

Im bisher beschriebenen Modell des elektrischen Transports wird die Filmoberfläche als eine perfekte homogene Schicht angenommen. Diese Annahme ist in der Realität meist nicht zutreffend. Die Rauigkeit der Filmoberfläche kann ebenfalls einen weiteren Einfluss auf den spezifischen Widerstand haben. Eine erste einfache Modellierung einer Oberflächenrauigkeit kann mathematisch über eine mittlere Schichtdicke $\langle t \rangle$ mit einer überlagernden sinusförmigen Abhängigkeit geschehen:

$$t(x) = \langle t \rangle + h \sin\left(\frac{2\pi x}{s}\right). \quad (5.18)$$

Dabei wird der elektrische Stromfluss in x -Richtung angenommen und h bzw. s beschreiben die Amplitude sowie Periodizität der Oberflächenrauigkeit. Das Modell nach Fuchs kann somit folgendermaßen für einen Leiter der Länge L erweitert werden [201]:

$$\frac{\sigma_f(t(x))}{\sigma_b} = 1 - \frac{3}{2} \frac{l_{\text{mfp}}}{t(x)} (1-p) \int_1^\infty (\theta^{-3} - \theta^{-5}) \frac{1 - \exp\left(-\frac{t(x)}{l_{\text{mfp}}}\theta\right)}{1 - p(x) \exp\left(-\frac{t(x)}{l_{\text{mfp}}}\theta\right)} d\theta, \quad (5.19)$$

$$\frac{\langle \sigma_f(\langle t \rangle) \rangle}{\sigma_b} = \frac{L}{\langle t \rangle} \left[\int_0^L \frac{\sigma_b}{\sigma_f(t(x))t(x)} dx \right]^{-1}. \quad (5.20)$$

Diese Gleichung ist als Namba-Fuchs-Gleichung bekannt [202]. [191]

An dieser Stelle möchte ich noch eine Konvention einführen, die bei der Diskussion über elektrische Widerstände von Dünnschichten häufig getroffen wird. Bezieht man den absoluten elektrischen Widerstand eines quaderförmigen Messstegs auf dessen Länge l und Breite w , erhält man den sogenannten Schichtwiderstand [144]:

$$R_s = \rho_{2D} = \frac{\rho_{3D}}{t} = R \frac{w}{l}. \quad (5.21)$$

Damit entspricht dieser dem dreidimensionalen spezifischen Widerstand bezogen auf die Schichtdicke t des Systems und formell dem zweidimensionalen spezifischen Widerstand. Zur Unterscheidung der formal gleichen Einheit von R_s und R wird im weiteren Verlauf erstgenannte mit Ω_s angegeben.

5.2.3 Diffusionsstrom

Metalle mit einer hohen Störstellendichte (große Unordnung) zeichnen sich im Allgemeinen durch kleine Transportstreuzeiten τ_{tr} und damit durch kleine mittlere freie Weglängen aus. Anstelle ballistischer Bewegungen der Elektronen zwischen vergleichsweise seltenen Streueignissen kann der elektrische Transport in diesen Systemen besser als Diffusionsprozess aufgefasst werden [184]. Streueignisse sind dann nicht mehr als unabhängig voneinander zu betrachten, wodurch neue Transport-Phänomene im System hervorgerufen werden können [184]. Auf diese möchte ich im Folgenden genauer eingehen. Zunächst möchte ich jedoch einige wichtige Aspekte zusammenfassen, die mit der diffusiven Beschreibung des elektrischen Transports einhergehen. Ein maßgeblicher Parameter zur Beschreibung der Diffusion ist dabei natürlich die Diffusionskonstante D , die sich in Abhängigkeit der Dimension d über die Fermigeschwindigkeit v_F und Transportstreuzeit τ_{tr} beschreiben lässt:

$$D = \frac{v_F^2 \tau_{tr}}{d}. \quad (5.22)$$

Eine ausführlicher Herleitung des Ausdrucks, der an die kinetische Gastheorie erinnert, ist in Kapitel A.2 zu finden. Zur experimentellen Bestimmung des Wertes der Diffusionskonstante muss damit neben der Transportstreuzeit τ_{tr} , die beispielsweise über die Drude-Theorie bestimmt werden kann, auch die Fermigeschwindigkeit v_F des System bekannt sein. Letztgenannte Größe kann über den Fermi-Wellenzahlvektor k_F abgeschätzt werden, welcher im dreidimensionalen Modell freier Elektronen (dessen Gültigkeit ich für meine Dünnschichtproben in einem späteren Kapitel aufzeigen werde) allein von der Ladungsträgerdichte n abhängt [157, 184]:

$$k_F = (3\pi^2 n)^{\frac{1}{3}}. \quad (5.23)$$

Für die Relation zwischen Fermi-Wellenzahlvektor und Fermigeschwindigkeit gilt:

$$v_F = \frac{\hbar k_F}{m^*}. \quad (5.24)$$

Des Weiteren lässt sich hiermit die mittlere freie Weglänge des Systems abschätzen [118, 184, 194, 203]:

$$l_{\text{mfp}} = v_F \tau_{\text{tr}} = \hbar k_F \frac{\sigma}{nq^2}. \quad (5.25)$$

Aus der Diffusionskonstante D und der charakteristischen Relaxationszeit τ_i eines Streutyps i können zwei weitere charakteristische Größen gebildet werden: Die mittlere Distanz l_i (Diffusionslänge), die Ladungsträger im Mittel zwischen zwei Streueignissen des Streutyps auf ihren Diffusionspfaden zurücklegen:

$$l_i = \sqrt{D\tau_i}, \quad (5.26)$$

sowie ein charakteristisches Magnetfeld

$$B_i = \frac{\hbar}{4eD\tau_i} = \frac{\hbar}{4el_i^2}, \quad (5.27)$$

welches proportional zur entsprechenden Streurrate ist und in späteren Diskussionen von zentraler Bedeutung sein wird.

5.3 Quanteninterferenzen

Unordnung in Materialien ist eine Grundvoraussetzung für Quanteninterferenzen (QI) und damit unter anderem auch für lokalisierendes Verhalten im elektrischen Transport. Der Begriff der Lokalisierung geht auf Anderson [204] zurück, der erstmals aufzeigte, dass Elektronen eines vermeintlich leitfähig angenommenen Systems ab einer kritischen Störstellendichte lokalisieren. Damit erweiterte dieser das klassische Bild von Elektronen, die in Form von Bloch-Wellen nach der Streuzzeit τ_{tr} zwar ihren Impuls ändern, deren Wellenfunktionen jedoch weiterhin ausgedehnt (*extended*) bleiben. Bei einer ausreichenden Störstellendichte nimmt dementsprechend die Einhüllende der Wellenfunktion $\psi(\mathbf{r})$, ausgehend vom Ort \mathbf{r}_0 , exponentiell ab:

$$|\psi(\mathbf{r})| \propto \exp\left(-\frac{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_0|}{\xi}\right). \quad (5.28)$$

Dabei entspricht ξ der Lokalisierungslänge [205]. Am Beispiel eines eindimensionalen Leiters ist diese Lokalisierung der Elektronen offensichtlich [187]: Bereits eine Störstel-

le führt hier zu einem exponentiellen Abfall der Wellenfunktion der Elektronen und folglich bei ausreichender Systemgröße zu isolierendem Verhalten [206]. Der Effekt des exponentiellen Abfalls aufgrund von Unordnung wird als starke Lokalisierung oder auch Anderson-Lokalisierung bezeichnet. Neben Bloch-, Mott- und Peierls-Isolatoren³ wird ein eigentlich als leitfähig angenommenes System, das aufgrund von Unordnung isolierendes Verhalten aufweist, als Anderson-Isolator klassifiziert.

Die starke Anfälligkeit des elektrischen Transports eines eindimensionalen Systems zeigt sich bereits anhand von Überlegungen zur Abhängigkeit des elektrischen Widerstands R von der Systemgröße l . Ausgehend von einem d -dimensionalen Hyperwürfel mit Linearausdehnung l ergibt sich für den elektrischen Widerstand

$$R = \frac{\rho}{l^{d-2}}. \quad (5.29)$$

Daraus ist ersichtlich, dass bei isotroper Ausdehnung der elektrische Widerstand eines eindimensionalen (1D) Leiters zunimmt, der einer zweidimensionalen (2D) Schicht konstant bleibt und der eines dreidimensionalen (3D) Systems abnimmt. Einem System wird ein metallischer Grundzustand zugesprochen, wenn bei unendlicher räumlicher Ausdehnung ($l \rightarrow \infty$) als Reaktion auf ein statisch angelegtes elektrisches Feld ein elektrischer Stromfluss resultiert. Physikalisch gesehen ist die Systemgröße indirekt proportional zur Temperatur ($T \propto \epsilon \propto l^{-1}$, mit der Energieskala ϵ), weswegen zur Klassifizierung des Grundzustands experimentell meist $T \rightarrow 0$ K betrachtet wird [207]. Aus diesen Überlegungen zur Skalierung ist damit ersichtlich, dass ein eindimensionales System bereits ohne Unordnung keinen metallischen Grundzustand aufweist. Ein dreidimensionales geordnetes System zeigt dagegen einen metallischen Grundzustand. Um hier durch Unordnung lokalisierendes Verhalten zu induzieren, ist eine kritische Störstellendichte notwendig. Eine zweidimensionale Schicht stellt einen interessanten Grenzfall dar und liegt im ungestörten Zustand zwischen einem isolierenden und metallischen Grundzustand.

Neben der starken Lokalisierung kann an 2D-Systemen auch ein schwächerer Effekt bei minimaler Unordnung beobachtet werden. Mit diesem, als schwache Lokalisierung (*Weak Localization*, WL) bezeichneten Effekt will ich mich im weiteren Verlauf eingehender befassen. Aufgrund der kleinen mittleren freien Weglänge lassen sich die Wege propagierender Elektronen auf großen Längenskalen über Diffusionspfade beschreiben. Dadurch wird die Wahrscheinlichkeit, dass ein Elektron – nach einer beliebigen Anzahl an Streueignissen – ein zweites Mal an einem der Streuzentren

³ Blochisolatoren weisen eine Energielücke zwischen Valenzband und Leitungsband auf, bei Mott-Isolatoren wird die elektrische Leitfähigkeit im Leitungsband durch eine starke Elektron-Elektron-Wechselwirkung unterdrückt und Peierls-Isolatoren zeigen aufgrund von Gitterverzerrungen isolierendes Verhalten.

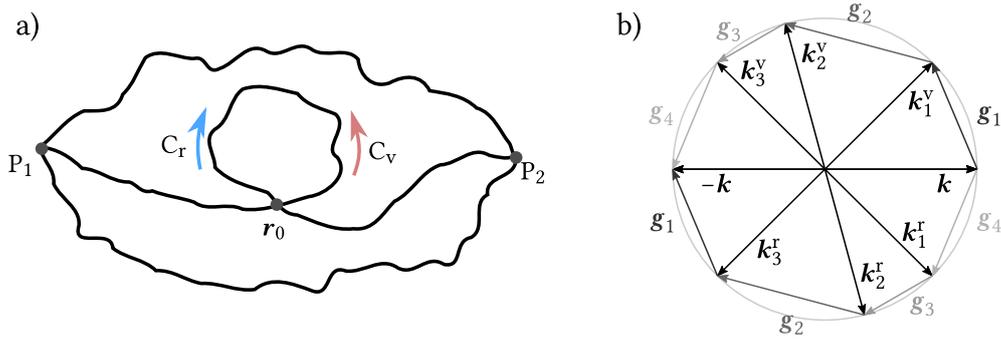


Abbildung 5.3: *Illustration der Entstehung einer Quanteninterferenz.* a) Zwischen den Punkten P_1 und P_2 gibt es unterschiedliche Diffusionspfade, wobei auch Pfade mit geschlossenen Schleifen (mittlerer Pfad) möglich sind. Das propagierende Elektron streut dabei zwei Mal am gleichen Streuzentrum am Ort r_0 . Die Schleife kann in zwei Richtungen durchlaufen werden, wobei C_r der Zeit-invertierten von C_v entspricht. Streut das Elektron ausschließlich elastisch, so sind die Amplituden der hin- und rücklaufenden Wellenfunktionen zueinander phasenkohärent, wodurch diese miteinander interferieren können. Abbildung in Anlehnung an [184]. b) Veranschaulichung einer möglichen Streuung eines Elektrons aus dem Zustand \mathbf{k} in den Zustand $-\mathbf{k}$ (Fan-Diagramm), nach [208]. Der Zustand \mathbf{k} eines Elektrons kann beispielsweise über die kohärenten Zustandsänderungen g_1, g_2, g_3 und g_4 in den Zustand $-\mathbf{k}$ übergehen. Mit der gleichen Wahrscheinlichkeit erfährt der Zustand \mathbf{k} die kohärenten Zustandsänderungen in umgekehrter Reihenfolge g_4, g_3, g_2 und g_1 nach $-\mathbf{k}$. Aufgrund der gleichen Phase im Zustand $-\mathbf{k}$ können die Elektronen der beiden Pfade miteinander interferieren.

streut, erhöht (vgl. Abb. 5.3). Betrachtet man eine Blochwelle, die einmal mit der Amplitude A_1 über den Pfad C_1 und einmal mit der Amplitude A_2 über den Pfad C_2 zum Ausgangsstreuer zurückkehren kann, so gilt für die Wahrscheinlichkeit dieses Blochelektrons, entlang einer der beiden Pfade zu laufen [208]:

$$|A_1 + A_2|^2 = \underbrace{|A_1|^2 + |A_2|^2}_{\text{klassisch, nach Boltzmann}} + \underbrace{A_1^* A_2 + A_1 A_2^*}_{\text{quantenmechanischer Interferenz-Term}}. \quad (5.30)$$

Für beliebige Pfade kann der Interferenz-Term sowohl positiv als auch negativ sein und mittelt sich daher heraus. Entspricht allerdings A_2 der Amplitude des zeit-invertierten Pfads von A_1 , so kann es zur Interferenz der beiden Blochwellen kommen, wodurch sich die Wahrscheinlichkeit, dass sich das Elektron in einer der beiden Pfade befindet, um den Beitrag $2|A|^2$ erhöht. Damit kann das Elektron an dieser Stelle lokalisieren, wodurch der elektrische Widerstand im Vergleich zur klassischen Beschreibung des Streuprozesses erhöht wird. Grundvoraussetzung für diese sogenannte QI ist, dass die Zeit-Inversions-Symmetrie erhalten bleibt. Dies bedeutet unter anderem, dass die Phase des Blochelektrons während aller Stoßprozesse innerhalb der geschlossenen Schleife streng erhalten bleiben muss. [205]

Im Impulsraum ergibt sich folgendes Bild: Der Zustand \mathbf{k} einer Bloch-Welle mit der Amplitude A_1 geht in einer Reihe von Streuereignissen $\mathbf{k} \rightarrow \mathbf{k}_1^v \rightarrow \mathbf{k}_2^v \rightarrow \dots \rightarrow \mathbf{k}_n^v \equiv -\mathbf{k}$ durch die kohärenten Zustandsänderungen $\mathbf{g}_1, \mathbf{g}_2, \dots, \mathbf{g}_n$ in den Zustand $-\mathbf{k}$ über. Mit der gleichen Wahrscheinlichkeit kann der Zustand die kohärenten Zustandsänderungen in umgekehrter Reihenfolge durchlaufen ($\mathbf{g}_n, \mathbf{g}_{n-1}, \dots, \mathbf{g}_1$), wodurch sich der Zustand über die Streuereignisse $\mathbf{k} \rightarrow \mathbf{k}_1^r \rightarrow \mathbf{k}_2^r \rightarrow \dots \rightarrow \mathbf{k}_n^r \equiv -\mathbf{k}$ umkehrt. Aufgrund der gleichen Streuereignisse (nur in umgedrehter Reihenfolge) sind beide Amplituden im finalen Zustand $-\mathbf{k}$ identisch, wodurch Interferenzeffekte ermöglicht werden. Die Zustände \mathbf{k} und $-\mathbf{k}$ erinnern an den Formalismus von Cooper-Paaren, weswegen die gegenseitige Wechselwirkung des hin- und zurückgestreuten Teilchens als Cooperon bezeichnet wird. [208, 209]

Bisher wurden nur Streuprozesse betrachtet, bei denen die Orientierung des Elektronenspins erhalten bleibt. Sogenannte Spin-Bahn-Streuungen mit der charakteristischen Zeit τ_{so} (*Spin-Orbit*, SO), die sich durch ein Umklappen des Spins auszeichnen, können zum Auflegen einer zusätzlichen Phase $\varphi = 2\pi$ zwischen den Wellenfunktionen in der geschlossenen Schleife führen. Nachdem für Spin-1/2-Teilchen eine Rotation von 4π notwendig ist, um die Spin-Funktion in sich selbst zurückzuführen, bewirkt dies eine destruktive Selbstinterferenz. Die Aufenthaltswahrscheinlichkeit innerhalb der Schleife wird null, wodurch die elektrische Leitfähigkeit des Systems verglichen mit der klassischen Beschreibung erhöht wird. In Analogie zur schwachen Lokalisierung wird dies als schwache Antilokalisierung (*Weak Antilocalization*, WAL) bezeichnet.

Somit sind drei Zeitskalen wichtig, die über das Auftreten und den Verlauf der QI entscheiden, wobei ich im weiteren Verlauf jeweils deren Streuraten als ein Maß für die Stärke des jeweiligen Streuereignisses vergleichen möchte. QI können auftreten, wenn die elastische (phasenkohärente) Streurrate τ_e^{-1} wesentlich größer als die dephasierende Streurrate τ_φ^{-1} ist. Somit bleibt die Phase der Blochelektronen über viele Streuprozesse erhalten, ehe ein dephasierender Streuprozess die Phasenkohärenz zerstört und damit Selbstinterferenzen unterbindet. Unter dem Begriff der dephasierenden Streuung werden unterschiedliche Streuereignisse, wie beispielsweise die Wechselwirkungen mit Phononen oder Elektronen zusammengefasst [184, 210]. Sie ist eng mit der inelastischen Streuung verbunden, aber nicht notwendigerweise identisch: beispielsweise können sich deren Streuraten in niedrig-dimensionalen Systemen und im diffusen Regime aufgrund von Streuprozessen mit einem geringen Energieübertrag (z. B. Nyquist-Elektron-Elektron-Wechselwirkung) unterscheiden. Während die elastische Streurrate weitestgehend unabhängig von der Temperatur ist, nimmt die dephasierende Streurrate mit sinkender Temperatur ab, weswegen QI-Effekte überwiegend bei tiefen Temperaturen auftreten. Dominiert die Spin-Bahn-Streuung mit einer höheren Streurrate τ_{so}^{-1} die dephasierenden Streurrate τ_φ^{-1} , so tritt WAL in den Vordergrund. Abbil-

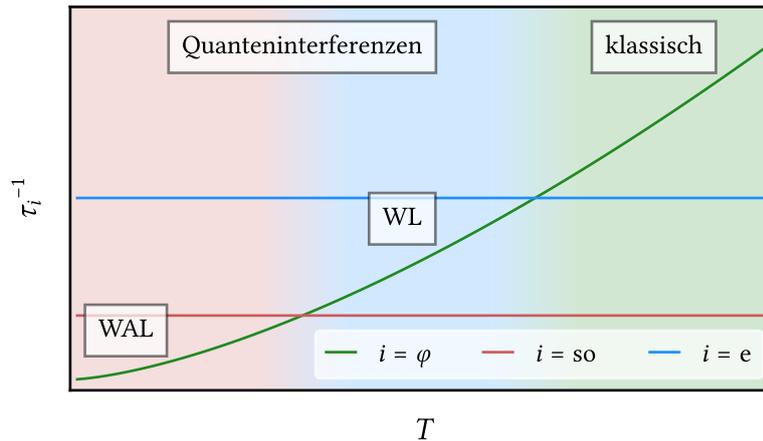


Abbildung 5.4: Veranschaulichung der Temperaturabhängigkeit der Streuraten, die zur Modifikation des klassischen Transports über quantenmechanische Korrekturen führen. Während die elastische Streuraten τ_e^{-1} (blau) und die Spin-Bahn-Streuraten τ_{so}^{-1} (rot) weitestgehend temperaturunabhängig sind, weist die dephasierende Streuraten τ_ϕ^{-1} (grün) im Allgemeinen eine Temperaturabhängigkeit auf, die in dieser Abbildung mit $T^{3/2}$ und einer endlichen Sättigung bei tiefen Temperaturen dargestellt ist. Dominieren dephasierende Streuprozesse den elektrischen Transport, so ist ein klassisches Verhalten zu erwarten (grün eingefärbter Bereich). Dominieren elastische Streuprozesse den elektrischen Transport, so kann es zu QI kommen, wobei das Verhältnis zwischen dephasierender und Spin-Bahn-Streuraten zur Unterscheidung zwischen WL und WAL führt. Ist die dephasierende Streuraten größer als die Spin-Bahn-Streuraten, so ist man im Bereich der WL (blau hinterlegt), ist das Verhältnis umgekehrt, so kann WAL einsetzen (rot hinterlegt). Die Übergänge im Verhalten von klassisch zu WL bzw. von WL zu WAL sind durch entsprechende Farbverläufe angedeutet.

dung 5.4 illustriert exemplarisch die unterschiedlichen Temperaturabhängigkeiten der drei wichtigsten Streuraten zur Beschreibung der Quantenkorrektur des elektrischen Transports, wodurch der Übergang vom klassischen Transport hin zur WL oder WAL bedingt ist.

Der Verlauf von $\tau_\phi^{-1}(T)$ bestimmt damit den temperaturabhängigen Einfluss der WL bzw. WAL. Da bei tiefen Temperaturen verhältnismäßig mehr elastische Streuprozesse stattfinden, erhöht sich mit sinkender Temperatur die Wahrscheinlichkeit der Selbstinterferenz, wodurch im Fall der WL immer mehr Elektronen lokalisieren und der elektrische Widerstand ansteigt, während im Fall der WAL vermehrt das Ausbilden von Schleifen durch destruktive Interferenz unterbunden wird, wodurch die Elektronen delokalisieren und der elektrische Widerstand abnimmt.

Der Magnetotransport stellt ein großartiges Mittel dar, um den Einfluss der QI weitreichender zu untersuchen. Im einfachsten Fall eines senkrecht angelegten Magnetfelds durchdringt ein magnetischer Fluss Φ die geschlossenen Schleifen, wodurch das im Hamilton-Operator zusätzlich eingehende Vektorpotential \mathbf{A} mittels $\nabla \times \mathbf{A}(\mathbf{r})$ eine Phasenverschiebung $\Delta\phi = 2\Phi e/\hbar$ aufprägt und damit die Zeit-Inversions-Symmetrie bricht.

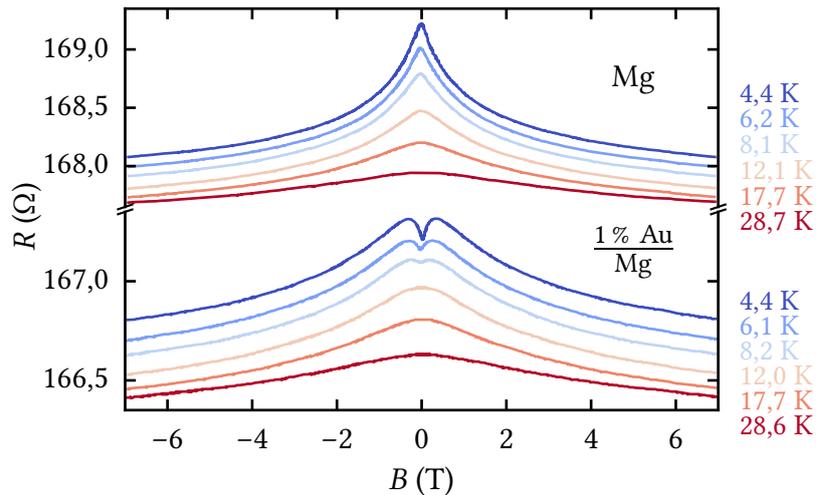


Abbildung 5.5: Temperaturabhängige Verläufe des elektrischen Widerstands in Abhängigkeit eines angelegten magnetischen Feldes eines reinen Magnesium-Dünnsfilms (oben) und eines Magnesium-Dünnsfilms mit einer 1%igen Beschichtung mit einem Goldfilm. Reine Magnesium-Dünnsfilme zeigen bei allen Temperaturen einen stetigen Abfall des elektrischen Widerstands mit steigendem Magnetfeld (oben, WL). Die Goldbeschichtung induziert eine Spin-Bahn-Streuung der propagierenden Elektronen. Der Anstieg des elektrischen Widerstands bei niedrigen Temperaturen und kleinen magnetischen Feldern ist die Folge. Der Verlauf ist mit Auftreten von WAL zu erklären (unten). Abbildung nach [209].

Mit zunehmender Magnetfeldstärke werden dadurch die Interferenzeffekte unterdrückt, wodurch im Fall der WL der elektrische Widerstand abnimmt. Im Fall der WAL sind die Auswirkungen etwas komplizierter. Bei kleinen Magnetfeldern wird die destruktive Selbstinterferenz unterbunden, wodurch Elektronen wieder selbst-kreuzende Schleifen durchlaufen können und der elektrische Widerstand zunimmt. Überschreitet das externe Magnetfeld das charakteristische Feld der Spin-Bahn-Streuung ($B \gtrsim B_{so}$), so beginnen sich die magnetischen Momente vermehrt am externen Magnetfeld auszurichten, wodurch die Spin-Bahn-Streuungen zunehmend unterbunden werden. Damit bleibt die Orientierung des Elektronenspins innerhalb der Schleife erhalten, wodurch WL in den Vordergrund rückt. Dementsprechend ähnelt der magnetfeldabhängige Verlauf des elektrischen Widerstands bei großen Feldern dem der WL und fällt ebenfalls ab. Diese Auswirkung eines externen Magnetfelds auf den Magnetotransport ist exemplarisch in Abbildung 5.5 dargestellt, welche Messungen von Bergmann [209] zeigt: Das lokalisierende Verhalten eines reinen Magnesiumfilms ändert sich bei kleinen Magnetfeldern zu antilokalisierendem Verhalten, falls der Film minimal mit Gold belegt wird (1/100-tel einer Gold-Monolage) und somit Spin-Bahn-Streuung im System induziert wird.

Die quantitative Beschreibung der QI wird meist in Form der Änderung der spezifischen Leitfähigkeit $\Delta\sigma$ bezogen auf eine bestimmte Referenzgröße (T_{ref} bzw. $B = 0$ T) angegeben:

$$\begin{aligned}\Delta\sigma(T) &= \sigma(T) - \sigma(T_{\text{ref}}) = \rho(T)^{-1} - \rho(T_{\text{ref}})^{-1}, & \text{bzw.} \\ \Delta\sigma(B) &= \sigma(B) - \sigma(0).\end{aligned}\quad (5.31)$$

wobei sich die folgenden beiden Relationen bilden lassen (s. Kap. A.2):

$$\rho(T) = \frac{1}{\rho(T_{\text{ref}})^{-1} + \Delta\sigma(T)}. \quad (5.32) \quad \text{MR} = \frac{1}{1 + \rho(B = 0 \text{ T})\Delta\sigma(B)} - 1. \quad (5.33)$$

Im weiteren Verlauf werden neben der QI noch weitere Quantenkorrekturen der spezifischen Leitfähigkeit $\Delta\sigma_i$ beschrieben, diese bilden additiv den Gesamtbeitrag [211] der Änderung der spezifischen Leitfähigkeit:

$$\Delta\sigma_{\text{ges}} = \sum_i \Delta\sigma_i. \quad (5.34)$$

Zur quantitativen Beschreibung der QI ist ein tieferes Verständnis der Spin-Relaxationsmechanismen notwendig. Auf diese soll im nächsten Kapitel genauer eingegangen werden, ehe darauffolgend etablierte Theorien zur Beschreibung von WL- sowie WAL-Effekten zusammengefasst werden.

[D2, 184, 209, 210]

5.3.1 Spin-Bahn-Kopplung

Aufgrund von relativistischen Effekten erfährt ein Elektron, das sich mit der Geschwindigkeit \mathbf{v} in einem elektrischen Feld \mathbf{E}_{el} bewegt, ein effektives magnetisches Feld

$$\mathbf{B} = -\gamma \frac{\mathbf{v} \times \mathbf{E}_{\text{el}}}{c^2}. \quad (5.35)$$

Ist die Geschwindigkeit wesentlich kleiner als die Lichtgeschwindigkeit c , so kann der Lorentz-Transformationsfaktor γ mit 1 genähert werden. Nun kann die Geschwindigkeit des Elektrons über dessen Impuls und das elektrische Feld über die elektrische Kraft und damit über den Gradienten eines Potentials $V(\mathbf{r})$ ausgedrückt werden, woraus sich die Relation

$$\mathbf{B} = -\frac{1}{m_e c^2 e} \mathbf{p} \times \nabla V(\mathbf{r}) \quad (5.36)$$

ergibt, mit m_e der Elektronenmasse und e der Elementarladung. Das magnetische Moment $\boldsymbol{\mu}_s$ eines Elektronenspins, welches ein Atom mit der Kernladungszahl Z umkreist (radialsymmetrisches Coulomb-Potential), wechselwirkt mit dem aus der Kreisbewe-

gung des Elektrons um den Faktor $1/2$ (Thomas-Faktor) verkleinerten Magnetfeld (Zeeman-Effekt). Dadurch werden im Atom neue Energieniveaus für das Elektron eingeführt:

$$\Delta E_{l,s} = -\boldsymbol{\mu}_s \cdot \mathbf{B} \approx \frac{\mu_0 Z e^2}{8\pi m_e^2 r^3} (\mathbf{s} \cdot \mathbf{l}). \quad (5.37)$$

Dabei ist μ_0 die magnetische Feldkonstante, Z die Kernladungszahl, e die Elementarladung, m_e die Elektronenmasse, r der Radius der Bahn-Bewegung, \mathbf{s} der Elektronenspin sowie \mathbf{l} der Bahndrehimpuls des kreisenden Elektrons [156]. Dies ist die in der Atomphysik bekannte Spin-Bahn-Kopplung bzw. Feinstruktur-Aufspaltung.

Spin-Bahn-Wechselwirkung

Die Spin-Bahn-Kopplung existiert auch bei Elektronen im Leitungsband, auf welche ein elektrisches Potential $V(\mathbf{r})$ einwirkt. Dieses setzt sich aus der periodischen Anordnung der Ionenrümpfe, externen Einflüsse oder auch aus Abweichungen von der Gitterperiodizität aufgrund von Defekten oder Phononen zusammen. Mit Gleichung 5.35 ergibt sich wieder ein effektives Magnetfeld, was zu folgender zusätzlicher Energie der Elektronen führt [212]:

$$E_{SO} = \frac{\hbar}{4m_e^2 c^2} \mathbf{p} \cdot [\boldsymbol{\sigma} \times \nabla V(\mathbf{r})]. \quad (5.38)$$

Dabei steht $\boldsymbol{\sigma}$ für einen Vektor aus den bekannten Pauli-Spinmatrizen. Die Energie wird als Spin-Bahn-Wechselwirkungsenergie E_{SO} bezeichnet und führt im Leitungsband in der Regel zu einer Aufspaltung in zwei Energiebänder (*Spin-Up* und *Spin-Down*). Solange allerdings sowohl eine Zeit- als auch eine Raum-Inversions-Symmetrie vorherrschen, sind diese beiden Bänder entartet ($\epsilon_{k\uparrow} = \epsilon_{k\downarrow}$). Erst wenn beispielsweise die Raum-Inversions-Symmetrie aufgebrochen wird, ist es möglich, die Spin-Entartung bei identischer Wellenzahl \mathbf{k} aufzuheben. Dies kann im Wesentlichen durch drei unterschiedliche Mechanismen erfolgen: durch eine fehlende Inversionssymmetrie in der Einheitszelle des betreffenden Kristalls, durch ein Aufbrechen der Inversionssymmetrie, beispielsweise an einer Grenzfläche, oder auch durch verspannungsinduzierte Gitterverzerrungen [212].

[212–214]

Dresselhaus- und Rashba-Effekt

Ein Aufspalten der Energiebänder eines Systems mit Spin-Bahn-Wechselwirkungen, die aufgrund einer fehlenden Inversionssymmetrie innerhalb der Einheitszelle verursacht wird, ist als Dresselhaus-Effekt [215, 216] bekannt. Der Effekt kann auch

in dreidimensionalen Systemen beobachtet und über folgenden Hamilton-Operator beschrieben werden:

$$H_D = \hbar \Omega_D(\mathbf{k}) \cdot \boldsymbol{\sigma} \propto \begin{pmatrix} k_x (k_y^2 - k_z^2) \\ k_y (k_z^2 - k_x^2) \\ k_z (k_x^2 - k_y^2) \end{pmatrix} \cdot \boldsymbol{\sigma}. \quad (5.39)$$

Der Impuls der Elektronen geht dabei kubisch in die Spin-Bahn-Wechselwirkungsenergie ein. Das Skalarprodukt bewirkt, dass sich die Elektronenspins bevorzugt entweder parallel oder antiparallel entlang k_x , k_y und k_z ausrichten. Folglich dreht sich der Elektronenspin innerhalb eines Umlaufs um die geschlossene Fermifläche. Die Anzahl an Drehungen, die ein Elektronenspin bei einem Umlauf um 360° (2π) entlang der Fermifläche erfährt, wird *Spin-Windungszahl* genannt und wird im weiteren Verlauf bei der Beschreibung des Magnetotransports von Relevanz sein.

Die in dieser Arbeit untersuchten perowskitischen Materialien besitzen nominell keinen strukturellen Bruch in der Inversionssymmetrie, weswegen hier das Aufspalten der Energiebänder vornehmlich aufgrund eines Symmetriebruchs an den Grenzflächen induziert wird. Bei diesem als Bychkov-Rashba-Effekt [217] bekannten Mechanismus wird die Symmetrie entlang der z-Richtung gebrochen. Der dazugehörige Hamilton-Operator zeigt in diesem Fall eine lineare Abhängigkeit vom Impuls:

$$H_R \propto \boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{k} \times \hat{z}) = (\sigma_x k_y - \sigma_y k_x). \quad (5.40)$$

Dabei beschreibt \hat{z} den Einheitsvektor entlang der Wachstumsrichtung des Films. Damit steht der Elektronenspin entlang der Richtungen von k_x bzw. k_y jeweils senkrecht. Auch hier ergibt sich beim Umlaufen der Fermifläche eine Spinwindung. Eine Überlagerung der Effekte von Dresselhaus und Bychkov-Rashba ist möglich [214]. Die Stärke der Spin-Bahn-Kopplung skaliert in etwa quadratisch mit der Kernladungszahl Z [218].

[212, 214, 219]

Spin-Relaxation

Eine vorhandene Spinpolarisation kann sowohl durch Spin-Relaxationen⁴ als auch durch Spin-Dephasierungen⁵ verloren gehen. In dieser Arbeit werden die Prozesse

⁴ Bei der Spin-Relaxation gehen die longitudinalen Magnetisierungen unter Energieabgabe an das Kristallgitter in den thermischen Gleichgewichtszustand über [219].

⁵ Bei der Spindephasierung verliert ein Ensemble an transversal ausgerichteten Elektronenspins die einheitliche Phase durch räumliche sowie zeitliche Fluktuationen der Präzessionsfrequenzen [219].

nicht genauer unterschieden und unter dem Begriff der Spin-Relaxation mit einer charakteristischen Zeit τ_{so} zusammengefasst.

Für unmagnetische Elektronensysteme werden im Wesentlichen vier Mechanismen, die zur Aufhebung der Spinpolarisation führen, unterschieden [219]: Diese sind der Elliott-Yafet- (EY), D'yakonov-Perel'- (DP) und Bir-Aronov-Pikus-Mechanismus⁶ [220] sowie die Hyperfein-Wechselwirkung⁷ [221]. Die beiden letztgenannten Mechanismen sind für das in dieser Arbeit untersuchte Materialsystem nicht von Bedeutung. Auf die Erstgenannten soll nun kurz weiter eingegangen werden.

Der EY-Mechanismus basiert auf der Theorie Elliotts [222] und wurde durch Yafet [223, 224] erweitert [225]. Typischerweise werden dabei Systeme mit einer räumlichen Inversionssymmetrie betrachtet, bei denen aufgrund der Spin-Bahn-Wechselwirkung (Gl. 5.38) zwei entartete Bloch-Zustände (sogenanntes Kramer-Paar) mit den folgenden effektiven Spin-Projektionen definiert werden:

$$|\uparrow\rangle_k = a_k |\uparrow\rangle + b_k |\downarrow\rangle, \quad (5.41a)$$

$$|\downarrow\rangle_k = a_{-k}^* |\downarrow\rangle - b_{-k}^* |\uparrow\rangle. \quad (5.41b)$$

Mit Werten von $|a| \lesssim 1$ und $|b| \ll 1$ sind die Zustände aus Gleichung 5.41a und 5.41b effektiv spin-polarisiert [212]. Mit jedem Streuprozess unter Änderung des Impulses können die *Spin-Up*- und *Spin-Down*-Zustände koppeln und somit durch Umkehren des Spins zur Spin-Relaxation beitragen. In Störungstheorie erster Ordnung (Born-Näherung) ergibt sich eine Relaxationszeit $\tau_{\text{so}}^{\text{EY}}$, die proportional zur Transportstreuzeit τ_{tr} ist [212, 219]:

$$\tau_{\text{so}}^{\text{EY}} \propto \tau_{\text{tr}}. \quad (5.42)$$

Die Impulsstreuung kann beispielsweise an Defekten, aber auch an Phononen stattfinden, da die Spin-Bahn-Wechselwirkung über das Ionengitter vermittelt wird [212]. Typischerweise finden etwa 10^5 Streueignisse statt, ehe der Spin relaxiert [214].

Der DP-Mechanismus [226] beschreibt typischerweise Systeme mit einer kristallin- oder strukturell-gebrochenen Inversionssymmetrie (bspw. auch in Heterostrukturen). Impuls-Zustände von *Spin-Up*- und *Spin-Down*-Elektronen sind im Allgemeinen nicht mehr entartet. Durch die Spin-Bahn-Wechselwirkung der Elektronen entsteht ein von \mathbf{k} abhängiges, intrinsisches magnetisches Feld $\mathbf{B}_{\text{in}}(\mathbf{k})$, innerhalb dessen die Spins mit der Larmorfrequenz $\Omega_{\text{L}} \propto \mathbf{B}_{\text{in}}(\mathbf{k})$ präzedieren. Nach jedem Streuprozess des Elek-

⁶ Elektron-Loch-Wechselwirkungen führen zu lokalen magnetischen Fluktuationen, die zu einem Umkehren des Spins führen. Dieser Effekt ist (nur) für p-dotierte Halbleiter von größerer Bedeutung [219].

⁷ Die Hyperfein-Wechselwirkung ist für halbleitende Heterostrukturen mit magnetischen Kernmomenten wichtig. Aus der Wechselwirkung dieser mit dem Spin der Elektronen folgt eine Dephasierung der Elektronenspins [219].

trons in einen neuen Zustand \mathbf{k}' (nach der Zeit τ_{tr}) wirkt ein anderes intrinsisches magnetisches Feld, wodurch sich auch die Larmorfrequenz ändert. Vollziehen die Elektronenspins mindestens eine vollständige Präzession (mit der durchschnittlichen Zeit $\Omega_{\text{L, av}}^{-1}$), ehe die Elektronen in einen anderen Impulszustand streuen ($\tau_{\text{tr}}\Omega_{\text{L, av}} \gtrsim 1$), so geht die Spin-Polarisation mit dieser Streuung verloren. Die Spin-Relaxationszeit ist in diesem Fall abhängig von der Breite der Verteilung an Larmorfrequenzen: $\tau_{\text{so}}^{-1} \approx \Delta\Omega_{\text{L}}$.

Werden dagegen die Elektronen in einen neuen Zustand \mathbf{k}' gestreut, ehe eine vollständige Präzession stattgefunden hat ($\tau_{\text{tr}}\Omega_{\text{L, av}} \lesssim 1$), so rotiert der Elektronenspin durchschnittlich zwischen zwei Impulsänderungen um einen Winkel $\delta\phi = \Omega_{\text{L, av}}\tau_{\text{tr}}$. Aufgrund der unterschiedlichen Larmorfrequenzen in jedem Zustand \mathbf{k} durchläuft die Spin-Phase einen sogenannten *Random Walk*. Ausgehend von der durchschnittlichen Larmorfrequenz $\Omega_{\text{L, av}}$ ist die Wahrscheinlichkeit einer Erhöhung beziehungsweise Verringerung der Frequenz beim Übergang des Elektrons in einen neuen Zustand \mathbf{k}' gleich groß und mittelt sich daher bei sehr vielen Streuprozessen heraus. Somit kann in diesem Fall die Rotation der Elektronenspins mit der konstanten durchschnittlichen Larmorfrequenz $\Omega_{\text{L, av}}$ beschrieben werden. Das quadratische Mittel der Phase ändert sich dabei mit der Zeit t über die Relation:

$$\sqrt{\langle[\Delta\phi(t)]^2\rangle} \approx \Omega_{\text{L, av}}\sqrt{\frac{t}{\tau_{\text{tr}}}} \quad (5.43)$$

Als Relaxationszeit des Spins wird nun die Zeit definiert, bei der sich das quadratische Mittel der Phase um eins ändert. Damit ergibt sich im Gegensatz zum EY-Mechanismus (Gl. 5.42) eine indirekte Proportionalität zwischen der Spin-Relaxationszeit und der Transportstreuzeit:

$$\tau_{\text{so}}^{\text{DP}} \propto \tau_{\text{tr}}^{-1}. \quad (5.44)$$

Beim DP-Mechanismus verliert sich die Spin-Polarisation zwischen Streuereignissen. Je mehr Streuprozesse stattfinden, desto weniger relaxiert der Spin. Die Gültigkeit von Gleichung 5.43 ist nur für eine große Anzahl an Streuprozessen ($\Omega_{\text{L, av}}\tau_{\text{tr}} \ll 1$) gegeben. Der Effekt ist als *Motional Narrowing* (vor allem aus der Kernspinresonanz) bekannt.

Untersuchungen von unterschiedlich dotierten Magnesium-Filmen zeigen einen Anstieg der Spin-Bahn-Streureate innerhalb der Valenz der dotierten Fremdatome, sowie eine polynomiellen Z^5 -Abhängigkeit von der Kernladungszahl Z bei Elementen gleicher Valenz [227].

[212, 214, 219]

Wechselspiel der Relaxationsmechanismen

Der vorliegende Spin-Relaxationsmechanismus eines Systems kann experimentell einerseits direkt über die Elektron-Spin-Resonanz-Spektroskopie [228], oder indirekt über die Bestimmung der Proportionalität zwischen der Transportstreuzeit τ_{tr} und Spin-Orbit-Streuzeit τ_{so} bestimmt werden [229–231].

Da die beiden Mechanismen auch gleichzeitig beitragen können, gibt es Bestrebungen, die Mechanismen in einer Theorie zu vereinen, wobei diese für die Fälle eines reinen EY- bzw. DP-Mechanismus deren Voraussagen als Grenzwerte beinhalten [228]. Dünne Platin-Filme zeigen beispielsweise ein simultanes Auftreten beider Mechanismen [230]: Während durch die symmetrische fcc-Struktur der Platin-Einheitszelle der EY-Mechanismus im Vordergrund steht, nimmt bei geringeren Schichtdicken an polykristallinen Filmen der symmetriebrechende Einfluss der Grenzfläche zu, wodurch der DP-Mechanismus an Relevanz gewinnt. Daneben können einkristalline Filme gleicher Schichtdicke und Qualität durchgehend besser mit dem DP-Mechanismus beschrieben werden, was möglicherweise auf die zunehmende Transportstreuzeit zurückzuführen ist [229]: Da der DP-Mechanismus indirekt proportional zur Transportstreuzeit ist, wird die Spin-Relaxation auf Grundlage dieses Mechanismus dominanter (τ_{so} kleiner), je seltener Elektronen gestreut werden. Temperaturabhängig kann an Platin-Filmen ebenfalls ein Übergang von EY- zu DP-Mechanismus beobachtet werden, wobei erneut die zunehmende Transportstreuzeit mit sinkender Temperatur für die Verstärkung des DP-Mechanismus verantwortlich gemacht wird [230].

5.3.2 Auswirkungen senkrechter Magnetfelder auf die QI

Zur Beschreibung von QI-Effekten zweidimensionaler Systeme unter Einwirkung eines senkrecht angelegten externen Magnetfelds existieren zwei weithin bekannte Theorien. Diese unterscheiden sich weniger in ihren Ergebnissen, als in ihrem jeweiligen physikalischen Ursprung. Die Theorie nach Hikami, Larkin und Nagaoka [232] (HLN-Theorie) beruht auf der reinen EY-Spin-Relaxation. Die Beschreibung der QI mittels DP-Mechanismus ist die Grundlage der Theorie nach Iordanskii, Lyanda-Geller und Pikus [233] (ILP-Theorie). Die wichtigsten Aspekte und Resultate dieser Theorien sollen in den nächsten beiden Abschnitten beschrieben werden. Auf eine ausführliche theoretische Aufarbeitung sei verwiesen [D2].

HLN-Theorie

In der HLN-Theorie werden die Korrekturen der spezifischen (zweidimensionalen) Leitfähigkeit im Rahmen einer diagrammatischen Störungstheorie bestimmt. Dazu

wird im Kubo-Formalismus [234] die spezifische Leitfähigkeit berechnet, wobei im Speziellen nur Streuungen betrachtet werden, die letztendlich zur Rückstreuung des Elektrons führen ($\mathbf{k} \rightarrow -\mathbf{k}$). Die dabei vorherrschende Spin-Relaxation wird nach dem EY-Mechanismus modelliert. In der allgemeinen Formulierung der HLN-Theorie können dabei auch magnetische Wechselwirkungen (mit der charakteristischen Zeit τ_m) zur Aufhebung der Spin-Entartung beitragen. Aufgrund des senkrecht wirkenden Magnetfelds sind die erlaubten Streu-Wellenvektoren auf Landau-Niveaus begrenzt, wodurch bei der Auswertung der in diesem Zusammenhang auszuwertenden Cooperon-Diagramme (Leiterdiagramme) Summenterme auftreten, die durch die sogenannte Digamma-Funktion ψ ausgedrückt werden können. Am Ende führt die HLN-Theorie unter Annahme kleiner Anregungen ($\omega \ll \tau_e^{-1}$) zu folgender Abschätzung der Quantenkorrektur der spezifischen Leitfähigkeit [D2, 232]:

$$\delta\sigma^{\text{HLN}}(B) = -\frac{e^2}{\pi h} \left[\psi\left(\frac{1}{2} + \frac{B_1}{B}\right) - \psi\left(\frac{1}{2} + \frac{B_2}{B}\right) + \frac{1}{2}\psi\left(\frac{1}{2} + \frac{B_3}{B}\right) - \frac{1}{2}\psi\left(\frac{1}{2} + \frac{B_4}{B}\right) \right], \quad (5.45)$$

mit

$$B_1 = B_e + B_{\text{so},x} + B_{\text{so},y} + B_{\text{so},z} + B_{\text{m},x} + B_{\text{m},y} + B_{\text{m},z}, \quad (5.45a)$$

$$B_2 = 2B_{\text{so},x} + 2B_{\text{so},z} + 2B_{\text{m},x} + B_i, \quad (5.45b)$$

$$B_3 = 4B_{\text{m},x} + 2B_{\text{m},z} + B_i, \quad (5.45c)$$

$$B_4 = 4B_{\text{so},x} + 2B_{\text{m},z} + B_i. \quad (5.45d)$$

Dabei berechnen sich die charakteristischen Magnetfelder nach Gleichung 5.27. Die magnetfeldabhängige Änderung der spezifischen Leitfähigkeit $\Delta\sigma(B)$ ergibt sich zu

$$\Delta\sigma(B) = \delta\sigma(B) - \delta\sigma(0). \quad (5.46)$$

Durch Ausnutzen der generalisierten Puiseux-Reihenentwicklung der ψ -Funktion für große Argumente [235]

$$\psi\left(\frac{1}{2} + x\right) = \ln(x) + \mathcal{O}\left(\frac{1}{x^2}\right) \quad (5.47)$$

ergibt sich allgemein für die magnetfeldabhängige Änderung der spezifischen Leitfähigkeit nach der HLN-Theorie (Gl. 5.45) die Relation

$$\Delta\sigma^{\text{HLN}}(B) = -\frac{e^2}{\pi h} \left[\Psi\left(\frac{B}{B_1}\right) - \Psi\left(\frac{B}{B_2}\right) + \frac{1}{2}\Psi\left(\frac{B}{B_3}\right) - \frac{1}{2}\Psi\left(\frac{B}{B_4}\right) \right]. \quad (5.48)$$

Dabei wurde die folgende Abkürzung eingeführt:

$$\Psi(x) = \ln(x) + \psi\left(\frac{1}{2} + \frac{1}{x}\right). \quad (5.49)$$

Die HLN-Theorie kann also Aussagen über den Einfluss der Spin-Bahn-Kopplung oder magnetischer Wechselwirkungen auf die Magnetfeldabhängigkeit der zweidimensionalen spezifischen Leitfähigkeit treffen. Im Speziellen kann man folgende drei wichtige Grenzfälle unterscheiden:

- *Orthogonaler Grenzfall:* $B_{so} = B_m = 0$ T. Die Betrachtung ohne Spin-Streuungen resultiert in der Beschreibung der schwachen Lokalisierung (WL). Die Änderung der spezifischen Leitfähigkeit (Gl. 5.48) vereinfacht sich zu:

$$\Delta\sigma^{WL} = -\frac{e^2}{\pi h} \left[\Psi\left(\frac{B}{B_e}\right) - \Psi\left(\frac{B}{B_i}\right) \right] = \frac{e^2}{\pi h} \Psi\left(\frac{B}{B_i}\right), \quad (5.50)$$

wobei im letzten Schritt $B_e \gg B$ angenommen wurde und wegen $\lim_{x \rightarrow 0} \Psi(x) = 0$ der erste Term entfällt.

- *Unitärer Grenzfall:* $B_m \neq B_{so} = 0$ T. Können magnetische Wechselwirkungen ohne Spin-Bahn-Streuungen auftreten, wirken sich diese ähnlich wie eine Erhöhung des inelastischen Felds B_i im orthogonalen Fall aus.
- *Symplektischer Grenzfall:* $B_{so} \neq B_m = 0$ T. Hier kann die spezifische Leitfähigkeit signifikant durch Spin-Bahn-Streuprozesse beeinflusst werden. Übersteigt die Spin-Bahn-Streurate die inelastische Streurrate ($B_{so} > B_i$), tritt der Effekt der schwachen Antilokalisierung zum Vorschein. Das untersuchte Materialsystem gehört der symplektischen Klasse an.

Im weiteren Verlauf sollen magnetische Wechselwirkungen vernachlässigt werden ($B_m = 0$ T), da diese in BaPbO₃/BaBiO₃/SrTiO₃/MgO nicht zu erwarten sind. Unter der zusätzlichen Annahme eines isotropen EY-Mechanismus ($3B_{so,x} = 3B_{so,y} = 3B_{so,z} = B_{so}$) kann Gleichung 5.48 weiter vereinfacht werden:

$$\Delta\sigma^{HLN,EY}(B) = -\frac{e^2}{\pi h} \left[\Psi\left(\frac{B}{B_e + B_{so}}\right) - \frac{3}{2}\Psi\left(\frac{B}{\frac{4}{3}B_{so} + B_i}\right) + \frac{1}{2}\Psi\left(\frac{B}{B_i}\right) \right] \quad (5.51)$$

$$= \frac{e^2}{\pi h} \left[\frac{3}{2}\Psi\left(\frac{B}{\frac{4}{3}B_{so} + B_i}\right) - \frac{1}{2}\Psi\left(\frac{B}{B_i}\right) \right], \quad (5.52)$$

wobei im zweiten Schritt wieder die Näherung $B_e \gg B$ eingeht. Allerdings müssten bei Betrachtung eines strikt zweidimensionalen Elektronensystems unter der Annahme eines reinen EY-Mechanismus die Beiträge von $B_{so,x}$ und $B_{so,y}$ in Gleichung 5.45 verschwinden, wobei genau diese Beiträge den charakteristischen Verlauf der WAL

hervorrufen [D2]. Anpassungen an Magnetwiderstandskurven von Dünnschichten mit Gleichung 5.51 zeigen jedoch sehr gute Übereinstimmungen, was möglicherweise damit zu erklären ist, dass der elektrische Transport in realen Dünnschichtproben dreidimensionalen Charakter aufweisen kann. Alternativ kann über $B_{so,z} = 0$ T und $2B_{so,x} = 2B_{so,y} = B_{so}$ effektiv der DP-Mechanismus in die HLN-Theorie eingebaut werden [215], womit sich der folgende Ausdruck im DP-Regime ableiten lässt:

$$\Delta\sigma^{\text{HLN,DP}}(B) = -\frac{e^2}{\pi h} \left[\Psi\left(\frac{B}{B_e + B_{so}}\right) - \Psi\left(\frac{B}{B_{so} + B_i}\right) + \frac{1}{2}\Psi\left(\frac{B}{B_i}\right) - \frac{1}{2}\Psi\left(\frac{B}{2B_{so} + B_i}\right) \right] \quad (5.53)$$

$$= -\frac{e^2}{\pi h} \left[-\Psi\left(\frac{B}{B_{so} + B_i}\right) + \frac{1}{2}\Psi\left(\frac{B}{B_i}\right) - \frac{1}{2}\Psi\left(\frac{B}{2B_{so} + B_i}\right) \right]. \quad (5.54)$$

Der erste Ψ -Term lässt sich wieder unter der Annahme eines großen elastischen Feldes ($B_e \gg B$) vernachlässigen. Die leicht unterschiedlichen Verläufe der HLN-Theorie im isotropen EY- sowie im DP-Regime bei verschiedenen charakteristischen Magnetfeldern B_i und B_{so} sind in Abbildung 5.6 dargestellt.

Finite Schichtdicke

Die in dieser Arbeit untersuchten Dünnschichtproben variieren in ihrer Schichtdicke im Bereich von wenigen Nanometern bis hin zu $t = 54$ nm. Je nach betrachteter physikalischer Eigenschaft können solche Dünnschichten zwei- oder dreidimensionalen Charakter zeigen: Dabei wird die charakteristische Länge der physikalischen Eigenschaft mit der räumlichen Ausdehnung der Probe verglichen. Ein Film gilt dann als zweidimensional, wenn die Schichtdicke kleiner als die jeweilige charakteristische Länge ist. Im Fall der diskutierten QI ist in Abwesenheit eines externen Magnetfelds die charakteristische Länge die Thouless-Länge $l_t = \sqrt{D\tau_1}$. In Anwesenheit eines externen Magnetfeldes ist zusätzlich die magnetische Länge $l_{\text{mag}} = \sqrt{\hbar/4eB}$ von Relevanz. [209]

Die HLN-Theorie erlaubt eine vergleichsweise einfache Modifikation, um eine Abhängigkeit der Filmschichtdicke einzuführen: Die Wellenvektoren, die die Rückstreuung beschreiben, können in einen z-Anteil und einen xy-Anteil aufgespalten werden. Berücksichtigt man diese Aufteilung bei der Summation der Beiträge der Wellenvektoren in Abhängigkeit der Landau-Niveaus im Fall eines externen Magnetfeldes, findet man ein entsprechend schichtdickenabhängiges Magnetfeld B_{th}

$$B_{\text{th}} = \frac{\hbar\pi^2}{4et^2} \approx \frac{1624}{[t(\text{nm})]^2}. \quad (5.55)$$

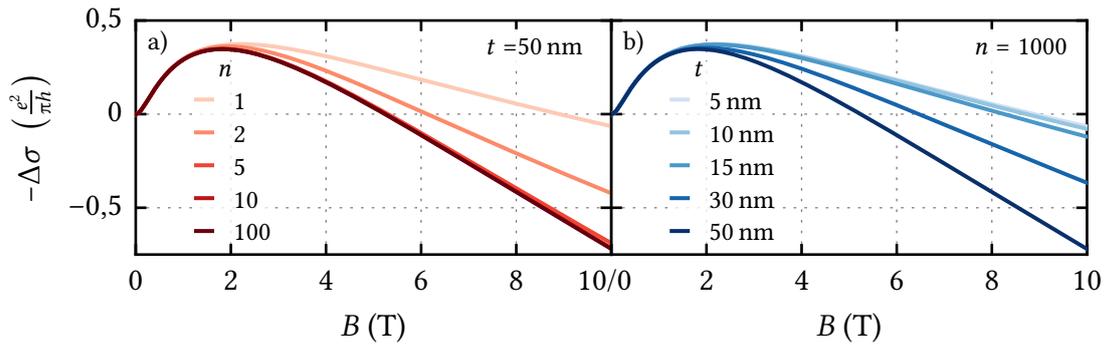


Abbildung 5.7: Effekt der finiten Schichtdicke auf die magnetfeldabhängigen Änderungen der spezifischen Leitfähigkeit nach der HLN-Theorie. **a)** Auswirkung des Summationsparameters n aus Gleichung 5.56 mit $t = 50$ nm, $B_{\text{so}} = 0,2$ T, $B_i = 0,04$ T, $B_e = 1000$ T. Die Summe konvergiert schnell, sodass für numerische Auswertung von Daten eine obere Grenze $n = 1000$ ausreichend erscheint. **b)** Einfluss der Schichtdicke bei ansonsten gleichen Parametern für $n = 1000$. Signifikant unterschiedliche Verläufe sind erst ab $t > 15$ nm zu sehen. Je dicker die Schicht, desto stärker fällt der MR mit steigendem Magnetfeld ab. Unterschiede im DP-Regime oder dem hier gezeigten EY-Regime sind marginal.

externen Magnetfelds annimmt⁸. In Abbildung 5.7 b) ist der Einfluss der Schichtdicke dargestellt: Im ausgewählten Parameterraum führt eine größere Schichtdicke t zu einer stärkeren Zunahme der spezifischen Leitfähigkeit bei großen Magnetfeldern (steilerer Abfall von $-\Delta\sigma(B)$). Die Verläufe unterscheiden sich nur oberhalb von B_{so} signifikant, wobei die Unterschiede erst ab einer Schichtdicke von $t = 15$ nm deutlicher ausfallen. Im Grenzfall $t \rightarrow \infty$ sollte das dreidimensionale Verhalten wiedergegeben [209] und damit – bei isotropen Materialien – unabhängig von der Orientierung des externen Magnetfelds sein (s. Kap. A.2).

[209, 236]

ILP-Theorie

Bei der HLN-Theorie findet die Spinrelaxation während der Stoßprozesse statt (EY-Mechanismus). Anders sieht es bei der ILP-Theorie [233] aus, die vom DP-Mechanismus und damit von einem Erhalt der Spin-Polarisation durch Streuungen der präzedierenden Elektronenspins ausgeht. Da die Spins dabei an die Impulse der Elektronen koppeln, ergibt sich an der Fermifläche eine Vorzugsrichtung der Spins in Abhängigkeit der Impulsrichtung. Dies führt zur schon weiter oben besprochenen Beobachtung, dass sich die Spinrichtung bei einem vollen Umlauf um die Fermifläche definiert um ein ganzzahliges Vielfaches von 2π ändert (Spin-Windung). Aus der ILP-Theorie, deren wichtigste Formelzusammenhänge in Kapitel A.2 zusammengefasst sind, lassen sich – anders als bei der HLN-Theorie – Korrekturen der spezifischen Leitfähigkeit in

⁸ Im Fall $n^2 B_{\text{th}} \gg B$ konvergieren die Beiträge in der Ψ -Funktion gegen 0.

Abhängigkeit einer einfachen bzw. dreifachen Spin-Windung darstellen (vgl. Abb. A.3). Für diese Arbeit ist das wesentliche Ergebnis dabei, dass die HLN-Theorie im DP-Mechanismus den Verlauf der ILP-Theorie unter dreifacher Spin-Windung an der Fermikante exakt reproduziert.

5.3.3 Auswirkungen paralleler Magnetfelder auf die QI

Während die Auswirkungen der QI auf den elektrischen Transport im senkrechten Magnetfeld sowohl theoretisch als auch experimentell sehr gut beschrieben werden, ist der Einfluss eines parallel zur Filmoberfläche anliegenden Magnetfelds auf die QI weniger erforscht. Hier etablierte sich bisher noch keine Systematik [237], wenngleich es einige theoretische Modelle gibt. Über den Aharonov-Bohm-Effekt [238] können Elektronen, die eine geschlossene Schleife umlaufen, eine Phasenänderung erfahren, selbst wenn kein magnetischer Fluss die Schleife durchdringt. Erstmals beschrieben Altshuler und Aronov (AA) diesen Effekt in Dünnschichten anhand von störungstheoretischen Berechnungen erster Ordnung unter Vernachlässigung des Elektronenspins und anderer Wechselwirkungen des Elektrons [239]. Gershenson et al. [240] sowie Rosenbaum [211] erweiterten diese Theorie um den Einfluss des Elektronenspins. Allgemein lässt sich nach deren Theorien die Änderung der spezifischen Leitfähigkeit in Abhängigkeit eines parallel angelegten magnetischen Felds über die Gleichung [241]

$$\delta\sigma_{\parallel}^{\text{QI}}(B_{\parallel}) = \frac{e^2}{\pi h} \left[\frac{3}{2} \ln \left(1 + \beta \frac{B_{\parallel}^2}{B_2 B_t} \right) - \frac{1}{2} \ln \left(1 + \beta \frac{B_{\parallel}^2}{B_3 B_t} \right) \right] \quad (5.58)$$

mit den bereits eingeführten Magnetfeldern B_2 und B_3 (Gl. 5.45b/5.45c) im EY-Regime und

$$B_t = \frac{4\hbar}{et^2} \quad (5.59)$$

beschreiben. Der Parameter β ist vom Regime des elektrischen Transports abhängig: In der ursprünglichen Publikation von AA wird der Fall kleiner mittlerer freier Weglängen im Vergleich zur Schichtdicke beschrieben ($l_{\text{mfp}} \ll t$), wobei $\beta = 1/3$ resultiert. Für den Fall reiner Metalle mit $l_{\text{mfp}} \gg t$ bestimmen Dugaev und Khmel'nitskii [242] (DK) einen Wert von $\beta = t/16l_{\text{mfp}}$. Zuletzt haben Beenakker-van Houten [243] die beiden Theorien von AA und DK durch einen Übergang erweitert. Somit kann β zwischen den von AA und DK bestimmten Werten liegen: $t/16l_{\text{mfp}} < \beta < 1/3$.

In Abbildung 5.8 sind die erwarteten Änderungen der spezifischen Leitfähigkeit in Abhängigkeit eines parallelen Magnetfelds im Vergleich zu denen in Abhängigkeit eines senkrechten Magnetfelds für lokalisierendes und antilokalisierendes Verhalten gezeigt. Die Theorien sind auf Schichtdicken begrenzt, die wesentlich kleiner als die

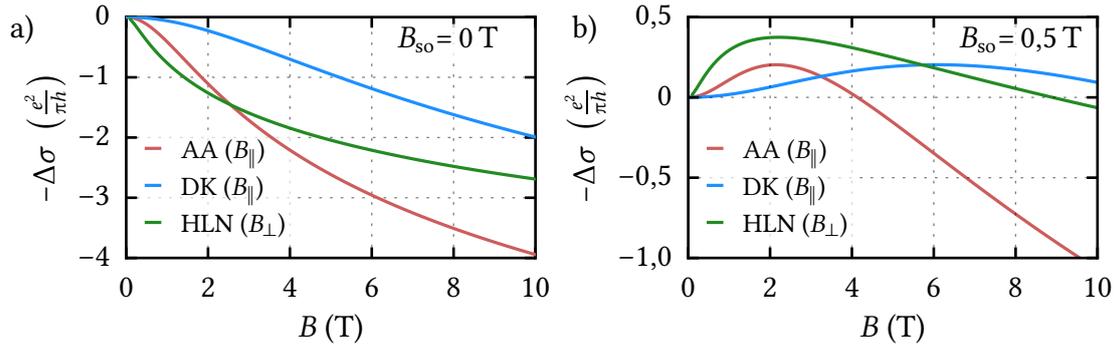


Abbildung 5.8: Vergleich des Einflusses eines senkrechten und parallelen zur Filmoberfläche einwirkenden Magnetfelds auf die magnetfeldabhängige Änderung der spezifischen Leitfähigkeit aufgrund von QI. **a)** Mögliche Verläufe der WL ($B_{so} = 0$ T), **b)** mögliche Verläufe der WAL ($B_{so} = 0,5$ T). In rot bzw. blau sind jeweils Verläufe dargestellt, die sich aus Modellrechnungen unter der Annahme eines parallel zur Filmoberfläche einwirkenden Magnetfelds B_{\parallel} im Limit nach Altshuler und Aronov (AA, $\beta = 1/3$) bzw. nach Dugaev und Khmel'nitskii (DK, $\beta = t/16l_{mf\ddot{p}}$, mit $l_{mf\ddot{p}} = 30$ nm) ergeben (Gl. 5.58). Als Referenz ist in grün der Verlauf gezeigt, der unter senkrecht einwirkendem Magnetfeld B_{\perp} erwartet wird (Gl. 5.51 mit $B_e \gg B$). Weitere angenommene Parameter sind $B_{\phi} = 0,1$ T und $t = 20$ nm.

magnetische und dephasierende Länge sind [239]. Für größere Schichtdicken geht das System in ein dreidimensionales Verhalten über [239].

Im Experiment ist eine exakte Ausrichtung des Magnetfelds parallel zur Filmebene meist in geringem Maße fehlerbehaftet. Damit trotz des Fehlwinkels θ_F der damit einhergehende Einfluss des senkrechten Magnetfeldanteils B_{\perp} vernachlässigt werden kann, muss die Relation

$$\theta_F \leq \arcsin\left(t\sqrt{\frac{eB_{\phi}}{3\hbar}}\right). \quad (5.60)$$

erfüllt sein [240].

Eine andere Beschreibung des Einflusses eines parallelen Magnetfelds auf die QI basiert auf den Theorien von Maekawa und Fukuyama (MF) [244]. Dabei wird die Zeeman-Aufspaltung, welche nur von der Stärke des Magnetfelds aber nicht von dessen Orientierung abhängig ist, untersucht. Die wichtigsten Formelzusammenhänge sind in Kapitel A.2 zusammengefasst. Schematische Verläufe, die sich aus der MF-Theorie ergeben, sind in Abbildung 5.9 für ein senkrecht bzw. parallel zur Filmebene einwirkendem Magnetfeld dargestellt. Im senkrechten Fall hat die Zeeman-Aufspaltung nahezu keinen Einfluss auf die Änderung der spezifischen Leitfähigkeit und reproduziert im Wesentlichen den Verlauf der HLN-Theorie. Unter parallel einwirkendem Magnetfeld wird die spezifische Leitfähigkeit mit zunehmender Magnetfeldstärke reduziert. Dies entspricht allerdings nicht dem beobachteten Verhalten in den von mir erhobenen

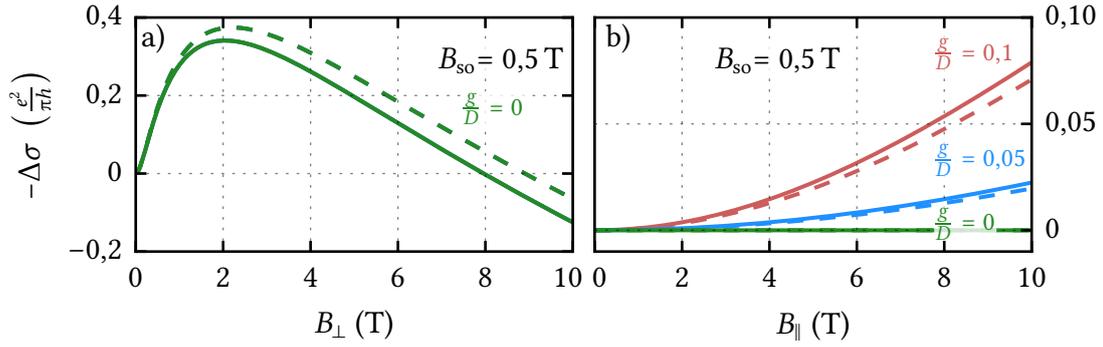


Abbildung 5.9: Effekt der Zeeman-Aufspaltung auf die magnetfeldabhängigen Änderungen der spezifischen Leitfähigkeit auf Grundlage der Maekawa-Fukuyama-Theorie. Dargestellt sind verschiedene Verhältnisse des Landé-Faktors g zur Diffusionskonstante D : in grün $g/D = 0 \text{ s cm}^{-2}$, in blau $g/D = 0,05 \text{ s cm}^{-2}$ und in rot $g/D = 0,1 \text{ s cm}^{-2}$. Die gestrichelten Linien zeigen den Effekt unter isotropem EY-Mechanismus (Gl. A.26), durchgezogene Linien den unter DP-Mechanismus (Gl. A.27). **a)** Im Fall eines senkrecht anliegenden Magnetfelds hat im ausgewählten Parameterraum die Zeeman-Aufspaltung keinen Einfluss auf den elektrischen Transport (die Linien liegen aufeinander), der Kurvenverlauf entspricht dem der HLN-Theorie. **b)** Im Fall eines parallel anliegenden Magnetfelds führt eine größere Zeeman-Aufspaltung zu einer Verringerung der spezifischen Leitfähigkeit. Weitere Parameter sind $B_i = B_\varphi = 0,1 \text{ T}$ sowie $B_{so} = 0,5 \text{ T}$.

Daten sowie denen anderer Arbeitsgruppen [211, 240]. Damit kann man der Theorie kritisch gegenüberstehen [211].

5.3.4 Temperaturabhängigkeit der QI

Bisher wurde nur die makroskopische Magnetfeldabhängigkeit der QI besprochen. Nun sollen die Einflüsse auf die QI für verschwindend kleine Magnetfelder betrachtet werden. Ausgehend von Gleichung 5.45 und der logarithmischen Näherung der ψ -Funktion für $B \rightarrow 0$ (Gl. 5.47) gilt für die Quantenkorrektur der spezifischen Leitfähigkeit bei verschwindendem Magnetfeld allgemein

$$\delta\sigma^{\text{QI}}(B \rightarrow 0) = -\frac{1}{2} \frac{e^2}{\pi h} \ln \left(\frac{B_1^2 B_3}{B_2^2 B_4} \right). \quad (5.61)$$

In der Literatur wird dieser Ausdruck meist für zwei mögliche Extremfälle diskutiert. Durch eine schwache Spin-Bahn-Streurate ($B_{so} \ll B_i \ll B_e$, WL) vereinfacht sich Gleichung 5.61 zu:

$$\delta\sigma^{\text{WL}}(B \rightarrow 0) = \frac{e^2}{\pi h} \ln \left(\frac{B_i}{B_e} \right). \quad (5.62)$$

Definitionsgemäß führt dies aufgrund von $B_e > B_i$ zu einer logarithmischen Reduktion der spezifischen Leitfähigkeit. Während elastische Streuprozesse meist einen

temperaturunabhängigen Beitrag liefern, weist B_i im Allgemeinen eine Temperaturabhängigkeit auf, die häufig algebraisch ausgedrückt wird:

$$B_i(T) = \gamma + \beta T^\alpha. \quad (5.63)$$

Dabei beschreibt α den Temperaturexponenten, dessen Wert zwischen $\alpha = 1$ für dominierende Elektron-Elektron-Wechselwirkungen und $\alpha = 2$ für vorherrschende Elektron-Phonon-Streuprozesse erwartet wird. Der Parameter β beschreibt einen Vorfaktor und der Parameter γ einen experimentell häufig beobachteten Sättigungsanteil bei $T = 0$ K [210]. Somit kann die Änderung der spezifischen Leitfähigkeit im lokalisierenden Fall folgendermaßen beschrieben werden:

$$\Delta\sigma^{\text{WL}}(T) = \delta\sigma(T) - \delta\sigma(T_{\text{ref}}) = \frac{e^2}{\pi h} \ln \left(\frac{\gamma + \beta T^\alpha}{C^{\text{WL}}} \right). \quad (5.64)$$

Dabei stellt $C_{\text{WL}} = B_i(T_{\text{ref}})$ eine temperaturunabhängige Konstante dar⁹.

Für den Extremfall einer hohen Spin-Bahn-Streurate ($B_i \ll B_{\text{so}} \ll B_e$, WAL) vereinfacht sich Gleichung 5.61 zu:

$$\delta\sigma^{\text{WAL}}(T, B \rightarrow 0) = -\frac{1}{2} \frac{e^2}{\pi h} \ln \left(\frac{B_e^2 B_i(T)}{a B_{\text{so}}^3} \right), \quad (5.65)$$

wobei der Koeffizient a abhängig vom ausgewählten Spinrelaxationsmechanismus entweder $64/27$ für den EY- oder 2 für den DP-Mechanismus ist. Unter Berücksichtigung der Temperaturabhängigkeit von B_i (Gl. 5.63) und unter Bezugnahme auf die Referenztemperatur T_{ref} folgt daraus:

$$\Delta\sigma^{\text{WAL}}(T) = -\frac{1}{2} \frac{e^2}{\pi h} \ln \left(\frac{\gamma + \beta T^\alpha}{C_{\text{WAL}}} \right). \quad (5.66)$$

Damit werden die Änderungen der spezifischen Leitfähigkeit im Fall einer reinen WL oder vorherrschenden WAL nur von der Temperaturabhängigkeit der inelastischen Streuung, ausgedrückt durch $B_i(T)$, beschrieben und unterscheiden sich lediglich im Vorfaktor $-1/2$. Für typische $B_i(T)$ -Verläufe ist somit theoretisch ein logarithmischer Abfall der spezifischen Leitfähigkeit mit sinkender Temperatur im Fall der WL bzw. ein logarithmischer Anstieg im Fall der WAL zu erwarten, wobei letztgenannter

⁹ Ist der Sättigungsanteil γ vernachlässigbar klein vereinfacht sich Gleichung 5.64 zu

$$\Delta\sigma^{\text{WL}}(T) = -\alpha \frac{e^2}{\pi h} \ln \left(\frac{T}{T_{\text{ref}}} \right).$$

Effekt laut [209] aufgrund anderer überlagernder Effekte bisher experimentell nicht beobachtet werden konnte.

Sofern die Werte für B_i und B_{so} in der gleichen Größenordnung liegen, oder es sogar zu einem WL-WAL-Übergang kommt, sind beide zugrundeliegende Streuprozesse relevant, und es empfiehlt sich die Verwendung der allgemeineren Formel (Gl. 5.61) zur Beschreibung der temperaturabhängigen Änderung der spezifischen Leitfähigkeit [245, 246]. Es ergibt sich allgemein:

$$\delta\sigma^{QI}(B \rightarrow 0) = -\frac{1}{2} \frac{e^2}{\pi h} \ln \left(\frac{B_i(B_e + B_{so})^2}{aB_{so}^3 + bB_{so}B_i^2 + cB_{so}^2B_i + B_i^3} \right), \quad (5.67)$$

$$\Delta\sigma^{QI}(T) = -\frac{1}{2} \frac{e^2}{\pi h} \ln \left(\frac{B_i(T)}{B_i(T_{ref})} \frac{aB_{so}^3 + bB_{so}B_i(T_{ref})^2 + cB_{so}^2B_i(T_{ref}) + B_i(T_{ref})^3}{aB_{so}^3 + bB_{so}B_i(T)^2 + cB_{so}^2B_i(T) + B_i(T)^3} \right), \quad (5.68)$$

wobei die jeweiligen Koeffizienten a , b und c vom Spin-Relaxationsmechanismus abhängen: $a = 2$, $b = 4$ und $c = 5$ für den DP-Mechanismus und $a = 2\frac{10}{27}$, $b = 5\frac{1}{3}$ und $c = 4$ für den EY-Mechanismus. Resultierende Verläufe der beiden Relaxationsmechanismen unterscheiden sich nur marginal. Die Gleichung 5.68 geht für die beiden Spezialfälle $B_{so} \ll B_i$ und $B_{so} \gg B_i$ in die entsprechenden Gleichungen 5.64 bzw. 5.66 über.

Temperaturabhängigkeit bei konstantem Magnetfeld

Ein senkrecht zur Filmebene ausgerichtetes Magnetfeld mit einer Feldstärke $B > B_i$ führt, bei Betrachtung von QI, zu einem temperaturunabhängigen Beitrag zur spezifischen Leitfähigkeit [247]:

$$\delta\sigma^{QI}(T, B > B_i) = \text{const} \quad \text{für } B > B_i(T). \quad (5.69)$$

Somit entfallen dessen Beiträge zur Änderung der spezifischen Leitfähigkeit unter Bezugnahme auf eine Referenztemperatur: $\Delta\sigma(T, B) = \delta\sigma(T, B) - \delta\sigma(T_{ref}, B) = 0$. Dies erweist sich als ein nützliches Mittel, um weitere Beiträge aus einer $R(T)$ -Messung zu extrahieren [248]. Beispielsweise kann so ein möglicherweise überlagernder Beitrag der Elektron-Elektron-Wechselwirkung genauer untersucht werden.

5.4 Elektron-Elektron-Wechselwirkung

Neben den QI, die in einem Ein-Elektronen-Bild beschrieben werden, gibt es noch weitere Effekte, die durch Unordnung hervorgerufen werden können [184]. Beispielsweise wird durch Unordnung auch die gegenseitige Coulomb-Wechselwirkung der Elektronen erhöht, wobei hier zwei Effekte unterschieden werden können: Interagie-

ren einerseits Elektronen miteinander, die einen ähnlichen Impuls haben, so spricht man von Wechselwirkungen im Diffusions-Kanal (Teilchen-Loch-Kanal), besitzen die Elektronen andererseits einen nahezu entgegengesetzten Impuls, so spricht man vom Cooper-Kanal (Teilchen-Teilchen-Kanal) [249]. Zunächst möchte ich mich mit dem Diffusions-Kanal beschäftigen. Auf den zweiten Mechanismus, der auch unter dem Begriff der supraleitenden Fluktuationen bekannt ist, möchte ich in Kapitel 5.5 genauer eingehen.

Ein Elektron kann über die Coulomb-Abstoßung mit einem anderen Elektron wechselwirken, wobei die restlichen freien Elektronen zusammen mit den Ionen die Ladungen der Elektronen abschirmen (*Screening*), wodurch sich die effektive Coulomb-Abstoßung reduziert [184]. In ungeordneten Systemen ist die Elektron-Elektron-Wechselwirkung (*Electron-Electron Interaction*, EEI) verzögert [209]: Da sich die Elektronen in diesem Fall durch einen Diffusionsprozess ausbreiten und diese damit über große Entfernungen vergleichsweise langsam sind, können Unregelmäßigkeiten in der Ladungsverteilung nicht instantan abgeschirmt werden, wodurch die effektive EEI erhöht wird [209].

Der Prozess der EEI ist komplexer als die QI [209] und es fehlt an einfachen Bildern. Von daher möchte ich mich in diesem Kapitel im Wesentlichen auf die wichtigsten Ergebnisse zur Beschreibung der EEI konzentrieren. Eine umfangreiche Diskussion des Effekts ist beispielsweise in [207] geführt.

5.4.1 Magnetfeldabhängigkeit der EEI

Im Fall eines metallischen Regimes ($k_F l_{\text{mfp}} \gg 1$) kann die EEI in einem ungeordneten Elektronensystem wieder in diagrammatischer Störungstheorie erster Ordnung beschrieben werden [207]. Prozesse, die in Diagrammen als (maximal) kreuzende Linien beschrieben werden (und in der QI essentiell sind), werden nun explizit ausgeschlossen [207]. Die Änderung der spezifischen Leitfähigkeit kann wieder über den Kubo-Formalismus berechnet werden und resultiert für ein d -dimensionales System in [D2, 207, 250]:

$$\Delta\sigma^{\text{EEI}}(B, T) = -\frac{e^2}{\pi h} \frac{2(1-\zeta)}{3} \begin{cases} g_2(\tilde{B}) & d = 2, \\ g_3(\tilde{B}) \sqrt{\frac{Tk_B}{2D\hbar}} & d = 3, \end{cases} \quad \text{mit} \quad (5.70)$$

$$\tilde{B} = \frac{g\mu_B B}{k_B T}, \quad (5.70a)$$

und den dimensionsabhängigen Beiträgen $g_2(\tilde{B})$ und $g_3(\tilde{B})$ entsprechend [207]:

$$g_2(\tilde{B}) = \int_0^\infty d\Omega \frac{d^2}{d\Omega^2} \left(\frac{\Omega}{e^\Omega - 1} \right) \ln \left| 1 - \frac{\tilde{B}^2}{\Omega^2} \right|, \quad (5.70b)$$

$$g_3(\tilde{B}) = \int_0^\infty d\Omega \frac{d^2}{d\Omega^2} \left(\frac{\Omega}{e^\Omega - 1} \right) (\sqrt{\Omega + \tilde{B}} + \sqrt{\Omega - \tilde{B}} - 2\sqrt{\Omega}). \quad (5.70c)$$

Dabei ist T die Temperatur, D die Diffusionskonstante, g der Landé-Faktor, μ_B das Bohr'sche Magneton, k_B die Boltzmann-Konstante, Ω eine Integrationsvariable und ζ beschreibt die Abschirmung der Elektronen. Wie aus Gleichung 5.70 ersichtlich, führt $\zeta = 1$ zu einer Unterdrückung der Beiträge. Dieser Fall beschreibt unabgeschirmte Elektronen. Der diametral entgegengesetzte Grenzfall – perfekte Abschirmung – resultiert in $\zeta = 0,35$.

Die Integrale in den Gleichungen 5.70b und 5.70c sind analytisch nicht lösbar und werden im Rahmen dieser Arbeit numerisch genähert. Für sehr kleine bzw. große magnetische Felder gelten folgende Näherungen [207]:

$$g_2(\tilde{B}) \approx \begin{cases} \ln\left(\frac{\tilde{B}}{1,3}\right) & \tilde{B} \gg 1 \\ 0,084\tilde{B}^2 & \tilde{B} \ll 1 \end{cases}, \quad (5.71) \quad g_3(\tilde{B}) \approx \begin{cases} \sqrt{\tilde{B}} - 1,3 & \tilde{B} \gg 1 \\ 0,053\tilde{B}^2 & \tilde{B} \ll 1 \end{cases}. \quad (5.72)$$

Im Gegensatz zu den Effekten der QI resultiert der Einfluss eines externen Magnetfelds nicht aufgrund der Dephasierung, sondern durch den Zeeman-Effekt [251]. Da die Zeeman-Aufspaltung unabhängig von der Magnetfeldorientierung nur von der Magnetfeldstärke abhängt, ist ein isotroper Beitrag der EEI zu erwarten.

5.4.2 Temperaturabhängigkeit der EEI

Für die Temperaturabhängigkeit der EEI ergibt sich in einem d -dimensionalen System die Korrektur der spezifischen Leitfähigkeit zu [D2, 207, 252–256]:

$$\delta\sigma^{\text{EEI}} = \frac{e^2}{\pi h} \begin{cases} -\frac{2\pi}{A}(1 + \zeta)\sqrt{\frac{D\hbar}{k_B T}} & d = 1 \\ \zeta \ln\left(\frac{k_B T \tau_{\text{tr}}}{\hbar}\right) & d = 2, \\ \frac{1,3}{\sqrt{2}}\left(\zeta - \frac{1}{3}\right)\sqrt{\frac{k_B T}{2D\hbar}} & d = 3 \end{cases}, \quad (5.73)$$

wobei A der Querschnittsfläche des Leiters, D der Diffusionskonstante, T der Temperatur, ζ dem Abschirmparameter und τ_{tr} der Transportstreuzeit entspricht.

Während die Änderung der spezifischen Leitfähigkeit in ein- und dreidimensionalen Systemen unter anderem von der Diffusionskonstante abhängen, resultiert im

Zweidimensionalen eine einfache Formulierung für die Änderung der spezifischen Leitfähigkeit:

$$\Delta\sigma^{\text{EEL, 2D}}(T) = \zeta \frac{e^2}{\pi h} \ln\left(\frac{T}{T_{\text{ref}}}\right). \quad (5.74)$$

Daraus ist die Ähnlichkeit zur WL (Gl. 5.64) ersichtlich: In beiden Fällen resultiert ein logarithmischer Abfall der spezifischen Leitfähigkeit mit sinkender Temperatur. Bemerkenswerterweise führt eine schwache Abschirmung ($\zeta \rightarrow 1$) zu einem kleinen Beitrag im MR, allerdings zu einem großen Beitrag im $R(T)$ und umgekehrt.

Bei der EEI entspricht die typische Länge, über die Elektronen miteinander wechselwirken, der thermischen Diffusionslänge, womit diese als charakteristische Größe zur Abschätzung der Dimensionalität des Effekts in Abwesenheit eines magnetischen Feldes dient [207, 247–249, 253, 257]:

$$l_{\text{th}} = \sqrt{\frac{D\hbar}{k_{\text{B}}T}}. \quad (5.75)$$

5.5 Supraleitende Fluktuationen

In diesem Abschnitt möchte ich mich mit Quantenkorrekturen in supraleitenden Materialien befassen, die aus Wechselwirkungen von Elektronen mit nahezu entgegengesetzten Impulsen resultieren. Diese sogenannten supraleitenden Fluktuationen (SLF) können den elektrischen Transport üblicherweise bis zu einer Größenordnung oberhalb der kritischen Sprungtemperatur T_c beeinflussen, indem sich lokal energetisch instabile und daher kurzlebige Cooper-Paare bilden [258]. Im Gegensatz zu den in der BCS-Theorie [259] behandelten Cooper-Paaren stehen diese noch nicht in Kontakt zu der sich ausbildenden, makroskopischen supraleitenden Phase und bilden damit kein Bose-Kondensat als Grundzustand aus [260].

In der Literatur werden vier SLF-Beiträge diskutiert, die den elektrischen Transport beeinflussen: Aslamazov und Larkin (AL) betrachten dazu die Eröffnung eines neuen Kanals für den Ladungstransport [261] und Maki und Thompson (MT) führen eine Wechselwirkung aufbrechender Cooper-Paare mit Störstellen ein [262, 263]. Weiter liefert ein Einfluss der fluktuierenden Cooper-Paare auf die Zustandsdichte (*Density of States*, DOS) einen zusätzlichen Beitrag, der üblicherweise DOS-Beitrag genannt wird [264], und zuletzt können Änderungen im Ein-Teilchen-Diffusionskoeffizient (*Diffusion Coefficient Renormalization*, DCR) auftreten [265–267]. Diese Beiträge beeinflussen sowohl die thermodynamischen als auch die elektronischen Transporteigenschaften des Systems [258, 267] und sollen im Folgenden genauer vorgestellt werden. Der DCR-Beitrag ist nahe der kritischen Temperatur üblicherweise nicht stark ausgeprägt und kann im mittleren Magnetfeldbereich oberhalb der kritischen

Temperatur im Allgemeinen vernachlässigt werden [265, 266, 268]. Daher wird dieser Effekt in dieser Arbeit nicht weiter betrachtet. Die Auswirkungen eines parallel zur Filmoberfläche einwirkenden Magnetfelds werden beispielsweise in [211] diskutiert. Ich konzentriere mich allerdings im Folgenden auf zweidimensionale Supraleitung im senkrechten Magnetfeld und möchte zunächst wichtige Aspekte dieser Art der Supraleitung abseits der SLF zusammenfassen.

5.5.1 Supraleitung in dünnen Filmen

Eine charakteristische Länge in Bezug auf Supraleitung ist die Ginzburg-Landau-Kohärenzlänge ξ_{GL} , welche der kürzesten Länge entspricht, innerhalb derer die Cooper-Paar-Dichte variieren kann [269]. Allgemein ist diese Größe temperaturabhängig

$$\xi_{\text{GL}}(T) = \frac{\xi_{\text{GL}}(0)}{\sqrt{|\epsilon(T)|}}, \quad \text{wobei} \quad (5.76)$$

$$\epsilon(T) = \begin{cases} T/T_c - 1 & T \sim T_c \\ \ln(T/T_c) & T \gg T_c \end{cases} \quad (5.77a)$$

$$(5.77b)$$

der reduzierten Temperatur nahe beziehungsweise fern der kritischen Sprungtemperatur T_c entspricht [270]. Die Ginzburg-Landau-Kohärenzlänge hängt mit dem oberen kritischen Magnetfeld folgendermaßen zusammen:

$$B_{c2}(T) = \frac{\Phi_0}{2\pi\xi_{\text{GL}}^2(T)}, \quad (5.78)$$

wobei $\Phi_0 = h/2e$ dem magnetischen Flussquant entspricht. In Dünnsfilmsystemen ist das kritische Magnetfeld anisotrop, sofern die supraleitende Schichtdicke t_{SL} kleiner als $\xi_{\text{GL}}(T)$ ist, sodass sich in diesem Fall zwei Ausdrücke für das obere kritische Feld

$$B_{c2,\perp}(T) = \frac{\Phi_0}{2\pi\xi_{\text{GL}}^2(T)}, \quad (5.79a)$$

$$B_{c2,\parallel}(T) = \frac{\sqrt{12}\Phi_0}{2\pi\xi_{\text{GL}}(T)t_{\text{SL}}}, \quad (5.79b)$$

in senkrechter und paralleler Ausrichtung des externen Magnetfelds zur Filmoberfläche ergeben [271, 272]. Für die Winkelabhängigkeit $B_{c2}(\theta)$, wobei θ dem Winkel zwischen externem Magnetfeld und Filmoberfläche entspricht, gilt die bekannte Tinkham-Gleichung [271, 272]:

$$\left| \frac{B_{c2}(\theta) \sin \theta}{B_{c2,\perp}} \right| + \left(\frac{B_{c2}(\theta) \cos \theta}{B_{c2,\parallel}} \right)^2 = 1. \quad (5.80)$$

Mit diesen Relationen kann unter anderem die Dicke der supraleitenden Schicht t_{SL} eines Systems abgeschätzt werden (vgl. Abb. 2.8 a)).

Die Temperatur T_{BKT} des in Kapitel 2.3.4 beschriebenen BKT-Phasenübergangs [123–126], bei dem Vortex-Antivortex-Paare von einem gebundenen zu einem frei beweglichen Zustand übergehen, kann mit

$$R \propto R_n \exp \left[-b \left(\frac{T}{T_{\text{BKT}}} - 1 \right)^{-\frac{1}{2}} \right] \quad (5.81)$$

abgeschätzt werden [125], wobei R_n und b materialabhängige Größen sind.

Über die Änderung des kritischen Magnetfelds B_{c2} in Abhängigkeit von der Temperatur kann die Diffusionskonstante an supraleitenden Dünnschichten abgeschätzt werden [236, 270, 273–275]:

$$D = \frac{4k_{\text{B}}}{\pi e} \left(\frac{dB_{c2}}{dT} \right)^{-1}. \quad (5.82)$$

5.5.2 Aslamazov-Larkin-Fluktuationen

Bei sinkender Temperatur und bei Annäherung an die kritische Temperatur T_c kommt es zur Ausbildung von Cooper-Paaren, die zwar noch nicht in einer gemeinsamen Quantenzustand kondensieren, aber schon zur Abnahme des elektrischen Widerstands führen. Die Korrektur der spezifischen Leitfähigkeit lässt sich in diesem Fall über [261, 270, 275, 276]

$$\delta\sigma^{\text{AL}}(T) = \frac{e^2}{\pi h} \frac{\pi^2}{8\epsilon(T)} \quad (5.83)$$

mit der bereits bekannten reduzierten Temperatur $\epsilon(T)$ aus Gleichung 5.77 beschreiben [236, 270]. In Abhängigkeit eines magnetischen Feldes¹⁰ ergibt sich [D2, 277, 278]:

$$\Delta\sigma^{\text{AL,2D}}(B) = \frac{e^2}{\pi h} \frac{\pi^2}{4 \ln \left(\frac{T}{T_c} \right)} \left\{ \left(\frac{2B^*}{B} \right)^2 \left[\psi \left(\frac{1}{2} + \frac{B^*}{B} \right) - \psi \left(1 + \frac{B^*}{B} \right) \right] + \frac{2B^*}{B} - \frac{1}{2} \right\}, \quad (5.84)$$

wobei das charakteristische Feld B^* durch die Gleichung

$$B^* = 2 \frac{k_{\text{B}} T}{\pi e D} \ln \left(\frac{T}{T_c} \right) \quad (5.84a)$$

¹⁰ In [236] ist eine Möglichkeit zur Erweiterung des AL-Beitrags um finite Schichtdicken (ähnlich wie im Fall der HLN-Theorie) aufgezeigt. Die Implementierung ergibt bis 20 nm nahezu keinen Unterschied im Verlauf der Änderung der spezifischen Leitfähigkeit und wird aufgrund eines großen Rechenaufwands nicht verwendet.

definiert werden kann und jene Magnetfeldstärke beschreibt, bei der fluktuierende Cooper-Paare aufgebrochen werden [275]. Nachdem der Wert von B^* bei Annäherung der Temperatur an T_c gegen null geht, reichen nahe der kritischen Temperatur bereits kleine Magnetfelder, um die Magnetfeldabhängigkeit aus Gleichung 5.84 zu sättigen [275].

Der AL-Beitrag zum Magnetotransport ist damit lediglich von der Temperatur T , der kritischen Temperatur T_c sowie der Diffusionskonstante D abhängig.

5.5.3 Maki-Thompson-Fluktuationen

Nach Maki und Thompson (MT) kann die elektrische Leitfähigkeit von Quasiteilchenanregungen beeinflusst werden, die von zerfallenden Cooper-Paaren stammen [251]. Diese Quasiteilchenanregungen können an Störstellen elastisch gestreut werden, wobei sie aufgrund der geltenden Zeitumkehrsymmetrie weiterhin korreliert bleiben [279]. Erst inelastische Streuprozesse führen – ähnlich wie bei der QI – zur Aufhebung der Quasiteilchenanregung. Im Gegensatz zum AL-Beitrag kann der sogenannte MT-Effekt nicht nur bei Temperaturen deutlich oberhalb von T_c vorkommen, sondern auch bei nicht supraleitenden Proben in Erscheinung treten, sofern abstoßende Wechselwirkungen im Cooper-Kanal stattfinden [280, 281].

Man unterscheidet zwischen einem regulären und einem anomalen Beitrag zur Änderung der spezifischen Leitfähigkeit. Bei der Berechnung der Änderung der spezifischen Leitfähigkeit im Kubo-Formalismus resultieren diese einerseits aus der ausschließlichen Betrachtung der erweiterten (*advanced*) bzw. der verzögerten (*retarded*) Green'schen Funktion (regulärer Beitrag), andererseits aus der gleichzeitigen Betrachtung beider Funktionen (anormaler Beitrag) [263]. Die Beiträge wirken sich jeweils entgegengesetzt auf die spezifische Leitfähigkeit aus (wobei der anormale Beitrag nach MT dem nach AL ähnelt). In der Regel ist es eine gute Näherung, den regulären Beitrag zu vernachlässigen [264], daher gehe ich im weiteren Verlauf nur auf den anomalen Beitrag ein. [264]

Die prognostizierten Korrektur der spezifischen Leitfähigkeit unterscheiden sich in Abhängigkeit von der gewählten Temperatur. Fern der kritischen Temperatur ($2\pi k_B(T - T_c) \gg \hbar\tau_i^{-1}$) ergibt sich [236]

$$\delta\sigma(T) = \frac{e^2}{\pi h} \frac{\pi^2}{4 \ln\left(\frac{T}{T_c}\right)} \ln\left(\frac{\pi}{8\delta_{\text{MT}}}\right), \quad (5.85)$$

nahe der kritischen Temperatur [D2, 282]

$$\delta\sigma(T) = \frac{e^2 \pi^2}{\pi h} \frac{1}{4 \ln\left(\frac{T}{T_c}\right) - \delta_{MT}} \ln\left(\frac{\ln\left(\frac{T}{T_c}\right)}{\delta_{MT}}\right). \quad (5.86)$$

Dabei ist δ_{MT} der Parameter zur Beschreibung des Paar-Brechungs-Mechanismus, welcher maßgeblich von der inelastischen Streurrate abhängig ist:

$$\delta_{MT} = \frac{\pi \hbar}{8 k_B T \tau_i} = \frac{\pi e D B_i}{2 k_B T}. \quad (5.87)$$

Je größer die inelastische Streurrate ist, desto stärker ist die Paar-Brechung und desto geringer werden die Beiträge nach MT [275].

Für den Fall von Temperaturen fern der kritischen Temperatur und kleiner Magnetfelder [270]:

$$\ln\left(\frac{T}{T_c}\right) \gg \frac{\hbar}{k_B T \tau_i}, \quad (5.88a)$$

$$\ln\left(\frac{T}{T_c}\right) \gg \frac{4DeB}{k_B T} \quad (5.88b)$$

hat Larkin [281] auf Grundlage des MT-Effekts die folgende magnetfeldabhängige Änderung der spezifischen Leitfähigkeit vorgeschlagen:

$$\Delta\sigma^{\text{MT,2D}}(B) = -\beta_L \frac{e^2}{\pi h} \left[\Psi\left(\frac{B}{B_i}\right) \right]. \quad (5.89)$$

Diese Gleichung unterscheidet sich von der WL (Gl. 5.50) lediglich durch den Larkin-Parameter für die Stärke der EEI, welcher durch [281]

$$\beta_L = \begin{cases} \frac{\pi^2}{4 \ln\left(\frac{T}{T_c}\right)} & T \rightarrow T_c \\ \frac{\pi^2}{6 \ln\left(\frac{T}{T_c}\right)^2} & T \gg T_c \end{cases} \quad (5.89a)$$

$$(5.89b)$$

im jeweiligen Temperaturbereich definiert ist. Aufgrund der Bedingung (Gl. 5.88b) ist die Theorie vor allem bei Temperaturen nahe der kritischen Temperatur auf sehr kleine Magnetfelder limitiert. Lopes dos Santos und Abrahams [283] erweiterten daher diese

Theorie, sodass die Limitierung aus Gleichung 5.88a entfällt. Nahe T_c (bei $\ln(T/T_c) \ll 1$) lockert sich die Bedingung aus Gleichung 5.88b zu

$$B < \frac{k_B T}{4eD}. \quad (5.90)$$

In diesem Fall können die Quantenkorrekturen mittels [283]

$$\Delta\sigma^{\text{MT},2\text{D}}(B) = -\beta_{\text{LdS,A}} \frac{e^2}{\pi h} \left[\Psi\left(\frac{B}{B_i}\right) - \Psi\left(\frac{B}{B^*}\right) \right], \quad (5.91)$$

mit dem Faktor

$$\beta_{\text{LdS,A}}\left(\frac{T}{T_c}, \delta_{\text{MT}}\right) = \frac{\pi^2}{4} \left[\frac{1}{\ln\left(\frac{T}{T_c}\right) - \delta_{\text{MT}}} \right] = \frac{\pi^2}{4} \frac{1}{1 - \frac{B_i}{B^*}} \frac{1}{\ln\left(\frac{T}{T_c}\right)} \quad (5.91a)$$

berechnet werden. Der Übergang zwischen den beiden Temperaturbereichen liegt bei etwa $T = 2,7 \cdot T_c$. Im Bereich nahe der Sprungtemperatur berechnet sich der MT-Beitrag demnach mit Gleichung 5.91, weitab von T_c mit Gleichung 5.89.

Zur Erweiterung der Theorien ins Dreidimensionale wird $\Psi \rightarrow f_3$ aus Gleichung A.17 und der Vorfaktor $\sqrt{eB/\hbar}$ hinzugefügt [249, 251, 275, 280, 284]. Der Larkin-Parameter β für die Stärke der EEI im Cooper-Kanal ist dimensionslos [280]. Für den temperaturabhängigen Verlauf ergibt sich [270]:

$$\delta\sigma^{\text{MT},3\text{D}} = \frac{e^2}{8\hbar\xi(0)(\sqrt{\epsilon} + \sqrt{\delta_{\text{MT}}})} \quad (5.92)$$

mit $\xi(0) = \xi_{\text{GL}}(T)\sqrt{|\epsilon(T)|}$ und der bereits bekannten reduzierten Temperatur aus Gleichung 5.77.

5.5.4 DOS-Beitrag

Die Bildung von (kurzlebigen) Cooper-Paaren führt zu einer effektiven Reduzierung der Elektronendichte an der Fermikante [264]. Es öffnet sich eine Pseudo-Energielücke im Ein-Elektronen-Spektrum, wodurch folglich die Ein-Teilchen-Leitfähigkeit reduziert wird [260]. Der Effekt ist proportional zur Konzentration der fluktuierenden Quasiteilchenanregung der Cooper-Paare [260]. Da diese beim Annähern der Temperatur an T_c zunehmen, führt dieser Beitrag entgegen den AL- und MT-Beiträgen zu einem ansteigenden elektrischen Widerstand. Das Unterbinden der Bildung dieser Quasiteilchen durch ein externes magnetisches Feld führt im Fall normalleitender Elektronen dagegen zu einer Erhöhung der spezifischen Leitfähigkeit. Da dieser Ef-

Modell	Charakteristische Länge	Formelzusammenhang
Drude	Mittlere freie Weglänge	$l_{\text{mfp}} = v_F \tau_{\text{tr}}$
QI	Thouless-Länge	$l_i = \sqrt{D\tau_{i/\varphi}}$
EI	Thermische Diffusionslänge	$l_{\text{th}} = \sqrt{D\hbar/k_B T}$
SL	Ginzburg-Landau-Kohärenzlänge	$\xi_{\text{GL}} \approx \sqrt{D/(T - T_c)}$
B-Feld	Magnetische Länge	$l_{\text{mag}} = \sqrt{\hbar/4eB}$

Tabelle 5.1: *Relevante Modelle und deren charakteristischen Längen.* Die effektive Dimensionalität der Probe im jeweiligen Regime entspricht der Anzahl an Dimensionen, für die die Systemgröße größer als die jeweilige charakteristische Länge ist.

fekt der Änderung der Zustandsdichte zugesprochen wird, ist dieser als DOS-Term bekannt [258]. Nahe T_c und für schwache Magnetfelder ergibt sich [265, 266, 268]

$$\Delta\sigma^{\text{DOS}}(B, T) = \frac{e^2}{\pi h} \frac{28\zeta(3)}{\pi^2} \Psi\left(\frac{B}{B^*}\right) \quad (5.93)$$

mit der Riemann-Zeta-Funktion $\zeta(3) = 1,202$ und dem bereits bekannten charakteristischen Magnetfeld B^* aus Gleichung 5.84a. In Abwesenheit eines externen Magnetfelds reduziert sich der Ausdruck zu [268]:

$$\delta\sigma^{\text{DOS}}(T) = \frac{e^2}{\pi h} \frac{28\zeta(3)}{\pi^2} \ln\left[\ln\left(\frac{T}{T_c}\right)\right]. \quad (5.94)$$

Abschließend sind in Tabelle 5.1 die verschiedenen charakteristischen Größen der jeweiligen physikalischen Modelle aufgelistet, die zur Abschätzung der Dimensionalität des entsprechenden Effekts dienen. Dabei entspricht die Anzahl an Raumdimensionen, für die die Systemgröße größer als die charakteristische Länge ist, der effektiven Dimensionalität des Ereignisses.

6 Experimentelle Untersuchungen

In diesem Kapitel stelle ich die Ergebnisse der elektrischen Transportmessungen an BaPbO_3 -Monolagen und BaPbO_3 - BaBiO_3 -Bilagen vor und diskutiere diese im Kontext der vorgestellten Theorien. Dabei möchte ich mich zunächst auf die Analyse der Messergebnisse konzentrieren, die ich an BaPbO_3 -Monolagen gewonnen habe, da in BaPbO_3 -Monolagen – im Gegensatz zu BaPbO_3 - BaBiO_3 -Bilagen – bis 1,8 K keine Anzeichen einer supraleitenden Phase vorliegen (vgl. Abb. 6.1). Die Diskussion der Messergebnisse, die an BaPbO_3 -Monolagen gewonnen wurden, wird ein Zusammenspiel aus QI und EEI zeigen, welches darüber hinaus auch eine Schichtdickenabhängigkeit aufweist. Anschließend möchte ich mich dann mit BaPbO_3 - BaBiO_3 -Bilagen befassen, welche auch supraleitendes Verhalten aufweisen können. Dementsprechend müssen hier zusätzlich Beiträge von supraleitenden Fluktuationen zur Beschreibung des elektrischen Transports hinzugezogen werden.

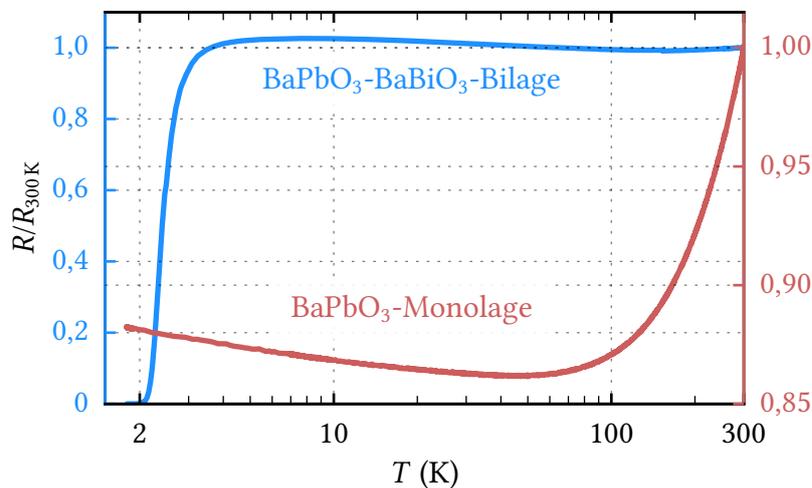


Abbildung 6.1: Temperaturabhängigkeit des normierten elektrischen Widerstands am Beispiel einer einfachen BaPbO_3 -Monolage (rot) sowie einer BaPbO_3 - BaBiO_3 -Bilage (blau). Die zusätzliche BaBiO_3 -Zwischenschicht ändert das elektronische Transportverhalten grundlegend. Die Bilage zeigt bei tiefen Temperaturen einen supraleitenden Übergang, während die Monolage entgegen der klassischen Erwartung einen logarithmischen Anstieg des elektrischen Widerstands aufweist.

6.1 BaPbO₃-Monolagen

Die BaPbO₃-Monolagen in dieser Doktorarbeit werden sowohl auf SrTiO₃- als auch MgO-Substraten hergestellt. Strukturelle Analysen zeigen, dass BaPbO₃-Filme auf SrTiO₃-Substraten eine durch Epitaxie induzierte tetragonale Verzerrung der Kristallstruktur aufweisen, während BaPbO₃-Dünnsfilme auf MgO-Substraten relaxiert aufwachsen (s. Kap. 4.2). In diesem Kapitel gehe ich unter anderem der Frage nach, wie diese Änderungen in der Kristallstruktur den elektrischen Transport beeinflussen können. Neben der Kristallstruktur der Dünnsfilme haben im Allgemeinen auch die Grenzflächen einen erheblichen Einfluss auf den elektrischen Transport. Beispielsweise kann durch das Substratmaterial ein Symmetriebruch an der Grenzfläche einhergehen, was durch den Bychkov-Rashba-Effekt zu unterschiedlich starken Spin-Polarisationen im Dünnsfilm führen kann. Zusätzlich können durch den DP-Mechanismus unterschiedliche Spin-Bahn-Relaxationen induziert werden.

Die in dieser Arbeit untersuchten QI-Effekte zeigen sich als systematische Abweichungen vom klassischen elektronischen Transportverhalten bei tiefen Temperaturen. Um diese Abweichungen diskutieren zu können, möchte ich im Folgenden zuerst auf die klassischen elektronischen Transporteigenschaften der Dünnsfilmproben eingehen, die im mittleren und hohen Temperaturbereich weiterhin die Probeneigenschaften bestimmen. Dabei möchte ich drei Messreihen zeigen, die auf unterschiedlich dicken BaPbO₃-Monolagen basieren. Diese Filme wurden auf verschiedenen und unterschiedlich prozessierten Substraten gewachsen: einmal auf chemisch-mechanisch gereinigten-MgO-Einkristallen (MGO), einmal auf chemisch-mechanisch gereinigten SrTiO₃-Substraten (STO #1) und einmal auf HF-gepufferten SrTiO₃-Substraten (STO #2). Die Messdaten der BaPbO₃-Monolagen auf SrTiO₃-Substraten wurden teilweise während der Betreuung der Masterarbeiten [M1, M3] erhoben und sind bereits auszugsweise publiziert [A1, A2]. Da sich die Proben der beiden Messreihen auf SrTiO₃-Substraten wegen unterschiedlicher Fragestellungen nicht nur in der Vorbehandlung der Substrate unterscheiden, sondern auch mit unterschiedlichen PLD-Parametern synthetisiert und verschieden lithografiert wurden, werden die Ergebnisse der Messreihen jeweils einzeln betrachtet.

6.1.1 Bestimmung der Ladungsträgerdichten

Unabhängig von Schichtdicke und Substratmaterial zeigt der Hall-Widerstand R_H aller untersuchten Dünnsfilmproben im gesamten untersuchten Temperaturbereich eine lineare Proportionalität zum angelegten äußeren Magnetfeld B , was auf ein effektives Einbandverhalten im elektrischen Transport in BaPbO₃ schließen lässt [A1]. Der

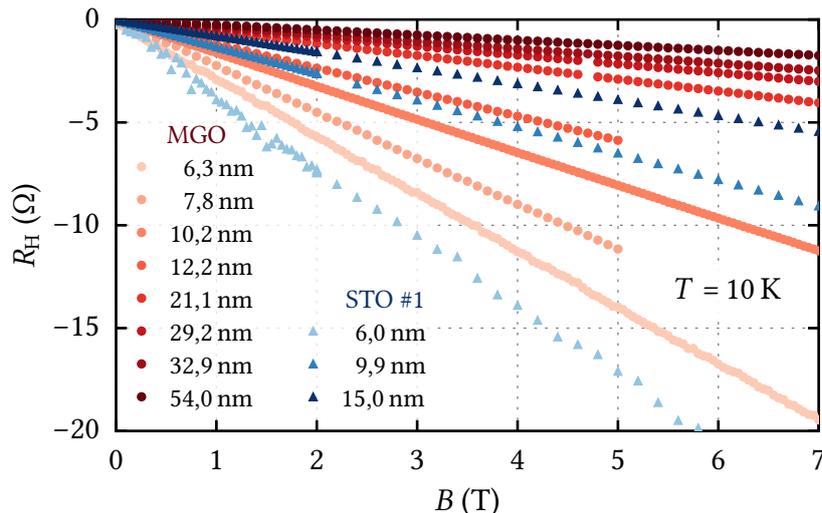


Abbildung 6.2: Hall-Widerstand als Funktion des äußeren Magnetfelds verschieden dicker BaPbO₃-Monolagen auf SrTiO₃- (blaue Dreiecke) und MgO-Substraten (rote Punkte), aufgenommen bei 10 K. Alle Datenreihen zeigen einen linearen Abfall, was auf Einband-Verhalten mit dominierender Elektronen-Leitung hinweist. Aus linearen Anpassungen an die Datenreihen können mittels Gleichung 5.12a und 5.12b die entsprechenden Flächen- und Volumenladungsträgerdichten ermittelt werden. Die Resultate über alle gemessenen Temperaturen sind in Abbildung 6.3 zusammengefasst.

stetig abfallende $R_H(B)$ -Verlauf (s. Abb. 6.2) identifiziert Elektronen als dominierende Ladungsträgerart. Alle Daten der Hall-Messungen wurden nach Gleichung 5.9 antisymmetrisiert.

Aus der jeweils angepassten Geradensteigung s der $R_H(B)$ -Messreihen kann die Flächenladungsträgerdichte n_{2D} nach Gleichung 5.12a sowie in Kombination mit den ermittelten BaPbO₃-Schichtdicken t die Volumenladungsträgerdichte n_{3D} nach Gleichung 5.12b berechnet werden. Es ergeben sich Werte im Bereich von $n_{3D} = 2,7 \cdot 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ bis $5,4 \cdot 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ (vgl. Abb. 6.3), womit diese in der gleichen Größenordnung wie der Wert aus Vorarbeiten [D1] ($4,2 \cdot 10^{20} \text{ cm}^{-3}$, 18-nm-dicker BaPbO₃-Dünnsfilm auf chemisch-mechanisch behandeltem SrTiO₃) und Ergebnissen anderer Arbeitsgruppen liegen: $1,7 \cdot 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ (polykristalline Dünnsfilme [87]), $2,0 \cdot 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ (einkristalline BaPbO₃-Bulkprobe [10]) sowie $2,4 \cdot 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ bis $8,3 \cdot 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ (400-nm-dicke RF-gesputterte Dünnsfilme unter variierendem Sauerstoffhintergrunddruck [285]). Die letztgenannte Studie bringt dabei die ansteigende Ladungsträgerkonzentration mit einer zunehmenden Kristallinität der untersuchten BaPbO₃-Filme in Zusammenhang [285].

Übereinstimmend mit der Literatur sind die Volumenladungsträgerdichten weitgehend unabhängig von der Temperatur [10, 87], mit Ausnahme von BaPbO₃-Monolagen geringer Schichtdicken bei tiefen Temperaturen. Beispielsweise weist eine 21,1-nm-dicke Probe im Temperaturbereich von 1,8 K bis 300 K eine konstante Volumenla-

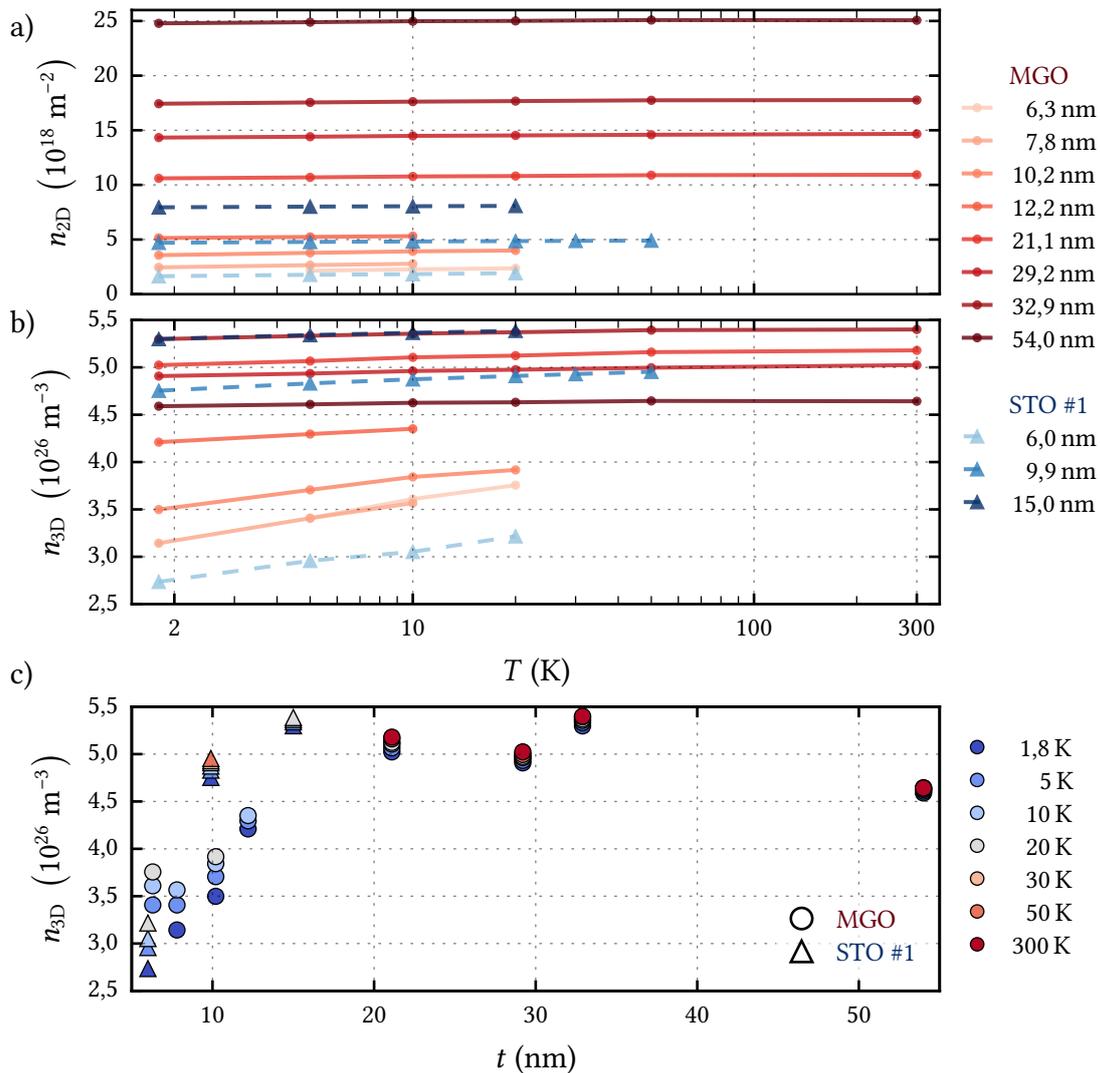


Abbildung 6.3: Mittels Hall-Messungen extrahierte Flächen- und Volumenladungsträgerdichten verschieden dicker BaPbO₃-Monolagen, gewachsen auf SrTiO₃- (blaue Dreiecke) sowie MgO-Substraten (rote Punkte). a) Die Flächenladungsträgerdichte n_{2D} nimmt mit zunehmender BaPbO₃-Schichtdicke zu. b) Durch Bezug auf die BaPbO₃-Schichtdicke ermittelte Volumenladungsträgerdichte n_{3D} . Bei tiefen Temperaturen T sowie kleinen Schichtdicken liegt eine Abhängigkeit der Ladungsträgerdichte von der Temperatur vor, die möglicherweise auf Quanteneffekte zurückzuführen ist. Für Dünnschichten mit einer Schichtdicke unterhalb von 20 nm zeigt sich ein Trend zu größeren Volumenladungsträgerdichten mit zunehmender Schichtdicke, der möglicherweise mit der Kristallinität der Filme in Verbindung steht. c) Auftragung der Volumenladungsträgerdichte n_{3D} in Abhängigkeit der BaPbO₃-Schichtdicke t bei unterschiedlichen Temperaturen: Die Ladungsträgerdichte nimmt mit steigender Schichtdicke zu. Gleichzeitig zeigt sich eine zunehmende Stabilität von n_{3D} gegenüber der Temperatur mit zunehmender Schichtdicke.

ladungsträgerdichte von $(5,110 \pm 0,058) \cdot 10^{26} \text{ m}^{-3}$ auf. Dieser Wert variiert damit im kompletten Temperaturbereich nur um 1 % des Durchschnittswertes. Die Temperaturabhängigkeit der Ladungsträgerdichte bei Schichtdicken unterhalb von etwa 10 nm bis 20 nm bei tiefen Temperaturen könnte möglicherweise schon auf Quanteneffekte (QI oder EEI) zurückzuführen sein, die bei einer ausschließlich klassischen Bestimmung der Ladungsträgerdichten nicht berücksichtigt werden.

Die Datenreihe STO #1 zeigt eine anwachsende Volumenladungsträgerdichte mit zunehmender Schichtdicke (vgl. Abb. 6.3 c)). Bei BaPbO₃-Dünnschichten auf MgO-Substraten zeigt sich der gleiche Trend, allerdings gibt es bei verhältnismäßig dünnen bzw. dicken Schichten Abweichungen davon. Möglicherweise ist – wie in [285] – dieses Verhalten mit der Kristallinität der Dünnschichtproben zu erklären: Während sehr dünne Schichten sowohl mechanisch als auch elektrisch stark von deren Grenzflächen beeinflusst werden, nimmt dieser Einfluss mit zunehmender Schichtdicke ab, wodurch im Allgemeinen die Kristallinität zunächst zunimmt. Damit ist ein Anstieg der Ladungsträgerdichte bis zur Sättigung für den Fall eines idealen Kristalls zu erwarten. Strukturelle Analysen an BaPbO₃-Monolagen auf MgO-Substraten zeigen eine starke Zunahme der Oberflächenrauigkeit sowie einen energiegetriebenen Umbruch des Wachstumsmodus (Vorhandensein einer Fremdphase bei einer 171-nm-dicken Probe). So ergibt sich ein enger Schichtdickenbereich, in welchem ein Maximum in der Kristallinität vorliegt. Die Volumenladungsträgerdichte folgt möglicherweise diesem beschriebenen Verlauf der Kristallinität.

Hinzu kommt, dass in Dünnschichtproben die elektrisch aktive Schichtdicke kleiner ausfallen kann als die strukturelle Schichtdicke. Aufgrund von Grenz- und Oberflächenrauigkeiten oder einer unzureichenden Sauerstoffsättigung kann der elektrische Transport beeinträchtigt werden. Dies wird im weiteren Verlauf dieser Arbeit noch weiter diskutiert werden. Da zur Berechnung der Volumenladungsträgerdichte die mittels XRR-Messungen ermittelte Schichtdicke t verwendet wurde, die nicht notwendigerweise der elektrisch aktiven Schichtdicke t_{el} entspricht, setzt sich der damit einhergehende Fehler direkt in den bestimmten Werten fort.

Die Flächenladungsträgerdichte in Abbildung 6.3 a) zeigt aufgrund der Tatsache, dass das zunehmende Volumen mit zunehmender (elektrisch aktiver) Schichtdicke nicht berücksichtigt wird, logischerweise eine starke Abhängigkeit von der Schichtdicke.

6.1.2 Klassische elektrische Leitfähigkeit

Der spezifische Widerstand wird durch Bezug der gemessenen Schichtwiderstände R_s auf die jeweilige Schichtdicke t bestimmt: $\rho(T) = R_s(T) \cdot t$. Bei Raumtemperatur ergeben sich mit Werten von maximal $61 \mu\Omega \text{ m}$ bis minimal $3,8 \mu\Omega \text{ m}$ vergleichbare

6 Experimentelle Untersuchungen

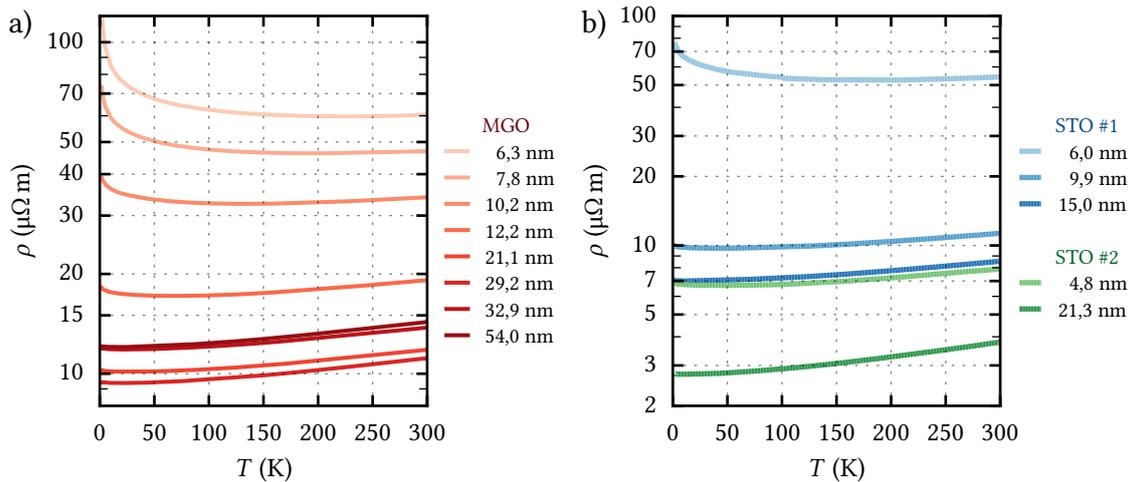


Abbildung 6.4: Temperaturabhängigkeit des spezifischen Widerstands unterschiedlich dicker BaPbO_3 -Filme, gewachsen auf **a)** MgO - und **b)** SrTiO_3 -Substraten. Nahezu alle Daten zeigen innerhalb einer Messreihe den Trend eines zunehmenden elektrischen Widerstands mit abnehmender Schichtdicke. Bei Raumtemperatur ergeben sich für BaPbO_3 -Schichten auf MgO -Substraten mit Werten zwischen $11 \mu\Omega \text{ m}$ bis $61 \mu\Omega \text{ m}$ (für eine 6,3-nm- bzw. 29,2-nm-dicke Monolage) etwas höhere spezifische Widerstände als für Proben auf SrTiO_3 -Substraten ($3,8 \mu\Omega \text{ m}$ bis $54 \mu\Omega \text{ m}$ für eine 6-nm- bzw. 21,3-nm-dicke Monolage). Zur besseren Veranschaulichung wurden die Ordinaten logarithmisch skaliert.

spezifische Widerstände für die verschiedenen Messreihen (vgl. Abb. 6.4). Damit liegen diese im ähnlichen Bereich wie der in einer vorangegangenen Arbeit ermittelte Wert von $9,5 \mu\Omega \text{ m}$ [D1]. Für Bulk-Materialien sind indes spezifische Widerstände von $3,5 \mu\Omega \text{ m}$ [99] bzw. $8,3 \mu\Omega \text{ m}$ [11] angegeben, womit diese denjenigen Werten entsprechen, die an verhältnismäßig dicken Dünnschichtproben ermittelt wurden.

Der Einfluss der Grenzflächen auf die klassischen elektronischen Transporteigenschaften (vgl. Kap. 5.2.2) kann prinzipiell mit den Theorien nach Fuchs (Gl. 5.17) bzw. Namba-Fuchs (Gl. 5.19) modelliert werden (vgl. Abb. A.4). Allerdings gelingen die Anpassungen nur dann, wenn die Spekularität p des Systems gegen Null geht, wobei für epitaktische Filme Werte von $p = 0,8$ bis $p = 1$ erwartet werden [191]. Auch andere charakteristische Größen werden durch diese Theorie teilweise nicht sinnvoll beschrieben, beispielsweise übersteigt die vorausgesagte Oberflächenrauigkeit zum Teil die gemessene Schichtdicke, sodass diese Theorien zwar den prinzipiellen Trend des spezifischen Widerstands als Funktion der Schichtdicke qualitativ erklären, den exakten Verlauf allerdings nicht quantitativ darstellen können. Hierfür gibt es mehrere mögliche Ursachen: ganz elementar stellt sich die Frage, ob die Matthiessen'sche Regel in Dünnschichtproben aufgrund komplexer Einflüsse der Grenzflächen ihre Gültigkeit verliert (wobei diese üblicherweise in guter Näherung weiterhin angenommen wird) [196]. Zudem werden in der Theorie nach Namba-Fuchs jeweils die Spekularität,

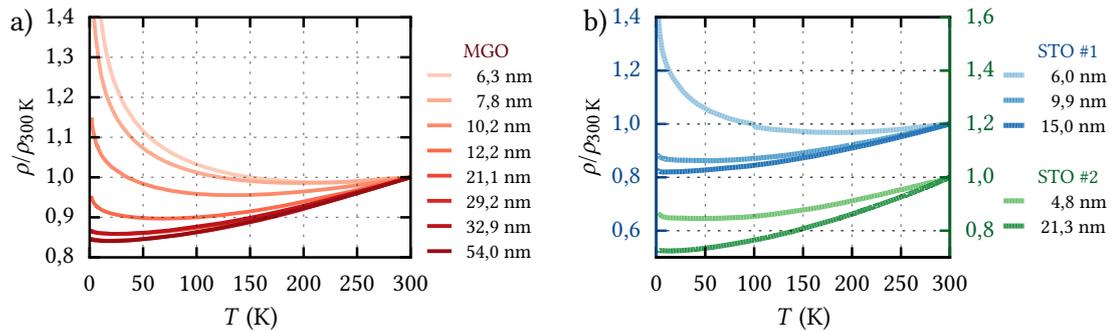


Abbildung 6.5: Temperaturabhängigkeit des auf 300 K normierten spezifischen Widerstands unterschiedlich dicker BaPbO₃-Filme auf **a)** MgO- und **b)** SrTiO₃-Substraten. Alle Proben zeigen bei hohen Temperaturen einen metallischen Abfall, durchlaufen ein Minimum und zeigen bei tiefen Temperaturen einen halbleiterähnlichen Anstieg des spezifischen Widerstands. Dabei ist sowohl die Lage des Minimums als auch die Stärke des Anstiegs von der Schichtdicke abhängig. Je dünner die Probe, desto größer ist die Temperatur T_{dip} , bei der das Minimum durchlaufen wird, und desto deutlicher der halbleiterähnliche Anstieg des spezifischen Widerstands.

die Ladungsträgerdichte, die Kristallinität sowie die Oberflächenrauigkeit bei Proben verschiedener Schichtdicken als konstant angenommen. Diese Annahmen sind bei meinen Proben aber nicht zutreffend.

Dass dicke BaPbO₃-Monolagen auf MgO-Substraten den schichtdickenabhängigen Trend des abnehmenden spezifischen Widerstands mit zunehmender Schichtdicke brechen (vgl. Abb. 6.4 a) bzw. Abb. A.4) ergibt sich einerseits – nach der Drude-Theorie (Gl. 5.3) – aus der Abhängigkeit des elektrischen Widerstands von der Volumenladungsträgerdichte (vgl. Abb. 6.3) und korreliert damit möglicherweise auch mit der Kristallinität der Probe. Andererseits könnte dieser Bruch im Trend auf die möglicherweise von der Schichtdicke t abweichende elektrisch aktive Schichtdicke t_{el} zurückzuführen sein. Darüber hinaus könnten auch unterschiedliche Transport-Streuratzen τ_{tr}^{-1} in Abhängigkeit der Schichtdicke t , beispielsweise aufgrund einer variierenden Sauerstofffehlstellendichte, eine Erklärung für diese Beobachtung sein.

Neben dem Absolutwert des spezifischen Widerstands ist auch dessen temperaturabhängiger Verlauf von der Schichtdicke abhängig (vgl. Abb. 6.5). Dies ist im Modell nach Namba-Fuchs qualitativ beispielsweise damit zu erklären, dass mit sinkender Temperatur und damit zunehmender mittlerer freier Weglänge (weniger Stoßprozesse mit Phononen) das Verhältnis κ zwischen Schichtdicke t und mittlerer freier Weglänge l_{mfp} kleiner wird, wodurch die Abweichungen vom Bulk-Wert größer werden [191]. Dies äußert sich umso stärker, je kleiner die Schichtdicke im Verhältnis zur mittleren freien Weglänge ist. Es können aber auch bereits nicht-klassische Effekte das elektronische Transportverhalten in diesem Bereich beeinflussen.

Ausgehend von Raumtemperatur zeigen alle untersuchten Proben bei sinkender Temperatur ein Minimum im spezifischen Widerstand bei der entsprechenden Temperatur T_{dip} . Dem metallischen Abfall folgt ein halbleiterähnlicher Anstieg hin zu tiefen Temperaturen. Dabei verschiebt sich mit abnehmender Schichtdicke die Temperatur T_{dip} tendenziell hin zu höheren Temperaturen, gleichzeitig nimmt der Anstieg im spezifischen Widerstand zu. Während bei einer 54-nm-dicken Probe das Minimum bei $T_{\text{dip}} = 18,4 \text{ K}$ liegt, befindet sich dasjenige einer 6,3-nm-dünnen Schicht bei $T_{\text{dip}} = 228 \text{ K}$. Vergleicht man die BaPbO₃-Monolagen, die einmal auf MgO-, einmal auf SrTiO₃-Substraten gewachsen wurden, zeigt sich bei vergleichbaren Schichtdicken eine zum Teil wesentlich höhere Temperatur T_{dip} bei Proben, die auf MgO-Substraten gewachsen wurden. Allerdings gibt es selbst innerhalb der beiden Messreihen STO #1 und STO #2 deutliche Unterschiede. Vermutlich ist sowohl die Lage des Minimums als auch die Stärke des Anstiegs des spezifischen Widerstands von weiteren Parametern bei der Filmherstellung und Strukturierung beeinflusst, die im Rahmen dieser Doktorarbeit allerdings nicht explizit untersucht wurden.

Im klassischen Bild kann ein Minimum im spezifischen Widerstand beispielsweise durch thermisch aktivierbare Sauerstofffehlstellen erklärt werden [286]: Bei Raumtemperatur wechselwirken die Elektronen aufgrund ihrer hohen thermischen Energie kaum mit vorhandenen Fehlstellen. Mit abnehmender Temperatur wird die Wechselwirkung der Elektronen mit vorhandenen Störstellen immer stärker, so dass sich die elektrische Widerstandsabnahme verringert und ein Minimum ausbildet. Die theoretische Modellierung dieser Störstellenwechselwirkung ist in Kapitel A.3 zusammengefasst. Eine hervorstechende Störstellenwechselwirkung scheint in BaPbO₃-Dünnschichten nicht vorzuliegen, denn innerhalb dieses Rahmens gelingt keine konsistente Anpassung der Daten, zumal hier eine Sättigung des spezifischen Widerstands bei tiefen Temperaturen erwartet wird, die Messreihen allerdings eine $\ln(T)$ -Abhängigkeit des spezifischen Widerstands aufzeigen. Die Ursache für diese Abhängigkeit wird im folgenden Kapitel diskutiert.

Der polynomielle metallische Abfall des spezifischen Widerstands $\rho \propto T^n$ kann bei hohen Temperaturen ($T > T_{\text{dip}}$) mit der Bloch-Grüneisen-Theorie (Gl. 5.6) beschrieben werden (vgl. Abb. 6.6). Dabei resultierende Exponenten liegen im Bereich von $n = 1,7$ bis $3,1$, die Kopplungskonstante bei etwa $\alpha_{\text{el-ph}} = 10 \mu\Omega \text{ m K}^{-1}$ und die Debye-Temperatur bei $\theta_{\text{D}} = 1200 \text{ K}$. Vergleicht man diese Temperatur mit Debye-Temperaturen, die an SrTiO₃- und BaPbO₃-Kristallen ermittelt wurden (390 K [287] bzw. 450 K [96]), so unterscheidet sich diese etwa um den Faktor 3. Der Exponent n unterschreitet teilweise die theoretische Grenze von minimal 2.

Diese Diskrepanzen kommen nicht unerwartet. Zwar ist die Bloch-Grüneisen-Theorie bei einigen Dünnschichtproben anwendbar [288–290], es ist allerdings ein ver-

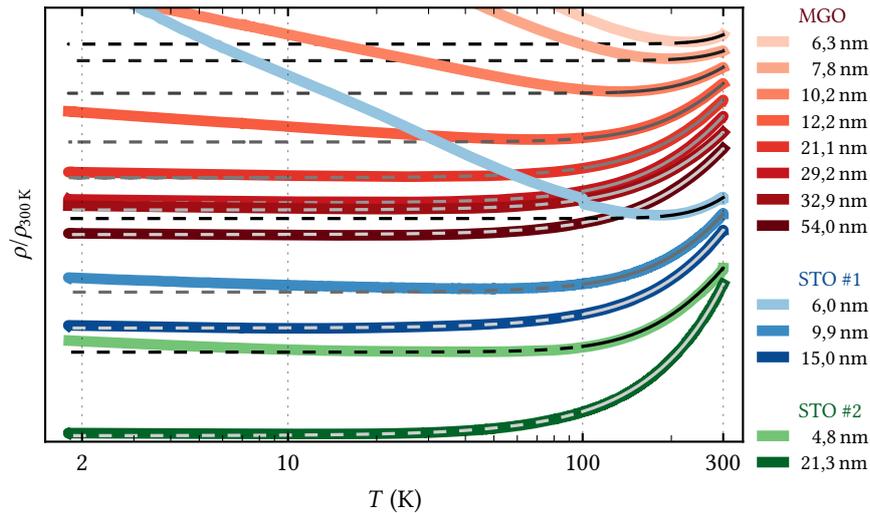


Abbildung 6.6: Anpassung der normierten spezifischen Widerstände mittels der Bloch-Grüneisen-Theorie (Gl. 5.6). Die Ergebnisse der Anpassungen sind kontrastbedingt in verschiedenen Grautönen dargestellt. Der Temperaturbereich, in dem die Daten angepasst wurden, ist durch eine durchgezogene, dessen Extrapolation durch eine gestrichelte Linie dargestellt. Die Daten wurden immer von 300 K ausgehend entweder bis 100 K bzw. bis zu der Temperatur T_{dip} angepasst, bei der das Minimum im spezifischen Widerstand durchlaufen wird, sofern $T_{\text{dip}} > 100$ K. Die Datenreihen lassen sich im Bereich mittlerer und hoher Temperaturen mittels der Bloch-Grüneisen-Theorie (Gl. 5.6) hervorragend anpassen. Die Extrapolation beschreibt die Verläufe bis zum Minimum meist ebenfalls gut. Natürlich kann die Theorie die $\ln(T)$ -Anstiege, die aufgrund selbiger Skalierung der x-Achse deutlich zu erkennen sind, nicht beschreiben. Zur besseren Unterscheidbarkeit wurden die jeweiligen Messreihen bezüglich der Ordinate zueinander versetzt.

einfachtes Modell, das beispielsweise Grenzflächeneffekte nicht berücksichtigt. Dennoch bestätigen die angepassten Verläufe qualitativ den metallischen Charakter der Dünnschichtproben bei hohen Temperaturen. Signifikante Abweichungen entstehen meistens erst bei Temperaturen unterhalb T_{dip} , wo der spezifische Widerstand eine $\ln(T)$ -Abhängigkeit aufweist. Dieser Bereich kann natürlich nicht durch die Bloch-Grüneisen-Theorie dargestellt werden.

Aus der Kombination von ermittelter Ladungsträgerdichte n_{3D} und spezifischem Widerstand lassen sich eine Reihe weiterer physikalischer Größen ableiten: die Beweglichkeit μ der Elektronen (Hall-Mobilität, Gl. 5.3), die Transportstreuzeit τ_{tr} (Gl. 5.3), der Fermi-Wellenzahlvektor k_{F} (Gl. 5.23), die Fermigeschwindigkeit v_{F} (Gl. 5.24), die mittlere freie Weglänge l_{mfp} (Gl. 5.25) sowie die Diffusionskonstante D (Gl. 5.22).

Für die Bestimmung der meisten der oben genannten Größen wird die effektive Masse der Ladungsträger sowie deren elektrische Ladung benötigt. Nachdem der Ladungstransport weitgehend im Modell der Blochelektronen beschrieben wird, nehme

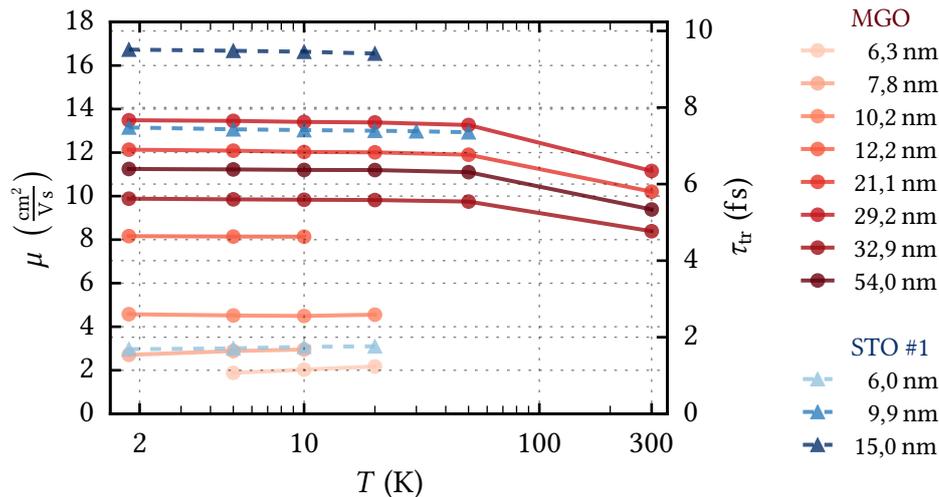


Abbildung 6.7: Hall-Mobilität μ bzw. Transportrelaxationszeit τ_{tr} der Ladungsträger, ermittelt an unterschiedlich dicken BaPbO_3 -Monolagen, die auf MgO - (rot) oder SrTiO_3 -Substraten (blau) gewachsen wurden. Mit Gleichung 5.3 ermittelte Werte liegen im Bereich von $\mu = 1,9 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$ bis $\mu = 16,7 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$ ($\tau_{tr} = 1,07 \text{ fs}$ bis $\tau_{tr} = 9,51 \text{ fs}$). Eine Zunahme der Mobilität μ mit zunehmender Schichtdicke t ist auf beiden Substratmaterialien bis maximal $t = 30 \text{ nm}$ zu beobachten. Mit ansteigender Temperatur nimmt die Mobilität und Transportstreuzeit tendenziell ab, was vermutlich auf die zunehmende Anzahl von Stoßprozessen mit Phononen zurückzuführen ist.

ich als Ladung die Elementarladung e und als effektive Masse in Anlehnung an [109] die Ruhemasse m_e der Elektronen an.

Die Transportstreuzeit τ_{tr} sowie die Mobilität μ nehmen tendenziell mit zunehmender Temperatur ab (s. Abb. 6.7), da die Wahrscheinlichkeit für Phononenstöße zunimmt. Dies wird auch von anderen Arbeitsgruppen beobachtet, wobei die Mobilität in BaPbO_3 -Kristallproben ($45 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$ bis $75 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$ [10]) deutlich größer ist als die von Dünnschichtproben ($4,1 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$ [285]). Mit in dieser Arbeit extrahierten Werten von $1,9 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$ bis $16,7 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$ kann dieser Trend bestätigt werden. Da die (elektrisch aktive) Schichtdicke sowohl in die Bestimmung der Ladungsträgerdichte als auch in die des spezifischen Widerstands einfließt und sich dabei herauskürzt ($\mu = q\tau_{tr}/m^* = (R_s n_{2D} q)^{-1}$), ist die Transportstreuzeit und Mobilität unabhängig von möglicherweise voneinander abweichenden Werten von t und t_{el} .

In Tabelle 6.1 sind alle relevanten Größen, ausgewertet bei $T = 10 \text{ K}$, aufgelistet. Die Transportstreuzeit τ_{tr} übersetzt sich mit Werten von $1,15 \text{ fs}$ bis $9,46 \text{ fs}$ in mittlere freie Weglängen, die zum Teil in der Größenordnung der Gitterkonstante ($a_{pc, BPO} \approx 4,3 \text{ \AA}$) liegen. Je nach Wahl des Kriteriums des Ioffe-Regel-Mott-Prinzips [291] ($k_F l_{mfp} \approx 1$, $k_F l_{mfp} \approx 2\pi$ oder $k_F a \approx 1$, mit interatomarem Abstand a) bewegen sich die dünnsten in dieser Arbeit untersuchten Proben an der Grenze jenes Bereichs, in welchem alle kohärenten Quasiteilchenbewegungen unterdrückt werden [291] und die Elektronen

	t (nm)	ρ ($\mu\Omega$ m)	n_{3D} ($\frac{10^{26}}{m^3}$)	μ ($\frac{cm^2}{Vs}$)	τ_{tr} (fs)	k_F (nm^{-1})	l_{mfp} (nm)	v_F ($\frac{10^6 m}{s}$)	D ($\frac{cm^2}{s}$)
Gl.:			5.12b	5.3	5.3	5.23	5.25	5.24	5.22
MGO	6,3	85,26	3,61	2,03	1,15	2,20	0,29	0,25	0,25
	7,8	59,28	3,57	2,95	1,68	2,19	0,43	0,25	0,36
	10,2	36,13	3,84	4,49	2,56	2,25	0,67	0,26	0,58
	12,2	17,63	4,35	8,14	4,63	2,34	1,26	0,27	1,14
	21,1	10,16	5,11	12,03	6,84	2,47	1,96	0,29	1,87
	29,2	9,38	4,96	13,41	7,62	2,45	2,16	0,28	2,04
	32,9	11,85	5,36	9,83	5,59	2,51	1,63	0,29	1,58
	54,0	12,04	4,63	11,20	6,37	2,39	1,76	0,28	1,63
STO #1	6,0	66,42	3,05	3,08	1,75	2,08	0,42	0,24	0,34
	9,9	9,83	4,87	13,03	7,41	2,43	2,09	0,28	1,96
	15,0	6,99	5,36	16,63	9,46	2,51	2,75	0,29	2,67

Tabelle 6.1: Extrahierte Größen aus Untersuchungen des elektrischen Transports an BaPbO₃-Monolagen auf MgO-Substraten (oben) sowie SrTiO₃-Substraten (unten). Alle Werte sind bei 10 K ermittelt. Zur Berechnung wurde die Ruhemasse der Elektronen und die Elementarladung verwendet. Die BaPbO₃-Schichtdicke t wurde über XRR-Messungen, der spezifische Widerstand ρ sowie die Ladungsträgerdichte n_{3D} durch elektrische Transportmessungen und durch Bezug auf t bestimmt. Daraus lassen sich die Werte für die Beweglichkeit μ , die Transportstreuzeit τ_{tr} , den Fermi-Wellenzahlvektor k_F , die Fermigeschwindigkeit v_F , die mittlere freie Weglänge l_{mfp} sowie die Diffusionskonstante D über die angegebenen Gleichungen berechnen.

lokalisieren [274]. Gleichzeitig zeigt das Verhältnis von k_F und l_{mfp} an, dass das System stark von Unordnung geprägt ist. Die (elektrisch aktive) Schichtdicke der Dünnschichtenproben ist indes jeweils deutlich größer als die mittlere freie Weglänge, wodurch die klassische Drude-Leitfähigkeit als dreidimensional angenommen wird. Mit der Annahme eines dreidimensionalen klassischen Transports lässt sich die Diffusionskonstante mit Gleichung 5.22 berechnen. Wie zu erwarten ist diese gegenüber von Temperaturschwankungen relativ stabil (vgl. Abb. 6.8).

6.1.3 Elektrischer Transport bei tiefen Temperaturen

Der spezifische Widerstand durchläuft in Abhängigkeit der Temperatur bei allen Dünnschichtenproben ein Minimum (vgl. Abb. 6.6). Während die Daten bei höheren Temperaturen mit klassischen Stoßprozessen an Phononen, Elektronen sowie Gitterdefekten

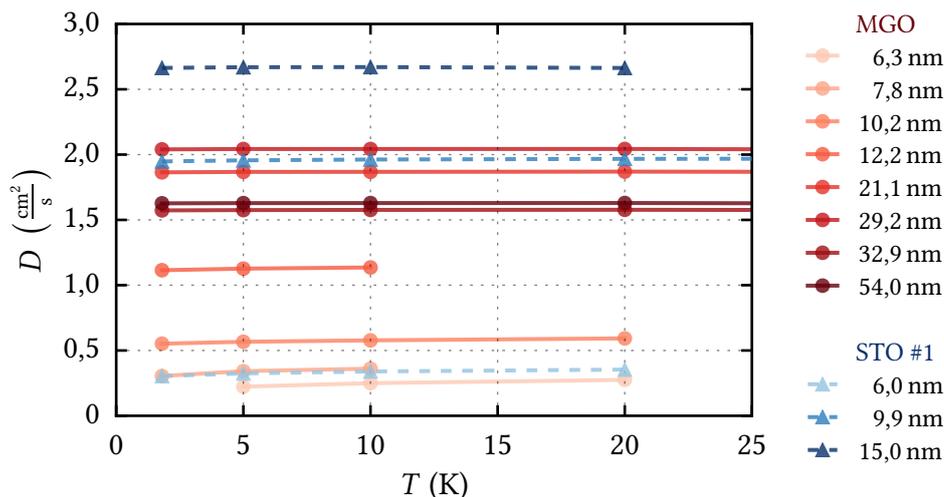


Abbildung 6.8: Temperatur und Schichtdickenabhängigkeit der Werte der Diffusionskonstante unterschiedlich dicker BaPbO_3 -Monolagen, die auf den Substratmaterialien MgO und SrTiO_3 gewachsen wurden. Die Werte sind mit Gleichung 5.22 aus Hall- und elektrischen Widerstandsmessungen bei verschiedenen Temperaturen ermittelt. Die berechneten Werte für die Diffusionskonstante sind weitgehend konstant gegenüber der Temperatur und zeigen eine Schichtdickenabhängigkeit, die sich bereits in der Ladungsträgerdichte und im spezifischen Widerstand zeigt.

gut beschrieben werden, will ich mich nun mit den $\ln(T)$ -Anstiegen des spezifischen Widerstands bei abnehmender Temperatur befassen.

Diese Abhängigkeit wird in vergleichbaren Messungen an anderen Materialsystemen häufig dem Kondo-Effekt zugeschrieben [292–295]: Lokale magnetische Momente (z. B. durch Selten-Erd-Metalle) interagieren mit freien Ladungsträgern und führen zum logarithmischen Anstieg des elektrischen Widerstands bei abnehmenden tiefen Temperaturen [294]. Neben der thermischen Abhängigkeit ist bei Untersuchungen des elektrischen Widerstands unter gleichzeitig angelegten externen Magnetfeldern auch eine nicht-lineare Abhängigkeit von dessen Feldstärke zu erwarten [296], was allerdings weder in den hier untersuchten Proben (s. Abb. A.5), noch in vorangegangenen Arbeiten [D1] an diesem Materialsystem beobachtet und daher als Ursache für das $\ln(T)$ -Verhalten des elektrischen Widerstands ausgeschlossen wird.

Die Theorien der WL und EEI liefern in zweidimensionalen Systemen ebenfalls eine $\ln(T)$ -Abhängigkeit des elektrischen Widerstands (Gl. 5.64 bzw. Gl. 5.73). Während diese Effekte bei temperaturabhängigen elektrischen Widerstandsmessungen faktisch nicht zu unterscheiden sind, ist bei Untersuchungen des Magnetotransports in senkrecht zur Probenoberfläche orientierten Magnetfeldern ein diametral entgegengesetztes Verhalten zu erwarten: Bei ausschließlicher EEI steigt der MR an, während dieser bei alleiniger WL sinkt. Abbildung 6.9 zeigt typische MR-Verläufe. Bei Temperaturen unterhalb von 20 K beschreibt der MR einen Anstieg bei kleinen Magnetfeldern,

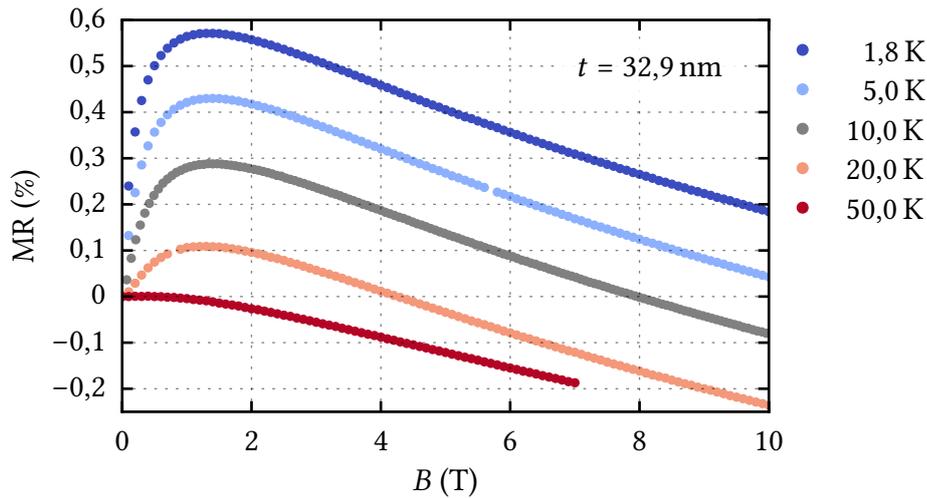


Abbildung 6.9: Magnetfeldabhängiger Magnetwiderstand einer 32,9-nm-dicken BaPbO₃-Monolage, gewachsen auf MgO, bei verschiedenen Temperaturen. Bei tiefen Temperaturen steigt der MR mit zunehmender Magnetfeldstärke zunächst an, durchläuft ein Maximum bei etwa 1,3 T und fällt anschließend wieder ab. Die Verläufe werden überwiegend QI-Effekten zugeschrieben. Während die magnetfeldabhängige Lage des Maximums mit der Spin-Bahn-Streurate skaliert und über die Temperatur relativ konstant bleibt, ist dessen Hub indirekt proportional zur inelastischen Streurrate. Diese nimmt mit zunehmender Temperatur zu (z. B. wegen zunehmenden Elektron-Phonon-Streuungen), so dass die WAL in die WL übergeht.

gefolgt von einem Abfall bei größeren Magnetfeldern. Diese Verläufe erinnern an das Verhalten der WAL, während der Verlauf bei 50 K dem der WL ähnelt. Diesen Beobachtungen zufolge sollte bei tiefen Temperaturen antilokalisierendes Verhalten und damit ein logarithmischer Abfall des elektrischen Widerstands (nach Gl. 5.66) als Funktion abnehmender Temperatur in Erscheinung treten. Ein simultanes Vorliegen unterschiedlicher Kanäle in getrennten Bändern, bei denen im MR-Verhalten WAL und im $R(T)$ -Verhalten WL vorherrschen, ist aufgrund der linearen Verläufe des magnetfeldabhängigen Hall-Widerstands (Abb. 6.2) auszuschließen [A1]. Somit bleibt als anscheinend widersprüchliche Erklärung des logarithmischen Anstiegs des elektrischen Widerstands als Funktion abnehmender Temperatur letztendlich nur noch der Effekt der EEI. Im Folgenden möchte ich mich nun eingehender mit dem Zusammenspiel aus QI und EEI und der theoretischen Beschreibung der Daten befassen. Außerdem werde ich zeigen, wie sich das vermeintlich widersprüchliche MR- und $R(T)$ -Verhalten aufklären lässt.

6.1.4 Quantenkorrekturen

Die bei tiefen Temperaturen beobachtbaren Quantenkorrekturen zeigen einerseits eine Abhängigkeit von der Dimensionalität der Probe, können aber andererseits auch

in verschiedenen Regimen unterschiedliche Signaturen haben. Daher möchte ich zunächst auf die unterschiedlichen Regime und die Abhängigkeit von der Dimensionalität der Quanten-Effekte eingehen. Die Auswirkungen der Quanteneffekte zeigen sich deutlich in der Änderung der spezifischen Leitfähigkeit, die im Folgenden immer die zweidimensionale spezifische Leitfähigkeit (R_s^{-1}) sein wird. Um dabei transversale Beiträge der spezifischen Leitfähigkeit aufgrund der Messgeometrie zu vermeiden, sind nahezu alle diskutierten Magnetotransportdaten symmetrisiert (s. Gl. 5.8).

Regime und Dimensionalität

Zur Abschätzung des Einflusses der Dimensionalität auf einen Effekt im elektrischen Transport muss die räumliche Ausdehnung des Systems jeweils mit der dem Effekt zugrundeliegenden charakteristischen Länge verglichen werden. Mit einer Länge von $l = 1000 \mu\text{m}$ und einer Breite von $w = 200 \mu\text{m}$ des verwendeten Messstegs sind diese Lineardimensionen wesentlich größer als typische charakteristische Längen, die den elektrischen Transport beschreiben. Dementsprechend entscheidet primär die (elektrisch aktive) Schichtdicke darüber, ob ein physikalisches Ereignis in einem zwei- oder dreidimensionalen Bild zu interpretieren ist. Wie bereits erwähnt, ist in meinen Proben die klassische diffuse Leitfähigkeit dreidimensional ($t \gg l_{\text{mfp}}$).

Für die EEI ist die thermische Diffusionslänge $l_{\text{th}} \approx \sqrt{D\hbar/k_B T}$ entscheidend. Die EEI ist zweidimensional zu betrachten, wenn die (elektrisch aktive) Schichtdicke t kleiner als die thermische Diffusionslänge ist und bei einem umgekehrten Verhältnis dreidimensional. Damit findet der 2D-3D-Übergang des Effekts statt, wenn die Bedingung $l_{\text{th}} = t$ erfüllt ist. Da die thermische Diffusionslänge indirekt proportional zur Temperatur ist, ist mit ansteigender Temperatur ein dimensionaler 2D-3D-Übergang zu erwarten. Mit den in Tabelle 6.1 gezeigten Werten für die Diffusionskonstante findet dieser Übergang bei den unterschiedlich dicken Proben bei Temperaturen zwischen 0,4 K bis 15,3 K statt. Je dicker die Probe ist, desto geringer ist die Temperatur des erwarteten dimensional Übergangs. Allerdings zeigt sich oftmals auch in den Proben dieser Arbeit, dass auch oberhalb dieser Temperatur noch eine $\ln(T)$ -Abhängigkeit des elektrischen Widerstands vorliegt, was weiterhin auf einen vorherrschenden zweidimensionalen Charakter der EEI schließen lässt. Im Dreidimensionalen wäre eine \sqrt{T} -Abhängigkeit zu erwarten. Diese Diskrepanz wird im weiteren Verlauf diskutiert.

Für QI ist die Thouless-Länge $l_t = \sqrt{D\tau_i}$ die relevante, charakteristische Größe. Diese kann durch Auswertung der QI-Effekte ermittelt werden und wird dementsprechend in dieser Arbeit zur Verifizierung der angenommenen Dimensionalität verwendet. Es wird sich herausstellen, dass die Schichtdicke t im relevanten Temperaturbereich immer kleiner als die Thouless-Länge l_t ist und damit die QI in BaPbO₃-Dünnschichten

in Abwesenheit eines Magnetfelds ebenfalls zweidimensional betrachtet werden kann. Materialien mit einem dreidimensionalen elektrischen Transport und zweidimensionalen Quantenkorrekturen werden häufig als quasi-zweidimensional bezeichnet. Da sowohl die thermische Diffusionslänge l_{th} als auch die Thouless-Länge l_t mit steigender Temperatur abnimmt, finden temperaturabhängig dimensionale Übergänge statt [248].

Unter zusätzlichen äußeren Magnetfeldern wird die Diskussion diffiziler. Zunächst möchte ich an dieser Stelle vermerken, dass in meinen BaPbO₃-Dünnschichten klassische Beiträge (Gl. 5.15) (anders als bei einigen Publikationen [193, 297, 298]) aufgrund der Kohler'schen Regel und der kleinen Transportstreuzeit τ_{tr} selbst bei hohen Magnetfeldern vernachlässigt werden können (τ_{tr} ist immer unterhalb von 10 fs, damit ist $\omega_c \tau_{tr}$ selbst bis 14 T kleiner als 0,025 und damit deutlich kleiner als 1). Der Einfluss eines externen Magnetfelds kann nun erneut über eine charakteristische Länge, die magnetische Länge $l_{mag} = \sqrt{\hbar/4eB}$, abgeschätzt werden. Diese kann – abhängig von der Schichtdicke – bei verhältnismäßig kleinen Magnetfeldern ($B < 1$ T) zu einem 2D-3D-Übergang führen [299, 300]. Bei der QI äußert sich dieser dimensionale Übergang in einem Wechsel von einem $\ln(T)$ -Verhalten zu einem \sqrt{T} -Verlauf bei größeren Magnetfeldern (allerdings nur deutlich oberhalb von B_{so}), was sich auch bei vielen der hier gezeigten Dünnschichtproben beobachten lässt. Während für die HLN-Theorie die Erweiterung der finiten Schichtdicke diesen dimensionalen Übergang ergänzt (Gl. 5.56/5.57), ist mir selbiges für die ILP-Theorie nicht bekannt.

Anpassungsversuche der MR-Daten mittels ILP-Theorie (nicht gezeigt) ergeben allerdings nur dann eine gute Übereinstimmung, sofern ausschließlich eine dreifache Spinwindung entlang der Fermifläche angenommen wird. Da die ILP-Theorie im Grenzfall der dreifachen Spinwindung äquivalent zur HLN-Theorie unter Annahme des DP-Mechanismus ist, wird in dieser Arbeit ausschließlich die deutlich weniger rechenintensive (Faktor 3000 in der Rechenzeit) HLN-Theorie verwendet, die zudem um den dimensionalen Übergang ergänzt werden kann. Diese kann sowohl mit angenommenen EY- als auch DP-Spinrelaxationsmechanismus angewandt werden. Dabei auftretende Unterschiede zwischen den resultierenden Anpassungen sind gering (vgl. Abb. 5.6) und lassen sich unter leicht unterschiedlichen Werten für B_i und B_{so} gegenseitig anpassen. So resultieren unter einem angenommenen DP-Mechanismus im Vergleich zum EY-Mechanismus in etwa 6 % größere Werte für B_{so} .

Zur Erklärung des Auswerteverfahrens werde ich zunächst die HLN-Theorie unter angenommenem DP-Mechanismus auf meine Messdaten anwenden, um mit den Publikationen [A1, A2] konsistent zu bleiben. Im weiteren Verlauf werde ich diese Annahme diskutieren. Entgegen dem Vorgehen in den Publikationen werde ich in dieser Arbeit alle Daten mit der Erweiterung der finiten Schichtdicke in der HLN-Theorie

anpassen. Der Effekt ist bei den publizierten dünnen Proben gering (vgl. Abb. 5.7 b)), zur Beschreibung dicker Proben allerdings notwendig.

Häufig wird zur Abschätzung des elastischen charakteristischen Magnetfelds B_e die Transportstreuzeit τ_{tr} verwendet [193]. Da diese bei tiefen Temperaturen überwiegend durch Stoßprozesse an Gitterdefekten und damit primär von elastischen Stoßprozessen geprägt sein sollte, ist dies zur Abschätzung der Größenordnung gerechtfertigt. Mit Gleichung 5.27 sowie den Transportstreuzeiten und Diffusionskonstanten aus Tabelle 6.1 ergeben sich geschätzte B_e -Felder von minimal 65 T bis zu maximal 5724 T. Damit sind diese in jedem Fall deutlich größer als das externe Magnetfeld, wodurch diejenigen Terme der Ψ -Funktionen vernachlässigt werden können, die B_e enthalten (Näherung $B_e \gg B$).

Für die EEI ist eine Beschreibung des dimensionalen Übergangs aufgrund der magnetischen Länge l_{mag} nicht bekannt. Bei den Auswertungen müsste daher im unteren Magnetfeldbereich die EEI mit zweidimensionalen und im oberen Bereich mit dreidimensionalen Theorien angepasst werden, während ein kontinuierlicher Übergangsbereich nicht beschrieben werden kann. Aufgrund dessen, dass im MR die QI dominiert und die Unterschiede zwischen den Verläufen von zweidimensionalen und dreidimensionalen EEI-Beiträgen bei größeren Magnetfeldern gering ausfallen (am meisten differieren die Verläufe bei kleinen Magnetfeldern), wird zur Auswertung der Daten die EEI in einem ausschließlich zweidimensionalen Bild beschrieben. Um den damit einhergehenden Fehler gering zu halten, gleichzeitig aber die Signaturen der WAL möglichst gut zu erfassen, werden die Anpassungen auf einen Magnetfeldbereich von meist $B = 5$ T beschränkt.

QI im MR

Ich möchte meine Analysen am Beispiel einer 6-nm-dicken BaPbO₃-Monolage auf einem chemisch-mechanisch gereinigten SrTiO₃-Substrat schrittweise erklären (Messreihe STO #1). Diese Monolage zeichnet sich durch eine vergleichsweise bessere Abschirmung der Elektronen sowie durch Werte der charakteristischen Magnetfelder B_i und B_{so} aus, die bei dieser Probe in vergleichbarer Größenordnung liegen. In den folgenden Abschnitten werde ich dabei schrittweise wichtige Gedanken aus den Publikationen [A1, A2] zusammenfassen und letztendlich exemplarisch an der ausgewählten Probe das Auswerteverfahren erklären, das ich standardmäßig zur Analyse des elektrischen Transports verwende.

Häufig findet man den Ansatz, dass der Einfluss der EEI auf den MR vergleichsweise klein ausfällt und somit vernachlässigt werden kann, sofern die EEI überhaupt berücksichtigt wird. Die MR-Daten lassen sich relativ gut mit der HLN-Theorie unter

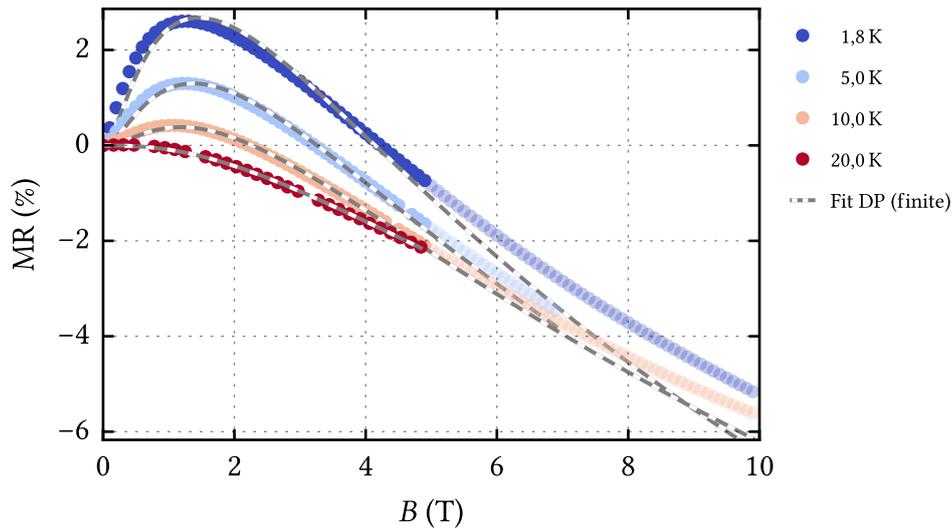


Abbildung 6.10: Magnetfeldabhängigkeit des Magnetwiderstands MR bei verschiedenen Temperaturen und deren Anpassungen mit Theorien der QI, gemessen an einer 6-nm-dicken BaPbO₃-Dünnschichtprobe, gewachsen auf SrTiO₃ (STO #1). Die Datenreihen werden einzeln mit Gleichung 5.57 (mit $B_e \gg B$) angepasst, wobei als freie Anpassungsparameter nur B_i und B_{so} zugelassen werden. Die Anpassungen werden auf den Magnetfeldbereich bis 5 T (durch dunklere Marker angedeutet) begrenzt, um das Maximum der Kurve und damit die Signatur der WAL bestmöglich zu beschreiben. Bei größeren Magnetfeldern weicht die Extrapolation der Anpassung vom Verlauf der Daten ab. Die extrahierten Werte von B_i und B_{so} werden in Abbildung 6.11 weiter diskutiert. Auswertemethode nach [A1].

Annahme eines DP-Mechanismus (und Erweiterung auf finite Schichtdicken) beschreiben (vgl. Abb. 6.10). Durch Anpassungen (Gl. 5.57, $B_e \gg B$) der MR-Daten bei verschiedenen Temperaturen lassen sich temperaturabhängige Werte für die charakteristischen Felder B_i und B_{so} extrahieren. Wie in Abbildung 6.11 zu sehen, ist in dieser Probe für Temperaturen unterhalb von 10 K das extrahierte charakteristische Feld der Spin-Bahn-Streuung stärker als das der inelastischen Streuung ($B_{so} > B_i$), weswegen anzunehmen ist, dass das System in diesem Temperaturbereich antilokalisierendes Verhalten zeigt. Das temperaturabhängige charakteristische Feld $B_i(T)$ bestimmt maßgeblich den temperaturabhängigen Verlauf der QI und kann meist algebraisch mit Gleichung 5.63 beschrieben werden. Wenn man nun auf Basis dieser Daten den damit einhergehenden erwarteten Einfluss der WAL auf die temperaturabhängige Änderung der spezifischen Leitfähigkeit $\Delta\sigma(T)$ mit Gleichung 5.66 berechnet, resultiert eine Zunahme derer mit sinkender Temperatur (vgl. Abb. 6.11). Um die aufgezeichneten $\Delta\sigma(T)$ -Daten um den Beitrag der WAL zu bereinigen, muss dieser von den Rohdaten abgezogen werden. Es resultiert eine $\ln(T)$ -Abhängigkeit der temperaturabhängigen Änderung der spezifischen Leitfähigkeit $\Delta\sigma(T)$, die nun im Bild der EEI beschrieben werden kann (Gl. 5.73). Dabei wird in diesem Fall als Referenz-Temperatur $T_{ref} = 7$ K gesetzt, da mit dem weitgehend konstanten Wert der Diffusionskonstante aus Tabel-

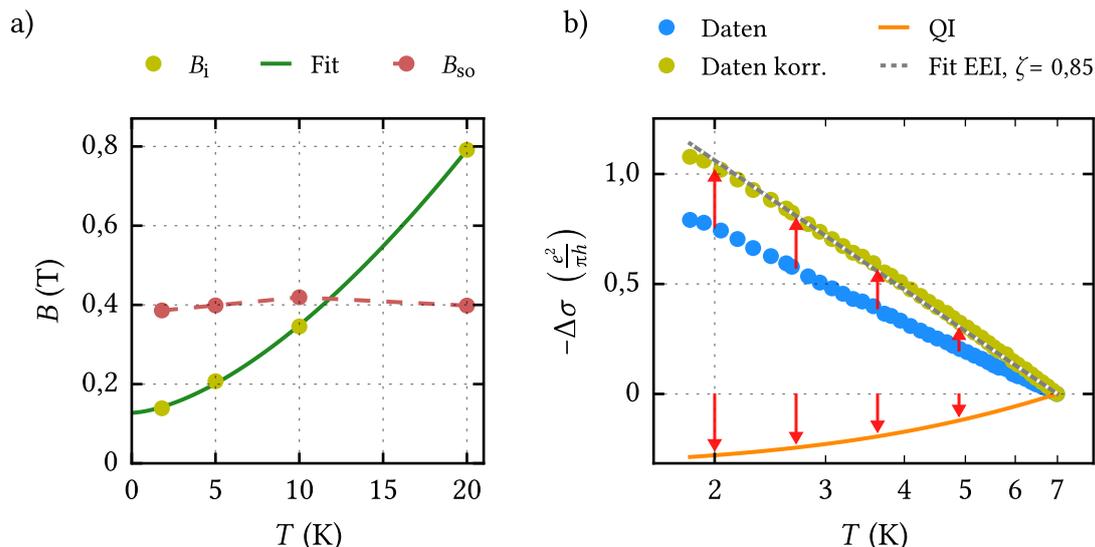


Abbildung 6.11: Auswertung des elektrischen Transports einer 6-nm-dicken BaPbO_3 -Dünnschichtprobe, gewachsen auf SrTiO_3 (STO #1), Auswertemethode nach [A1]. **a)** Aus Anpassungen des Magnetotransports MR bei verschiedenen Temperaturen T mit Theorien der QI (Abb. 6.10) lassen sich $B_i(T)$ und $B_{so}(T)$ extrahieren. Ersteres kann meist mit einem algebraischen Zusammenhang beschrieben werden (Gl. 5.63), wobei sich in diesem Fall Werte von $\alpha = 1,58$, $\beta = 5,75 \text{ mT/K}^\alpha$ und $\gamma = 127,55 \text{ mT}$ ergeben. Nachdem unterhalb von 10 K antilokalisierendes Verhalten in den Vordergrund tritt, ist eine häufig angewandte Methode, den Einfluss der QI auf die temperaturabhängige Änderung der spezifischen Leitfähigkeit $\Delta\sigma(T)$ mit Gleichung 5.66 abzuschätzen. **b)** Der prognostizierte Einfluss der QI auf $\Delta\sigma(T)$ (orangene) kann von den Messdaten (blau) abgezogen werden, wodurch sich der um den QI-Beitrag bereinigte $\Delta\sigma(T)$ -Verlauf ergibt (gelb). Die so ermittelte Änderung der spezifischen Leitfähigkeit zeigt eine $\ln(T)$ -Abhängigkeit und kann mit Theorien der zweidimensionalen EEI angepasst werden (Gl. 5.73). Es ergibt sich ein Wert für die Abschirmkonstante von $\zeta = 0,85$. Als Referenztemperatur wurde $T_{\text{ref}} = 7 \text{ K}$ angenommen.

le 6.1 von $D = 0,34 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$ und der Schichtdicke von $t = 6 \text{ nm}$ ein 2D-3D-Übergang der EEI bei etwa $7,2 \text{ K}$ zu erwarten ist.

Dieses Vorgehen führt meist zu plausiblen Ergebnissen und ist Gegenstand der Publikation [A1]. Die beschriebene Auswertemethode kann allerdings auch zu falschen Aussagen führen, wenn einerseits der Einfluss der EEI auf den MR nicht zu vernachlässigen ist und andererseits die Werte der charakteristischen Felder von B_i und B_{so} in der gleichen Größenordnung liegen. In diesem Fall ist die Beschreibung des Betrags der WAL auf die temperaturabhängige Änderung der spezifischen Leitfähigkeit mit Gleichung 5.66 ungenau. Beides trifft auf die ausgewählte Probe zu, sodass in diesem speziellen Fall die oben eingeführte Auswertemethode zu fehlerbehafteten Interpretationen der Daten führt. Daher habe ich in dieser Doktorarbeit eine Methodik entwickelt, die diese Problematik minimiert. Diese möchte ich in den folgenden beiden Abschnitten genauer vorstellen.

Selbstkonsistentes Anpassen

Die Annahme, den EEI-Beitrag im MR zu vernachlässigen, ist vor allem dann gerechtfertigt, wenn der Wert für die Abschirmkonstante nahe bei eins liegt ($\zeta \rightarrow 1$). Mit Gleichung 5.70 wird damit der Einfluss der EEI auf die Änderung der spezifischen Leitfähigkeit verschwindend klein. Für den Fall $\zeta < 1$ empfiehlt es sich, diesen Beitrag im MR mit zu berücksichtigen. Da allerdings gleichzeitige Anpassungen von EEI- und QI-Beiträgen im MR- bzw. $R(T)$ -Verlauf aufgrund mehrerer Anpassungsparameter und teilweise ähnlicher Verläufe (mit entgegengesetzten Vorzeichen) abhängig von vorgegebenen Start- und Grenzwerten unterschiedliche Ergebnisse liefern – wodurch die Ergebnisse auch inkonsistent werden – möchte ich in diesem Abschnitt eine selbst entwickelte Fitroutine vorstellen, die ich im Rahmen dieser Doktorarbeit in der Programmiersprache Python [301] implementiert habe. Diese sogenannte selbstkonsistente Fitroutine ist auch Gegenstand der Publikation [A2].

Die Auswertung beruht auf folgender Grundidee: Äquivalent zum Abzug des QI-Beitrags von der temperaturabhängigen Änderung der spezifischen Leitfähigkeit $\Delta\sigma(T)$ kann nun in einem nächsten Schritt die magnetfeldabhängige Änderung der spezifischen Leitfähigkeit $\Delta\sigma(B)$ vom EEI-Beitrag bereinigt werden¹. Als Grundlage dient der aus Abbildung 6.11 b) bestimmte Abschirmparameter ζ , um mit Gleichung 5.70 (unter Annahme eines Landé-Faktors von $g = 2$) den Einfluss der EEI auf $\Delta\sigma(B)$ zu berechnen und von den Rohdaten abzuziehen. Anschließend können die vom EEI-Beitrag bereinigten $\Delta\sigma(B)$ -Werte wieder ausschließlich im Bild der QI angepasst werden, wodurch sich leicht unterschiedliche Werte für B_{so} und B_i ergeben können. Die Temperaturabhängigkeit der so bestimmten $B_i(T)$ -Werte können dann wieder als Startwerte dienen, um die $\Delta\sigma(T)$ -Werte vom Beitrag der QI zu bereinigen und damit die Abschirmkonstante erneut zu ermitteln. Damit ergibt sich eine iterierende Schleife, die im Idealfall konvergiert.

Als Abbruchbedingung der Iteration wird jeweils geprüft, ob der Wert der Abschirmkonstante ζ konvergiert, dieser sich also über mehrere Iterationen hinweg nur marginal ändert. Da bei einigen Auswertungen ein Wert von ζ nahe eins resultiert und hierbei die Gefahr besteht, dass die Anpassungsparameter während des Schleifendurchlaufs der Fitroutine oszillieren (da für den Fall $\zeta = 1$ der Einfluss der EEI auf $\Delta\sigma(B)$ verschwindet und dies einem Neustart der Fitroutine entspricht), habe ich zur Stabili-

¹ Es empfiehlt sich anstelle des MRs die Abhängigkeit des Magnetfelds in Form der Änderung der spezifischen Leitfähigkeit $\Delta\sigma(B)$ zu verwenden, da sich somit die Beiträge von QI und EEI additiv zusammensetzen (Gl. 5.34). Ist allerdings $\Delta\sigma^{EEI} \ll \Delta\sigma^{QI}$, so gilt näherungsweise:

$$\underbrace{\frac{1}{1 + R_s(\Delta\sigma^{EEI} + \Delta\sigma^{QI})}}_{MR} - 1 \approx \underbrace{\frac{1}{1 + R_s(\Delta\sigma^{EEI})}}_{MR^{EEI}} - 1 + \underbrace{\frac{1}{1 + R_s(\Delta\sigma^{QI})}}_{MR^{QI}} - 1. \quad (6.1)$$

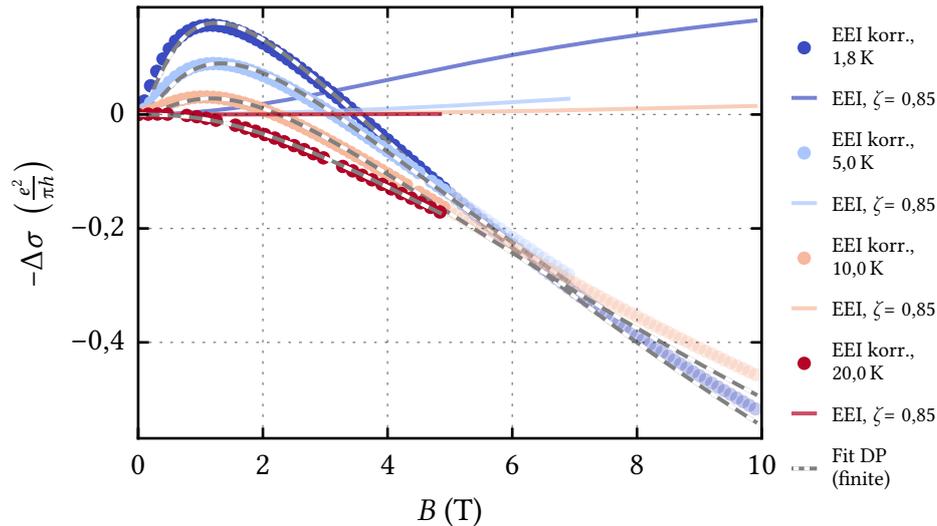


Abbildung 6.12: Anpassung der um den EEI-Beitrag bereinigten Magnetotransportdaten einer 6-nm-dicken BaPbO₃-Dünnschichtprobe, gewachsen auf SrTiO₃ (STO #1), Auswertemethode nach [A2]. Im Wechsel wird durch eine Fitroutine aus den $\Delta\sigma(B)$ -Werten der Beitrag der QI auf die $\Delta\sigma(T)$ -Werte herausgearbeitet und von diesen abgezogen (Abb. 6.13), um daraus den Beitrag der EEI auf $\Delta\sigma(B)$ abzuschätzen und von den Rohdaten abzuziehen. Gezeigt sind hier die um den EEI-Beitrag bereinigten $\Delta\sigma(B)$ -Verläufe, nachdem die Fitroutine konvergiert ist. Der EEI-Beitrag der jeweiligen Temperatur (durchgezogene Linien) wurde mit $\zeta = 0,85$, $g = 2$ und Gleichung 5.70 berechnet. Der Anpassungsbereich ist auf 5 T limitiert, die Extrapolation der Anpassung beschreibt die Daten bis 10 T vergleichsweise gut.

sierung der Fitroutine den jeweils resultierenden Wert der Abschirmkonstante ζ meist über die letzten ein bis zwei Schleifendurchläufe gemittelt.

Die Iteration erfolgt demnach in den folgenden Schritten:

1. Beschreibung der $\Delta\sigma(B)$ -Daten bei verschiedenen Temperaturen mit Theorien der QI (analog zu Abb. 6.10),
2. algebraische Bestimmung der Temperaturabhängigkeit von $B_i(T)$ (analog zu Abb. 6.11 a)),
3. Abzug des mit $B_i(T)$ berechneten QI-Beitrags von $\Delta\sigma(T)$ und Anpassung der QI-bereinigten-Daten mit Theorien der EEI (analog zu Abb. 6.11 b)),
4. Extraktion des Abschirmparameters ζ und Mittelung dessen über die letzten ein bzw. zwei Iterationen,
5. Prüfung, ob ζ konvergiert. Falls ja: Beendigung der Fitroutine, falls nein: Abzug des EEI-Beitrags von den $\Delta\sigma(B)$ -Daten und Rücksprung zu Schritt 1.

Der Programmablauf ist in Abbildung A.6 in Form eines Flussdiagramms dargestellt. Wendet man diese Fitroutine auf die 6-nm-dicke BaPbO₃-Dünnschichtprobe an, so ergeben sich nach zwölf Iterationsschritten die in Abbildung 6.12 gezeigten, um die eingezeichneten EEI-Beiträge (durchgezogene Linien) bereinigten $\Delta\sigma(B)$ -Kurven. Wie

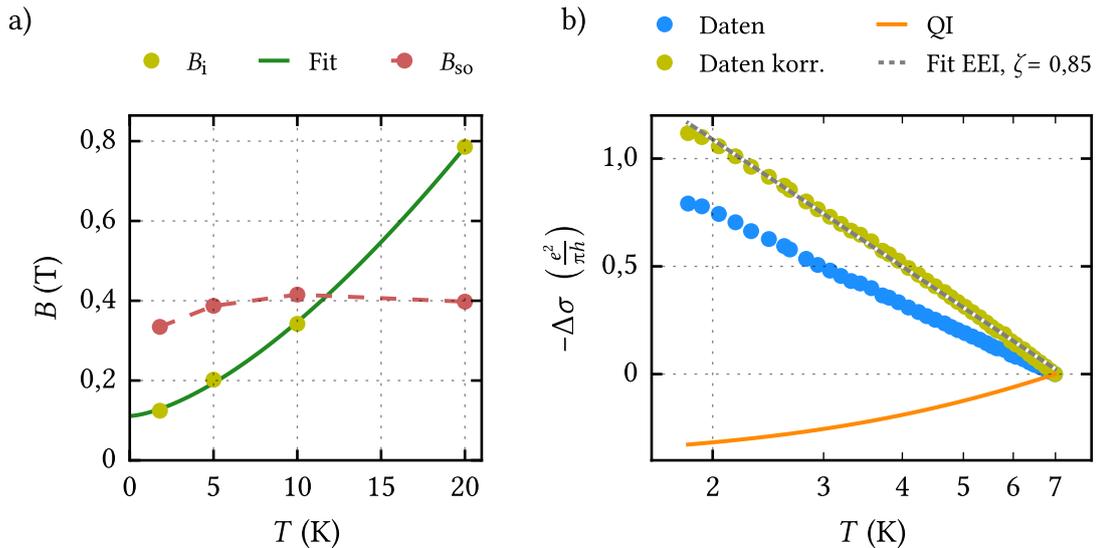


Abbildung 6.13: Selbstkonsistente Bestimmung des EEI-Beitrags einer 6-nm-dicken BaPbO₃-Dünnschichtprobe, gewachsen auf SrTiO₃ (STO #1), Auswertemethode nach [A2]. a) Temperaturabhängiger Verlauf von $B_i(T)$ und $B_{so}(T)$, extrahiert aus Abbildung 6.12. Nach Berücksichtigung des EEI-Beitrags im $\Delta\sigma(B)$ -Verlauf ergeben sich die Werte von $\alpha = 1,51$, $\beta = 7,2$ mT/K $^\alpha$ und $\gamma = 111$ mT. b) Korrektur der $\Delta\sigma(T)$ -Daten (blau) um den prognostizierten Beitrag der QI (Gl. 5.66, orange). Der resultierende Verlauf (gelb) kann mit Theorien der EEI verstanden werden (Gl. 5.73). Der extrahierte Wert der Abschirmkonstante wird während der Fitroutine zur Bereinigung der $\Delta\sigma(B)$ -Daten vom EEI-Beitrag weitergegeben (vgl. Abb. 6.12).

zu sehen, nimmt der Einfluss der EEI mit sinkender Temperatur stark zu. Die jeweiligen Anpassungen der bereinigten Daten mit Theorien der QI führen – selbst außerhalb des Anpassungsbereichs – zu deutlich besseren Übereinstimmungen, als unter Vernachlässigung des EEI-Beitrags (vgl. Abb. 6.10). Resultierende Werte für $B_i(T)$ sowie $B_{so}(T)$ (vgl. Abb. 6.12) ändern sich bei der untersuchten Probe durch die Fitroutine nur geringfügig, wodurch sich auch ein vergleichbarer Wert für die Abschirmkonstante ζ ergibt (vgl. Abb. 6.13).

Berücksichtigung des WL-WAL-Übergangs

Bisher habe ich zur Berechnung des WAL-Beitrags auf die temperaturabhängige Änderung der spezifischen Leitfähigkeit $\Delta\sigma(T)$ im Temperaturbereich unterhalb von 10 K durch Verwendung von Gleichung 5.66 die Annahme $B_{so} \gg B_i$ getroffen. Im speziellen Fall der hier diskutierten Probe liegen die Werte von B_i und B_{so} in der gleichen Größenordnung (vgl. Abb. 6.13 a)). Dementsprechend werde ich für künftige Auswertungen innerhalb der selbstkonsistenten Fitroutine den Beitrag der QI auf $\Delta\sigma(T)$ durch Verwendung der allgemeineren Gleichung 5.68 beschreiben. Den darin einfließenden Wert für B_{so} bestimme ich jeweils mitteln aus den extrahierten $B_{so}(T)$ -Werten.

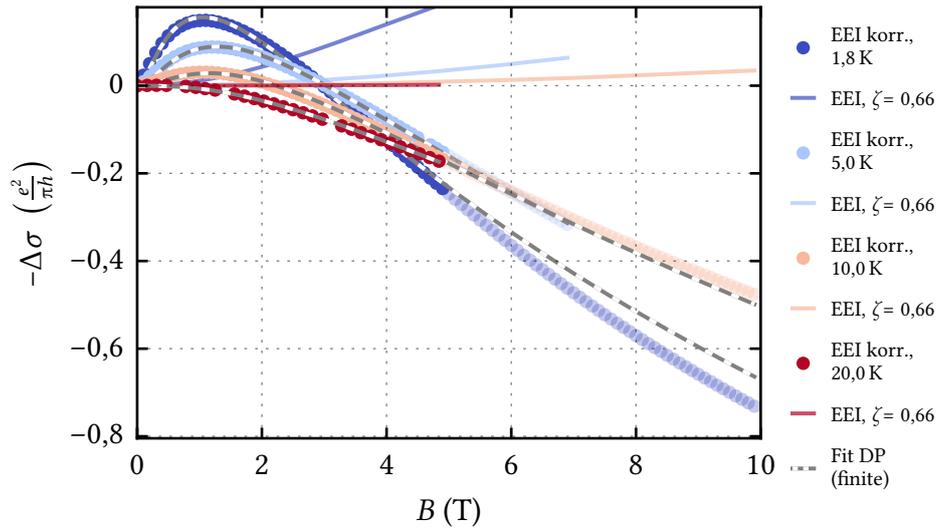


Abbildung 6.14: Ergebnis der selbstkonsistenten Fitroutine einer 6-nm-dicken BaPbO_3 -Dünnschichtprobe, gewachsen auf SrTiO_3 (STO #1), unter zusätzlicher Beachtung des WL-WAL-Übergangs bei der Beschreibung der $\Delta\sigma(T)$ -Daten. Der in Abbildung 6.15 bestimmte Wert der Abschirmparameter ist mit $\zeta = 0,66$ wesentlich geringer, wodurch sich mit Gleichung 5.70 vor allem bei tiefen Temperaturen ein großer Beitrag der EEI auf $\Delta\sigma(B)$ ergibt (durchgezogene Linien). Die Anpassung der um den EEI-Beitrag bereinigten $\Delta\sigma(B)$ -Daten gelingt mit Theorien der QI (Gl. 5.57, mit $B_e \gg B$). Die extrahierten Werte für $B_i(T)$ und $B_{so}(T)$ werden in Abbildung 6.15 weiter diskutiert. Die Abweichungen bei großen Magnetfeldern sind möglicherweise auf den nicht berücksichtigten dimensional Übergang der EEI aufgrund der immer kleiner werdenden magnetischen Länge l_{mag} zurückzuführen.

Bei der ausgewählten Probe ist mit abnehmender Temperatur ein WL-WAL-Übergang bei etwa 11 K bis 12 K zu erwarten ($B_i \approx B_{so}$, vgl. Abb. 6.13 a)). Dieser Übergang ist bereits im Magnetotransport ersichtlich (vgl. Abb. 6.12). Durch Verwendung von Gleichung 5.68 in der selbstkonsistenten Fitroutine ergibt sich an dieser Probe ein deutlich kleinerer Wert für die Abschirmkonstante ζ , wodurch der Einfluss der EEI auf $\Delta\sigma(B)$ wesentlich stärker ausfällt (vgl. Abb. 6.14) und die im vorherigen Abschnitt beschriebene Verbesserung der Berücksichtigung der EEI bei der magnetfeldabhängigen Änderung der spezifischen Leitfähigkeit an Bedeutung gewinnt. Die Daten lassen sich innerhalb des Anpassungsbereichs hervorragend beschreiben. Daraus extrahierte Werte für $B_i(T)$ und $B_{so}(T)$ ändern sich wieder nur geringfügig, allerdings zeigt sich für die Korrektur von $\Delta\sigma(T)$ ein deutlich anderes Bild (vgl. Abb. 6.15): Die QI beschreibt nun einen Übergang von WL zu WAL mit sinkender Temperatur. Damit lässt sich auch das Abknicken des Verlaufs der $\Delta\sigma(T)$ -Daten bei etwa 11 K mit einer Zunahme an delocalisierenden Elektronen verstehen. Die EEI liefert gleichzeitig den dominierenden Beitrag und führt letztendlich zur Abnahme der spezifischen Leitfähigkeit mit sinkender Temperatur.

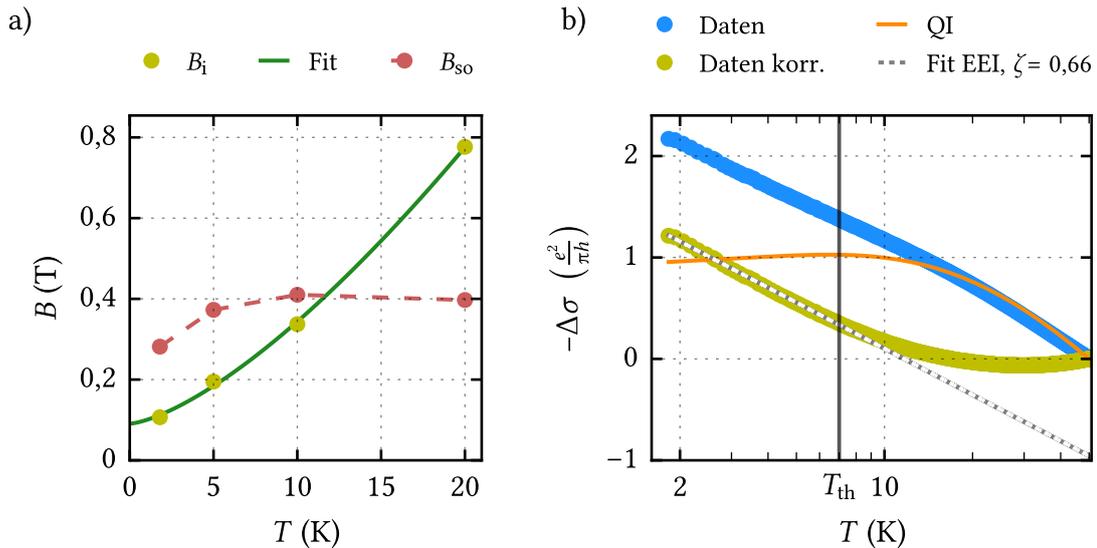


Abbildung 6.15: Ergebnis der selbstkonsistenten Fitroutine einer 6-nm-dicken BaPbO₃-Dünnschichtprobe, gewachsen auf SrTiO₃ (STO #1), unter zusätzlicher Beachtung des WL-WAL-Übergangs bei der Beschreibung der $\Delta\sigma(T)$ -Daten. **a)** Die Verläufe von $B_{SO}(T)$ und $B_I(T)$ (beschrieben über $\alpha = 1,44$, $\beta = 9,3 \text{ mT/K}^\alpha$ und $\gamma = 90,7 \text{ mT}$) kreuzen sich bei etwa 11 K, was auf einen WL-WAL-Übergang hindeutet. **b)** In der allgemeineren Gleichung 5.68 wird der WL-WAL-Übergang bei der Beschreibung des Einflusses der QI auf $\Delta\sigma(T)$ berücksichtigt, woraus sich der orangefarbene Verlauf ergibt ($T_{ref} = 50 \text{ K}$). Bei hohen Temperaturen nimmt die spezifische Leitfähigkeit mit sinkender Temperatur ab (WL), bei niedrigen zu (WAL). Das Abknicken des Verlaufs der Rohdaten (blau) bei etwa 11 K ist auf den WL-WAL-Übergang zurückzuführen. Die QI-bereinigten $\Delta\sigma(T)$ -Daten (gelb) zeigen bei tiefen Temperaturen bis $T_{th} \approx 7 \text{ K}$ eine $\ln(T)$ -Abhängigkeit, wodurch sich mit Gleichung 5.73 (unter Einführung eines Offsets als Anpassungsparameter) ein deutlich kleinerer Wert für die Abschirmkonstante ζ ergibt ($\zeta = 0,66$). Abweichungen von der $\ln(T)$ -Abhängigkeit bei höheren Temperaturen können auf das Verlassen des zweidimensionalen Regimes der EEI hindeuten ($l_{th}(T) < t$).

Die von der QI bereinigten $\Delta\sigma(T)$ -Daten lassen sich bis zur Temperatur etwa 7 K konsistent im Bild der EEI verstehen. Abweichungen von der $\ln(T)$ -Abhängigkeit bei höheren Temperaturen sind vermutlich auf einen dimensionalen Übergang der EEI von 2D zu 3D zurückzuführen. Dementsprechend wäre bei höheren Temperaturen eine \sqrt{T} -Abhängigkeit der Änderung der spezifischen Leitfähigkeit zu erwarten, was allerdings nicht beobachtet wird. Dies kann daran liegen, dass dieser dimensionale Übergang vermutlich kontinuierlich stattfindet, sodass der \sqrt{T} -Verlauf erst deutlich oberhalb von 7 K zu erwarten ist. Gleichzeitig nehmen mit zunehmender Temperatur Stoßprozesse mit Phononen zu, wodurch klassische Beiträge zunehmend die spezifische Leitfähigkeit beeinflussen.

Da die Temperatur T_{th} oberhalb derer der $\Delta\sigma(T)$ -Verlauf von der $\ln(T)$ -Abhängigkeit abweicht dem Verlassen des zweidimensionalen Regimes der EEI zugeschrieben wird, sollte bei dieser Temperatur die (elektrisch aktive) Schichtdicke t in etwa der thermi-

schen Diffusionslänge l_{th} (Gl. 5.75) entsprechen: $l_{\text{th}}(T_{\text{th}}, D) \approx t$. Somit kann über die Temperatur T_{th} und der (elektrisch aktiven) Schichtdicke t auf den Wert der Diffusionskonstante D zurückgeschlossen werden. Im weiteren Verlauf wird die auf diese Weise bestimmte Diffusionskonstante mit D_{th} bezeichnet. Bei der hier diskutierten Probe folgt mit der ermittelten Temperatur $T_{\text{th}} \approx 7$ K für die Diffusionskonstante $D_{\text{th}} \approx 0,33$ cm² s⁻¹, womit diese den klassisch bestimmten Wert von $D = 0,33$ cm² s⁻¹ bestätigt.

Zum Abschluss der Auswertung dieser Probe bleibt noch zu überprüfen, ob die zweidimensionale Beschreibung der QI unter Annahme eines DP-Relaxationsmechanismus überhaupt legitim ist. Das inelastische Feld B_i kann mit Gleichung 5.27 in eine charakteristische Länge, die Thouless-Länge l_i , übersetzt werden. Durch Extrapolation des gegebenen $B_i(T)$ -Verlaufs aus Abbildung 6.15 a) ergibt sich eine maximale Thouless-Länge von etwa $l_i = 42$ nm bei $T \rightarrow 0$ K, womit diese deutlich kleiner ist als die Länge und Breite des Messstegs, aber deutlich größer als die Schichtdicke der betrachteten Dünnschichtprobe. Im weiteren Verlauf werde ich die Temperatur, bei der ein 2D-3D-Übergang der QI aufgrund der Thouless-Länge erwartet wird, als T_i bezeichnen. Zur Bestimmung dessen extrapoliere ich den $B_i(T)$ -Verlauf und überprüfe, bei welcher Temperatur die Thouless-Länge l_i der (elektrisch aktiven) Schichtdicke t entspricht: $l_i(B_i) \approx t$. In der 6-nm-dicken BaPbO₃-Dünnschichtprobe ist der dimensionale Übergang der QI bei einer Temperatur von etwa $T_i \approx 74$ K zu erwarten. Allerdings wird die Temperaturabhängigkeit von $B_i(T)$ aufgrund der zunehmenden Elektron-Phonon-Wechselwirkung vermutlich nicht über den gesamten Temperaturbereich gleich bleiben, daher gilt dieser Wert lediglich als Orientierung. Im diskutierten Temperaturbereich bis maximal 20 K ist die Thouless-Länge durchgehend größer als die Schichtdicke t und daher die QI zweidimensional zu betrachten. Den angenommenen Spin-Relaxationsmechanismus möchte ich im folgenden Abschnitt kurz diskutieren.

Spin-Relaxationsmechanismus

Eine vergleichsweise einfache Möglichkeit, den vorherrschenden Spin-Relaxationsmechanismus zu bestimmen, ist das Vergleichen der Transportstreuzeit τ_{tr} mit der Spin-Bahn-Streuzeit τ_{so} : Während eine direkte Proportionalität auf einen EY-Mechanismus schließen lässt (Gl. 5.42), deutet eine indirekte Proportionalität auf den DP-Mechanismus hin (Gl. 5.44).

Die Transportstreuzeit τ_{tr} bei verschiedenen Temperaturen habe ich bereits über das Drude-Modell bestimmt (vgl. Abb. 6.7). Die aus der selbstkonsistenten Fitroutine extrahierten Werte des charakteristischen Magnetfelds B_{so} bei verschiedenen Temperaturen lassen sich mit Gleichung 5.27 zur Spin-Bahn-Streuzeit τ_{so} umrechnen. Dafür wird der Wert der Diffusionskonstante benötigt, der aber weitgehend temperaturabhängig

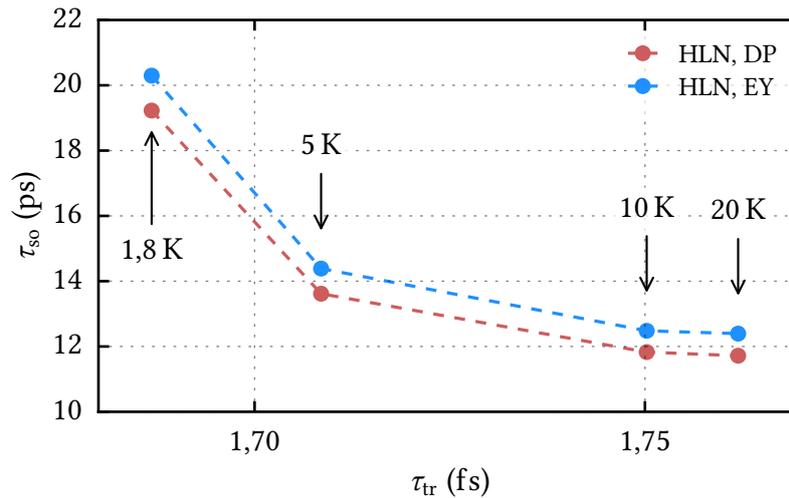


Abbildung 6.16: Zusammenhang zwischen der über die Drude-Theorie bestimmten Transportstreuzeit τ_{tr} und der aus Analysen der Magnetotransportdaten bestimmten Spin-Bahn-Streuzeit τ_{so} bei verschiedenen Temperaturen. Bei der Ermittlung der letztgenannten Größe fließt die Diffusionskonstante ein, die allerdings über die Temperatur weitgehend konstant ist. Unabhängig vom gewählten Relaxationsmechanismus zeigt sich bei der Auswertung der elektrischen Transportdaten mittels der selbstkonsistenten Fitroutine eine indirekte Proportionalität zwischen den beiden Streuzeiten. Dies deutet auf einen vorherrschenden DP-Mechanismus hin. Bei der Auswertung unter Berücksichtigung eines EY-Mechanismus ergeben sich etwas größere Spin-Bahn-Streuzeiten, als unter Berücksichtigung eines DP-Mechanismus.

ist und damit die prinzipielle Relation zwischen τ_{tr} und τ_{so} nicht beeinträchtigt. Es zeigt sich bei dieser Probe eine indirekte Proportionalität (vgl. Abb. 6.16), wodurch sich der angenommene DP-Mechanismus bestätigt. Wird die gleiche Auswertung mit einem angenommenen EY-Spin-Relaxationsmechanismus in der HLN-Theorie durchgeführt (Gl. 5.56), so ändert sich die prinzipielle Abhängigkeit von τ_{tr} und τ_{so} nicht. Somit wird das Ergebnis nicht von der Anfangsannahme beeinflusst. Die aus der selbstkonsistenten Fitroutine extrahierten Werte der Abschirmkonstante sowie weiterer Größen sind ebenfalls weitestgehend unabhängig vom angenommenen Spin-Relaxationsmechanismus. Wohlgermerkt vergleiche ich eine rein klassisch beschriebene Größe τ_{tr} , ermittelt in einem Temperaturbereich, der von Quanteneffekten (QI und EEI) geprägt wird, mit einer quantenmechanisch beschriebenen Größe τ_{so} . In der Literatur ist ein ähnliches Vorgehen vorzufinden [230, 231].

Damit habe ich nun an dieser Probe die wichtigsten Annahmen zur Dimensionalität der Effekte und zu den gewählten Regimen verifiziert. Mit anderen Kombinationen aus QI (z. B. reine WL, einfache Spinwindung, ILP-Theorie), EEI und zusätzlich SLF (mit $T_c < 1,8$ K) lassen sich die Daten nicht konsistent beschreiben.

Zur Kontrolle des extrahierten Wertes der Abschirmkonstante ζ und damit zur Verifizierung des beschriebenen Analyseverfahrens kann die temperaturabhängige

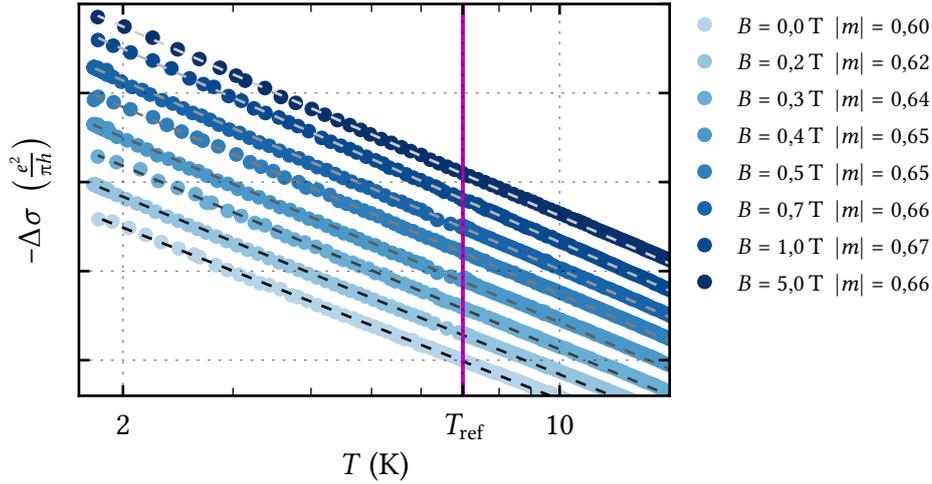


Abbildung 6.17: Temperaturabhängige Änderung der spezifischen Leitfähigkeit einer 6-nm-dicken BaPbO₃-Dünnschicht auf SrTiO₃, in Abhängigkeit äußerer Magnetfelder. Die angegebenen Steigungen $|m|$ der gestrichelten Linien ergeben sich aus der linearen Anpassung mit $\ln(T/T_{\text{ref}})$ im Temperaturbereich bis $T_{\text{ref}} = 7$ K (bei Skalierung mit $e^2/\pi h$). Die Daten wurden jeweils entlang der Ordinate verschoben, wobei $\Delta\sigma(T) = 0$ bei T_{ref} gilt. Übersteigt das angelegte Magnetfeld das inelastische Feld ($B > B_i$), was mit $B_i(10 \text{ K}) < 0,4 \text{ T}$ ab etwa $0,4 \text{ T}$ erfüllt ist (vgl. Abb. 6.15 a)), sollten QI-Effekte unterdrückt werden und die resultierende Steigung dem Abschirmparameter ζ entsprechen. Hierfür ergeben sich bei dieser Probe Werte von $0,65$ bis $0,67$ mit einem Mittelwert von $|m| = 0,658 \pm 0,008$, womit der aus der Fitroutine bestimmte Wert von $\zeta = 0,66$ bestätigt wird.

Änderung der spezifischen Leitfähigkeit unter einem angelegten, konstanten Magnetfeld untersucht werden. Ist die Bedingung $B > B_i(T)$ erfüllt, so werden Beiträge der QI auf $\Delta\sigma(T)$ vollständig unterdrückt (siehe S. 103). Der Beitrag der EEI ist davon weitestgehend unbeeinflusst, wodurch der resultierende Verlauf ausschließlich dem Effekt der EEI zugeschrieben werden kann. Für die diskutierte Probe muss zur Unterdrückung der QI-Beiträge im Temperaturbereich bis 10 K das angelegte externe Magnetfeld die Bedingung $B \geq 0,4 \text{ T}$ erfüllen (vgl. Abb. 6.15 a)). Die resultierenden Verläufe können mit einer $\ln(T)$ -Abhängigkeit und einem Vorfaktor im Absolutbetrag von $0,65$ bis $0,67$ beschrieben werden (bei Skalierung mit $e^2/\pi h$, vgl. Abb. 6.17). Mit unterdrückten QI-Beiträgen entsprechen diese dem Wert der Abschirmkonstante ζ (vgl. Gl. 5.73), womit der Durchschnittswert von $|m| = 0,658 \pm 0,008$ (bei $B > B_i$) den oben bestimmten Wert der Abschirmkonstante von $\zeta = 0,66$ bestätigt. Für $B < B_i$ trägt die WAL ebenfalls mit einer $\ln(T)$ -Abhängigkeit bei und verringert den Wert des Vorfaktors. Da bei dieser Probe der Einfluss der QI auf $\Delta\sigma(T)$ verglichen zu anderen Proben gering ist (da $B_i \approx B_{s0}$), unterscheiden sich die Werte der Vorfaktoren mit und ohne unterdrückten QI-Beiträgen nur geringfügig.

Dieses Vorgehen liefert mit vergleichsweise wenig Aufwand Werte für die Abschirmkonstante ζ . Werte für die charakteristischen Größen B_{so} sowie B_i sind jedoch weiterhin nur über eine zusätzliche Betrachtung der magnetfeldabhängigen Änderung der spezifischen Leitfähigkeit $\Delta\sigma(B)$ bestimmbar. Als Alternative zu der von mir beschriebenen selbstkonsistenten Fitroutine könnte man natürlich den Einfluss der EEI auf $\Delta\sigma(B)$ mit dem eben beschriebenen Verfahren (Untersuchung von $R(T, B > B_i)$) abschätzen, von den Rohdaten abziehen und die resultierenden Verläufe mit QI beschreiben. Die Ergebnisse sollten sich ähneln, allerdings sind diese nicht unbedingt konsistent zueinander. Man könnte nun wieder mit dem aus $\Delta\sigma(B)$ extrahierten QI-Beitrag überprüfen, ob damit $\Delta\sigma(T)$ konsistent beschreibbar ist, was aber weitgehend der oben beschriebenen selbstkonsistenten Fitroutine entspricht. Somit lässt sich zusammenfassend sagen, dass der gegenseitige Einfluss der QI und EEI im elektrischen Transport nur mit der Fitroutine selbstkonsistent beschrieben werden kann, sich dessen Ergebnis allerdings mit Untersuchungen von $R(T, B > B_i)$ unabhängig verifizieren lässt.

6.1.5 BaPbO₃-Schichtdickenstudie auf SrTiO₃-Substraten

Die Auswertemethode der selbstkonsistenten Fitroutine funktioniert bei allen Proben der Datenreihen STO #1 und STO #2. Die jeweiligen Anpassungen beschreiben die Daten sehr gut (vgl. Abb. A.7-A.11 im Anhang). Für beide Messreihen ergeben sich in Abhängigkeit der BaPbO₃-Schichtdicke die gleichen Trends (vgl. Abb. 6.18): Mit zunehmender Schichtdicke nehmen die charakteristischen Felder der inelastischen Streuung B_i sowie die der Spin-Bahn-Streuung B_{so} ab, während der Wert für die Abschirmkonstante ζ der Elektronen zunimmt. Letzteres ist insofern erstaunlich, da die Ladungsträgerdichte n_{3D} in den Proben mit steigender Schichtdicke ebenfalls zunimmt (vgl. Abb. 6.3). Da üblicherweise eine hohe Ladungsträgerdichte zu einer stärkeren Abschirmung der Elektronen führen sollte, müsste der Wert der Abschirmkonstante ζ eigentlich kleiner werden. Dafür spricht auch die Tatsache, dass die mittlere freie Weglänge l_{mfp} und die Transportstreuzeit τ_{tr} ebenfalls mit der Schichtdicke zunehmen und so eine geringere Unordnung im System andeuten. Üblicherweise schirmen sich die Elektronen in ungeordneten Systemen schlechter ab ($\zeta \rightarrow 1$).

Der Abfall des inelastischen Magnetfelds ist zum einen auf steigende Werte der Diffusionskonstante zurückzuführen, zum anderen auf eine leicht zunehmende inelastische Relaxationszeit τ_i , auch wenn die Elektronen tendenziell weniger abgeschirmt werden und so aufgrund der EEI eine Zunahme von inelastischen Stößen zu erwarten wären. Der Temperaturkoeffizient α , der den $B_i(T)$ -Verlauf charakterisiert, liegt wie theoretisch erwartet im Bereich zwischen 1 und 2 und steigt tendenziell mit der

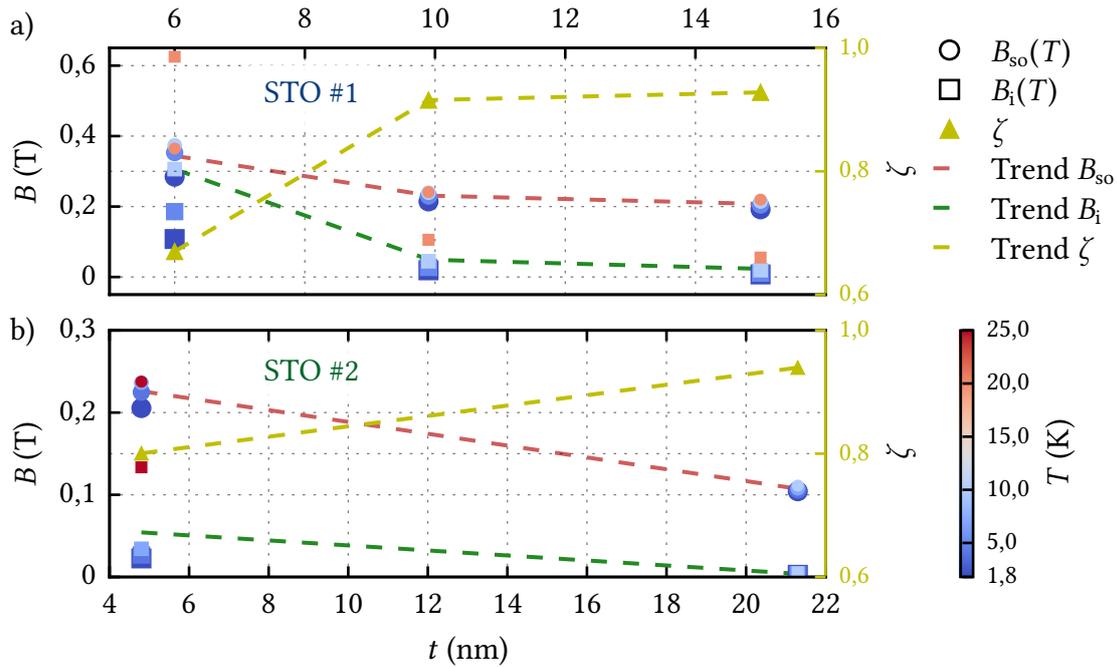


Abbildung 6.18: Schichtdickenabhängige Trends relevanter Größen, die über die selbstkonsistente Fitroutine zugänglich sind. Die beiden Messreihen a) STO #1 und b) STO #2 zeigen die gleiche Schichtdickenabhängigkeit mit zunehmenden Werten für die Abschirmkonstante sowie abnehmenden für die charakteristischen Felder B_i und B_{so} . Zwischen den Messreihen setzen sich die Trends nicht fort, was auf die starke Abhängigkeit dieser Größen von Wachstumsparametern zurückzuführen ist. Die verschiedenen Temperaturen, bei denen die eingezeichneten Werte von B_i und B_{so} ermittelt wurden, sind farblich kodiert. Gestrichelte Linien verbinden jeweils die Mittelwerte der jeweiligen Größen innerhalb einer Probe und zeigen dementsprechend die Trends der entsprechenden Größen an.

Schichtdicke t an (vgl. Tab. 6.2). Demnach nimmt der Einfluss der Phononen mit zunehmender Schichtdicke t zu. Der Parameter β sowie der Beitrag der inelastischen Streuung bei $T = 0$ K, ausgedrückt durch γ , nehmen indes ab.

Der Wert des charakteristischen Feldes B_{so} ist bei dünnen Filmen höher. Dies deutet in dünneren Proben auf einen zunehmenden Einfluss der Grenzfläche auf die Spin-Bahn-Kopplung hin und entspricht damit dem erwarteten Verhalten aufgrund des Bychkov-Rashba-Effekts. Mithilfe der bereits ermittelten Werte der Diffusionskonstante kann mit Gleichung 5.27 die Spin-Bahn-Streuzzeit τ_{so} bestimmt werden. Mit Auftragung dieser gegen die Transportstreuzeit τ_{tr} zeigt sich in Abhängigkeit der Schichtdicke eine indirekte Proportionalität der beiden Größen, was auf einen vorherrschenden DP-Mechanismus im Spinstreumechanismus hindeutet (vgl. Abb. 6.19). In Abhängigkeit der Temperatur (innen-liegende Abbildungen) ergibt sich für die 6-nm-dicke Probe – wie bereits diskutiert – eine indirekte Proportionalität der beiden Streuzeiten, wohingegen die beiden dickeren Proben eher über einen linearen

STO	t (nm)	T (K)	α	β (mT/K $^\alpha$)	γ (mT)	B_{so} (T)	B_i (T)	ζ	$\zeta_{R(T,B)}$	T_i (K)
#1	6,0	10,0	1,44	9,26	90,67	0,41	0,337	0,66	$0,65 \pm 0,01$	73
	9,9	10,0	1,74	0,53	18,66	0,25	0,047	0,92	$0,92 \pm 0,02$	102
	15,0	10,0	2,01	0,13	7,69	0,23	0,021	0,93	$0,93 \pm 0,01$	73
#2	4,8	7,0	1,74	0,49	21,66	0,25	0,036	0,81		247
	21,3	7,0	1,77	0,07	3,14	0,14	0,053	0,95		125

Tabelle 6.2: Übersicht relevanter Größen, die aus der Auswertung mittels der selbstkonsistenten Fitroutine gewonnen werden können. Die Werte von B_i und B_{so} beziehen sich auf die angegebene Temperatur T . Die Abschirmkonstante ζ kann in guter Übereinstimmung über Messung von $R(T, B > B_i)$ verifiziert werden ($\zeta_{R(T,B)}$). Die angegebene Temperatur T_i beschreibt die Temperatur, bei der die Thouless-Länge l_t auf Grundlage des algebraischen Zusammenhangs von $B_i(T)$ kleiner als die Schichtdicke t abgeschätzt wird und kann als Kriterium für die Gültigkeit der zweidimensionalen Beschreibung der QI herangezogen werden.

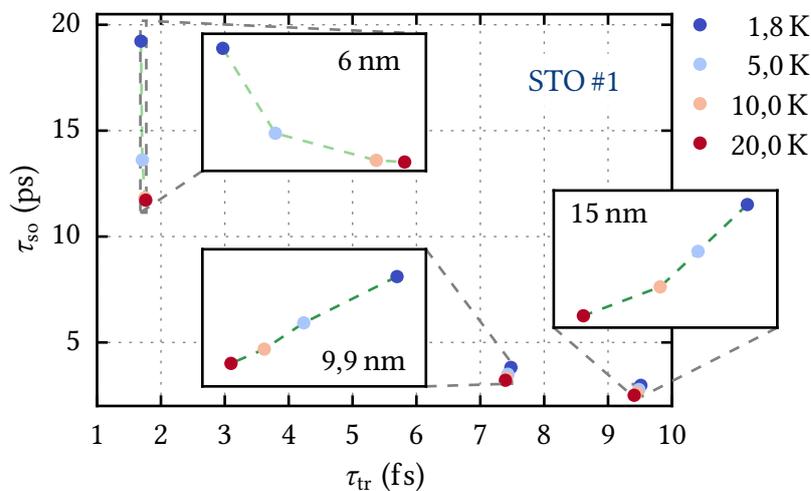


Abbildung 6.19: Zusammenhang der ermittelten Spin-Bahn-Streuzeiten τ_{so} und Transportstreuzeiten τ_{tr} in der Messreihe STO #1 zur Bestimmung des Spin-Relaxationsmechanismus. In Abhängigkeit der Schichtdicke zeigt sich eine indirekte Proportionalität der über das Drude-Modell bestimmten Transportstreuzeit (Gl. 5.3) und der über die selbstkonsistente Fitroutine und der Diffusionskonstante bestimmten Spin-Bahn-Streuzeit. In Abhängigkeit der Temperatur zeigt sich ein Übergang von indirekter zu direkter Proportionalität, was im ersten Fall auf den DP-Mechanismus und im zweiten Fall auf den EY-Mechanismus hindeutet.

t (nm)	T_{th} (K)	D_{th} ($\text{cm}^2 \text{s}^{-1}$)	D ($\text{cm}^2 \text{s}^{-1}$)
6,0	7,0	0,33	0,34
9,9	15,5	1,99	1,96
15,0	9,25	2,72	2,67

Tabelle 6.3: *Ermittelte Diffusionskonstanten aus STO #1.* Bis zur optisch abgeschätzten Temperatur T_{th} kann der von QI-Effekten bereinigte $\Delta\sigma(T)$ -Verlauf mit der zweidimensionalen Theorie der EEI beschrieben werden (s. Abb. A.7-A.9). Da ein dimensionaler Übergang bei höheren Temperaturen durch die thermische Diffusionslänge bestimmt wird (Gl. 5.75), kann mit der Schichtdicke t und T_{th} auf die Diffusionskonstante D_{th} rückgeschlossen werden. Diese verifizieren die klassisch bestimmten Werte der Diffusionskonstanten D .

Zusammenhang beschrieben werden können. Eine Extrapolation der linearen Verläufe führt allerdings nicht durch den Ursprung des Koordinatensystems, was im Fall eines ausschließlichen EY-Mechanismus zu erwarten wäre. Möglicherweise konkurrieren und überlagern sich in den betrachteten Dünnschichten die beiden Relaxationsmechanismen, wobei der Einfluss des DP-Mechanismus mit zunehmender Schichtdicke (und damit sinkendem Einfluss der symmetriebrechenden Grenzfläche) und abnehmender mittlerer freier Weglänge (bei Erhöhung der Temperatur, aufgrund von *Motional Narrowing*) abnimmt. Da die Ergebnisse aus der Analyse unter angenommenen EY- und DP-Relaxationsmechanismus nur geringfügig differieren², wird zur einheitlichen Beschreibung der Daten standardmäßig der DP-Mechanismus zugrunde gelegt.

In Abhängigkeit der Temperatur sind die ermittelten Werte für die Diffusionskonstante vergleichsweise konstant, sodass der temperaturabhängige Verlauf von τ_{so} alleinig durch B_{so} bestimmt wird. In Abhängigkeit der Schichtdicke beeinflussen die unterschiedlichen Werte der Diffusionskonstante den Trend maßgeblich (unter Annahme konstanter Werte für die Diffusionskonstante aller Schichten würde sich eine direkte Proportionalität einstellen). Dementsprechend möchte ich die ermittelten Werte der Diffusionskonstante für die verschiedenen Dünnschichtproben nach dem auf Seite 135 beschriebenen Verfahren verifizieren. Die über die thermische Diffusionslänge l_{th} und Schichtdicke t bestimmten Werte für die Diffusionskonstante stimmen mit den, über die Fermigeschwindigkeit bestimmten Werten überein (vgl. Tab. 6.3). Aufgrund dessen ist zudem zu vermuten, dass die elektrisch aktive Schichtdicke bei diesen Proben mit der BaPbO_3 -Schichtdicke übereinstimmt.

Die Messreihen STO #1 und STO #2 zeigen die gleichen Trends, unterscheiden sich allerdings untereinander (sowohl in klassisch als auch in nicht-klassisch bestimmten

² Im Unterschied der Ergebnisse der selbstkonsistenten Anpassungen im DP- oder EY-Regime resultiert ein Wert für ζ , der maximal um 0,5 % schwankt. Der Wert für das Magnetfeld B_{so} variiert dagegen aufgrund der unterschiedlichen Theorien um bis zu 8 %.

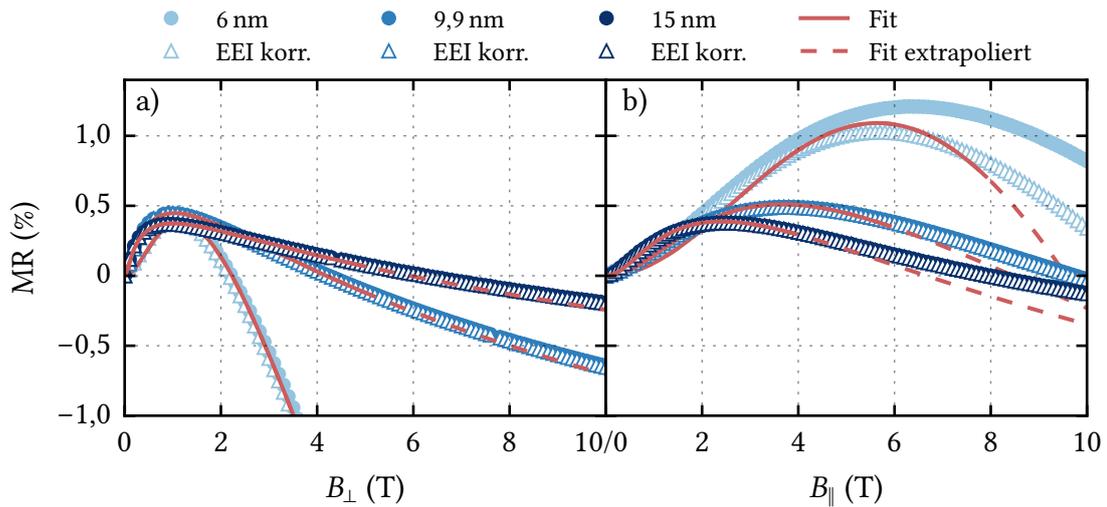


Abbildung 6.20: Magnetfeldabhängiger Magnetotransport im **a)** senkrechten sowie **b)** parallelen Magnetfeld, aufgenommen jeweils bei 10 K. Die Rohdaten werden jeweils um den (isotrop angenommenen) EEI-Beitrag bereinigt. Mit abnehmender Schichtdicke nimmt die Anisotropie zu, was auf den zugrundeliegenden zweidimensionalen Charakter der Dünnschichtproben zurückzuführen ist. Im parallelen Magnetfeld B_{\parallel} werden die Maxima zu größeren Magnetfeldern mit gleichzeitig ansteigenden MR-Werten verschoben. Die Daten im senkrechten Magnetfeld B_{\perp} werden bis über den Anpassungsbereich hinaus gut mit der HLN-Theorie beschrieben (Gl. 5.57, mit $B_e \gg B$). Im parallelen Magnetfeld B_{\parallel} gelingt die Anpassung über Gleichung 6.2 nur ansatzweise. Um die Signatur der QI zu erfassen, muss der Anpassungsbereich über die Limitierung der Theorie hinaus erweitert werden, was die Abweichungen erklären könnte. Entsprechende Anpassungsgrößen sind in Tabelle 6.4 zusammengefasst.

physikalischen Größen) signifikant. Dies weist auf die Anfälligkeit des Systems gegenüber kleinen Änderungen bei der Herstellung und Strukturierung der Proben hin. Am Beispiel der Messreihe STO #1 möchte ich nun noch den anisotropen magnetoresistiven Effekt betrachten.

Quantenkorrekturen im parallelen Magnetfeld

Magnetotransportdaten unter parallel zur Filmoberfläche (und elektrischen Stromrichtung) angelegtem Magnetfeld B_{\parallel} zeigen einen Anstieg im MR, gefolgt von einem Abfall bei größeren Magnetfeldern – analog zu den bekannten und verstandenen Verläufen unter senkrecht einwirkendem Magnetfeld (vgl. Abb. 6.20). Die Maxima sind im Parallelfeld B_{\parallel} hin zu größeren Magnetfeldern verschoben und zeigen einen umso höheren Hub, je kleiner die Schichtdicke t ist. Die steigende Anisotropie ist auf den zunehmenden zweidimensionalen Charakter des Systems zurückzuführen, während für dreidimensionale Systeme ein isotropes Verhalten zu erwarten ist. Der abfallende MR bei großen Magnetfeldern widerspricht dem erwarteten Verlauf der MF-Theorien, die den Effekt der Zeeman-Aufspaltung auf die QI beinhalten (vgl. Kap. A.2).

Dementsprechend wird zur Beschreibung der Daten eine Theorie verwendet, die den Einfluss des Aharonov-Bohm-Effekts auf die QI diskutiert (s. Kap. 5.3.3). Die in diesem Zusammenhang relevante Gleichung 5.58 beruht auf dem EY-Mechanismus. Eine äquivalente Formel für den DP-Mechanismus wird in der von mir gesichteten Literatur nicht diskutiert. Der Aufbau der Formel ähnelt dem der HLN-Theorie (Gl. 5.45), was folgenden verallgemeinerten Zusammenhang rechtfertigt:

$$\delta\sigma_{\parallel}^{\text{QI}}(B_{\parallel}) = \frac{e^2}{\pi h} \left[\ln \left(1 + \beta \frac{B_{\parallel}^2}{B_2 B_t} \right) - \frac{1}{2} \ln \left(1 + \beta \frac{B_{\parallel}^2}{B_3 B_t} \right) + \frac{1}{2} \ln \left(1 + \beta \frac{B_{\parallel}^2}{B_4 B_t} \right) \right]. \quad (6.2)$$

Die charakteristischen Felder B_2 , B_3 und B_4 sind wieder mit den Gleichungen 5.45a-5.45d gegeben. Unter Berücksichtigung des EY-Mechanismus gilt $B_2 = B_4$, wodurch sich Gleichung 5.58 reproduziert. Der DP-Mechanismus ließe sich dann wieder über Wahl von $B_{\text{so},z} = 0$ T und $2B_{\text{so},x} = 2B_{\text{so},y} = B_{\text{so}}$ in B_2 , B_3 und B_4 einführen. Die Unterschiede in den daraus resultierenden Verläufen zwischen den Gleichungen mit ausschließlicher Berücksichtigung des DP-Mechanismus einerseits und EY-Mechanismus andererseits sind wieder sehr gering, so dass ich aus Gründen der Konsistenz nur den DP-Mechanismus berücksichtige.

Der Parameter β ist für den Fall kleinerer mittlerer freier Weglängen im Verhältnis zur Schichtdicke ($l_{\text{mfp}} \ll t$) – was bei allen Untersuchungen zutrifft – mit $\beta = 1/3$ definiert. Die EEI sollte aufgrund der isotrop angenommenen Zeeman-Aufspaltung im senkrechten sowie parallelen Magnetfeld gleich beitragen und kann daher auf Grundlage vorheriger Analysen von den Daten abgezogen werden³. Auch sind die Werte für B_i und B_{so} bereits aus der Auswertung der Daten bekannt, die unter senkrecht einwirkenden Magnetfeldern aufgezeichnet wurden (somit sind alle Größen aus Gl. 6.2 zugänglich). Der erwartete Verlauf kann die gemessenen Daten allerdings nicht beschreiben. Daher werden Anpassungen mit B_i und B_{so} als freie Anpassungsparameter durchgeführt. Die Theorie ist prinzipiell auf Schichtdicken bzw. auf Magnetfelder begrenzt, bei welchen die magnetische Länge kleiner als die Schichtdicke ist. Dementsprechend dürften die Anpassungen nur bis zu den in Tabelle 6.4 angegebenen B_{mag} -Feldern durchgeführt werden. Um jedoch die Signatur der QI zu erfassen, wird der Anpassungsbereich über B_{mag} hinaus bis B_{lim} ausgeweitet (vgl. Tab. 6.4). Die Anpassungen zeigen vor allem bei dünneren Proben und bei größeren Magnetfeldern Abweichungen von den Daten (vgl. Abb. 6.20), was möglicherweise einerseits auf die Überschreitung von B_{mag} , andererseits auf die Positionierungsgenauigkeit der Proben

³ Zum Abzug des EEI-Beitrags vom MR wurde mit der Änderung der spezifischen Leitfähigkeit $\Delta\sigma$ gerechnet, um im nächsten Schritt die korrigierte Änderung der spezifischen Leitfähigkeit in den MR umzurechnen. Ein Umrechnen des EEI-Beitrags in den MR und folgendem Abzug von den Rohdaten erfolgt daher unter Zulassen eines (kleinen) Fehlers.

t (nm)	B_{mag} (T)	B_{lim} (T)	θ_{F} (°)	$B_{i,\perp}$ (T)	$B_{\text{so},\perp}$ (T)	$B_{i,\parallel}$ (T)	$B_{\text{so},\parallel}$ (T)
6,0	4,57	8,0	2,83	0,337	0,35	0,134	0,45
9,9	1,68	6,0	2,28	0,047	0,25	0,032	0,32
15,0	0,73	4,0	2,45	0,021	0,23	0,016	0,29

Tabelle 6.4: Vergleich relevanter Größen, die sich aus Analysen der in Abbildung 6.20 gezeigten Daten unter senkrecht und parallel zur Probenoberfläche einwirkendem Magnetfeld ergeben, bei 10 K. Das Feld B_{mag} beschreibt dasjenige Magnetfeld, auf welches die Theorie im Parallelfeld B_{\parallel} limitiert ist, B_{lim} dasjenige der Anpassungsgrenze. Um die Signaturen zu erfassen, musste $B_{\text{lim}} > B_{\text{mag}}$ gewählt werden. Der maximale Fehlwinkel θ_{F} der Ausrichtung des parallelen Magnetfelds gibt an, wie groß die Abweichung von der parallelen Ausrichtung maximal sein darf, um senkrechte Beiträge auf den MR vernachlässigen zu können (Gl. 5.60). Die Werte aus Analysen von $B_{\text{so},\parallel}$ sind in etwa 1,275-Mal so groß wie die aus $B_{\text{so},\perp}$, die Werte von B_i sind indes deutlich kleiner.

im parallelen Magnetfeld zurückzuführen ist. Mit Gleichung 5.60 ergibt sich eine Bedingung für den maximalen Fehlwinkel zwischen Magnetfeldrichtung und Filmebene von $\theta_{\text{F}} < 3^\circ$, womit dieser geringer als die durchschnittlich in den Experimenten erreichte Positionierungsgenauigkeit ist (vgl. Kap. A.5).

Aus den Anpassungen der unter parallel einwirkenden Magnetfeldern aufgezeichneten Messdaten ergeben sich Werte für das charakteristische Feld B_{so} , die in etwa dem 1,275-fachem der vorherigen Analysen entsprechen. Ein anisotroper Wert von B_{so} wird auch von anderen Arbeitsgruppen in vergleichbaren Materialsystemen beobachtet [193]. Die ermittelten inelastischen Streuzeiten unterscheiden sich um einen variierenden Vorfaktor voneinander und sind im Einfluss eines parallelen Magnetfelds B_{\parallel} deutlich kleiner.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass im parallelen Magnetfeld B_{\parallel} eindeutig WAL-Signaturen vorzufinden sind, die prinzipiell im Kontext des Aharonov-Bohm-Effekts verstanden werden können. Abweichungen resultieren einerseits aus einer zu starken Limitierung der Theorie auf kleine Magnetfelder und andererseits aus der Positionierungsgenauigkeit der Proben zum Magnetfeld. In Kapitel A.5 lege ich dar, dass dabei die elektrische Stromrichtung keinen Einfluss auf die Messungen nimmt.

6.1.6 BaPbO₃-Schichtdickenstudie auf MgO-Substraten

Die Verwendung von MgO-Substraten bewirkt nicht nur strukturelle Unterschiede in den gewachsenen Dünnschichtproben, sondern hat durch die unterschiedlichen symmetriebrechenden Eigenschaften der Grenzfläche BaPbO₃-MgO möglicherweise auch

einen anderen Einfluss auf die Spin-Bahn-Kopplung (über den Bychkov-Rashba-Effekt) sowie auf die Spin-Bahn-Streuung.

Senkrechtes Magnetfeld

Zur Auswertung der elektronischen Transporteigenschaften im senkrechten Magnetfeld B wird die oben eingeführte Fitroutine verwendet. Im Fall von BaPbO₃-Dünnschichten auf MgO-Substraten ergibt sich allerdings ein wesentlicher Unterschied zu der Untersuchung von BaPbO₃-Filmen auf SrTiO₃-Substraten: Bei nahezu allen untersuchten Proben resultiert aus dem Verlauf der QI-bereinigten temperaturabhängigen Änderungen der spezifischen Leitfähigkeit eine Abschirmkonstante ζ größer 1, womit diese jeweils außerhalb des von der Theorie vorgegebenen Bereichs liegt. Untersuchungen der temperaturabhängigen Änderung der spezifischen Leitfähigkeit unter angelegten Magnetfeldern bestätigen dieses Verhalten. Da sich in Gleichung 5.70 für den Fall $\zeta > 1$ ein Vorzeichenwechsel der magnetfeldabhängigen Änderung der spezifischen Leitfähigkeit $\Delta\sigma(B)$ ergibt und die Fitroutine damit kein physikalisch sinnvolles Ergebnis liefert, interpretiere ich dieses Ergebnis als Vorliegen vollkommen unabschirmter Elektronen und lege den Wert $\zeta = 1$ im $\Delta\sigma(B)$ -Verlauf fest. Dadurch entfallen bei der weiteren Auswertung der Messdaten alle EEI-Beiträge im $\Delta\sigma(B)$ -Verhalten, so dass die magnetfeldabhängige Änderung der spezifischen Leitfähigkeit in diesem Fall alleine durch den QI-Beitrag gegeben ist.

Die mit dieser Änderung durchgeführten Anpassungen beschreiben die Daten der Dünnschichtproben mit Schichtdicken bis 20 nm sehr gut, oberhalb weichen diese bei größeren Magnetfeldern von den Messwerten signifikant ab. Dies zeigt sich besonders gut an einer 54-nm-dicken Probe, wobei der Anpassungsbereich hier auf 3 T limitiert wurde, um den Verlauf des Maximums mit möglichst kleinen Abweichungen zu beschreiben (vgl. Abb. A.21). Obwohl bei dieser Dünnschichtprobe aufgrund der erwarteten thermischen Diffusionslänge l_{th} und der ermittelten Schichtdicke t oberhalb von etwa 0,43 K ein dreidimensionaler EEI-Beitrag zu erwarten ist (Gl. 5.75), zeigt diese Probe – sowie alle anderen – bis mindestens etwa 5 K eine $\ln(T)$ -Abhängigkeit der Änderung der spezifischen Leitfähigkeit (vgl. Abb. A.21). Dies deutet auf den zweidimensionalen Charakter der EEI im entsprechenden Temperaturbereich hin (in 3D wäre ein \sqrt{T} -Verhalten zu erwarten). Anpassungen mit Theorien der EEI in 3D können die Daten (selbst unter Freigabe der Diffusionskonstante als Anpassungsparameter) nicht genauer beschreiben (vgl. Abb. A.20).

Es gibt zwei mögliche Gründe für die Fehleinschätzung der Dimensionalität des EEI-Beitrags: Entweder ist die thermische Diffusionslänge größer als abgeschätzt, oder die elektrisch aktive Schichtdicke ist kleiner als die mittels XRR-Messungen ermittelte

t (nm)	T_{th} (K)	D_{th} (cm ² s ⁻¹)	D (cm ² s ⁻¹)
6,3	8,0	0,42	0,25
7,8	12,0	0,95	0,36
10,2	5,25	0,72	0,58
12,2	7,0	1,36	1,14
21,1	4,5	2,62	1,87
29,2	4,8	5,36	2,04
32,9	4,5	6,37	1,58
54,0	5,0	19,08	1,63

Tabelle 6.5: Ermittelte Werte für die Diffusionskonstante von BaPbO₃-Dünnschichtproben auf MgO-Substraten. Die Werte werden analog zu Tabelle 6.3 abgeschätzt, wobei sich hier oberhalb von etwa 20 nm deutliche Abweichungen zwischen den ermittelten Diffusionskonstanten ergeben. Die ansteigende Differenz zwischen D_{th} und D führt zur Annahme, dass die elektrisch aktive Schichtdicke t_{el} bei diesen Proben von der BaPbO₃-Schichtdicke t abweicht.

BaPbO₃-Schichtdicke. Im ersten Szenario steigen die Werte der Diffusionskonstante bei dicken Proben deutlich an (s. Tab. 6.5). Die Werte der Diffusionskonstante D_{th} werden hierfür wieder über das auf Seite 135 geschilderte Verfahren unter der Annahme, dass die gesamte BaPbO₃-Schichtdicke auch elektrisch aktiv ist, bestimmt. Allgemein sind diese Werte etwas größer als die klassisch bestimmten, oberhalb von etwa 20 nm bis 30 nm nimmt die Differenz zwischen den Werten nochmals signifikant zu. Im zweiten Szenario ist die elektrisch aktive Schichtdicke kleiner als die BaPbO₃-Schichtdicke, was möglicherweise eine Folge der Grenz- und Oberflächenrauigkeiten oder der Sauerstofffehlstellendichte ist. In diesem Fall wird der Wert von D_{th} über- und der von D unterschätzt ($D \propto t^{-2/3}$). Die Differenz der in Tabelle 6.5 angegebenen Werte erklärt sich in diesem Szenario durch systematisch zu groß angenommene elektrisch aktive Schichtdicken, wobei der zunehmende Unterschied der beiden Werte mit ansteigender Schichtdicke möglicherweise auf einen zunehmenden Anteil der BaPbO₃-Schichtdicke hindeutet, die nicht (wesentlich) zur elektrischen Leitfähigkeit beiträgt.

Das zweite Szenario wird dadurch bekräftigt, dass die $\Delta\sigma(B)$ -Daten durch Freigabe der elektrisch aktiven Schichtdicke t_{el} als Anpassungsparameter wesentlich besser beschrieben werden können (s. Abb. 6.21). Dabei ergibt sich am Beispiel der hier gezeigten 54-nm-dicken Dünnschichtprobe eine elektrisch aktive Schichtdicke von etwa 27 nm und damit eine Reduktion der effektiven Schichtdicke um 50 %. Die elektrisch aktive Schichtdicke fließt in die HLN-Theorie (Gl. 5.57) ein und verstärkt die Abhängigkeit der Änderung der spezifischen Leitfähigkeit dicker Proben von einem externen Ma-

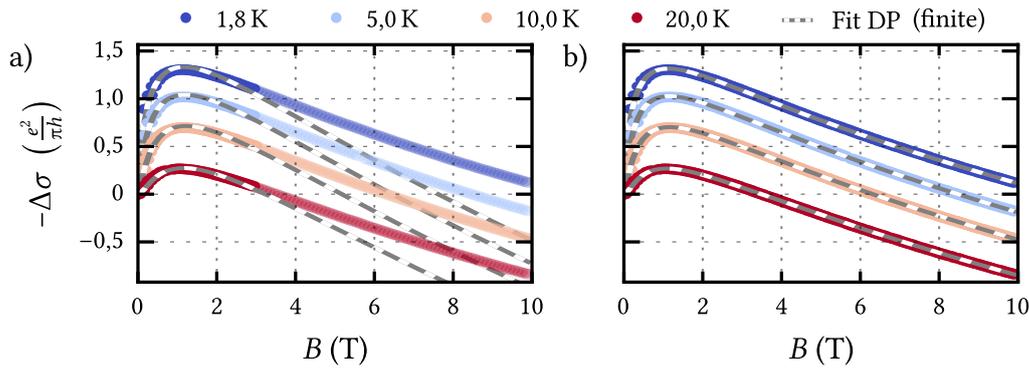


Abbildung 6.21: Anpassungen der magnetfeldabhängigen Änderungen der spezifischen Leitfähigkeit einer 54-nm-dicken BaPbO₃-Monolage, gewachsen auf MgO. Da an dieser Probe der ermittelte Wert der Abschirmkonstante ζ größer eins ist, sollten die Daten rein mit QI zu beschreiben sein. **a)** Ergebnis der Anpassung über die selbstkonsistente Fitroutine, wobei die mittels XRR ermittelte Schichtdicke in Gleichung 5.57 als Konstante einfließt. Die Anpassung wird auf 3 T begrenzt, da nur so das Maximum der Kurve sinnvoll beschrieben werden kann. Bei großen Magnetfeldern weichen die Extrapolationen der Anpassungen deutlich von den Messdaten ab. **b)** Ergebnis der Anpassung unter Freigabe der elektrisch aktiven Schichtdicke als zusätzlicher Anpassungsparameter. Die Daten können bis 10 T hervorragend beschrieben werden. Es ergibt sich im Mittel eine elektrisch aktive Schichtdicke, die mit $t_{\text{el}} \approx (26,7 \pm 1,0)$ nm etwa halb so dick wie die BaPbO₃-Schichtdicke ist.

gnetafeld (vgl. Abb. 5.7). Da sich der Einfluss finiter Schichtdicken insbesondere bei großen Magnetfeldern auswirkt (und kein EEI-Beitrag den Magnetotransport überlagert), habe ich den Anpassungsbereich bis 10 T erweitert. Die Daten lassen sich so über den gesamten Magnetfeldbereich allein mit QI hervorragend beschreiben.

Im weiteren Verlauf möchte ich die Ergebnisse diskutieren, die sich unter Freigabe der elektrisch aktiven Schichtdicke t_{el} als Anpassungsparameter ergeben. Die entsprechenden Ergebnisse der Anpassungen sind im Anhang in den Abbildungen A.12 bis A.19 dargestellt. Hierbei sei noch erwähnt, dass der Einfluss endlicher Schichtdicken auf den magnetfeldabhängigen Beitrag der QI unterhalb von etwa 10 nm bis 15 nm vernachlässigbar wird (vgl. Abb. 5.7), sodass in diesem Bereich die Freigabe der elektrisch aktiven Schichtdicke keinen wesentlichen Einfluss auf die Anpassungen hat. Dies bedeutet insbesondere, dass der angepasste Wert der elektrisch aktiven Schichtdicke bei sehr dünnen Proben kein stabiler Anpassungsparameter ist.

Die Werte der charakteristischen Magnetfelder B_i und B_{so} sowie die Abschirmkonstante ζ nehmen tendenziell mit zunehmender Schichtdicke ab (vgl. Abb. 6.22). Die aus der selbstkonsistenten Fitroutine bestimmten Werte der Abschirmkonstante ζ unterschätzen tendenziell leicht die Werte, die sich aus den temperaturabhängigen Änderungen der spezifischen Leitfähigkeit unter einwirkendem externen Magnetfeld ergeben (vgl. Tab. 6.6). Werte von $\zeta > 1$ werden auch bei Auswertungen von Daten an anderen Materialsystemen beobachtet und einerseits mit einer Mischung

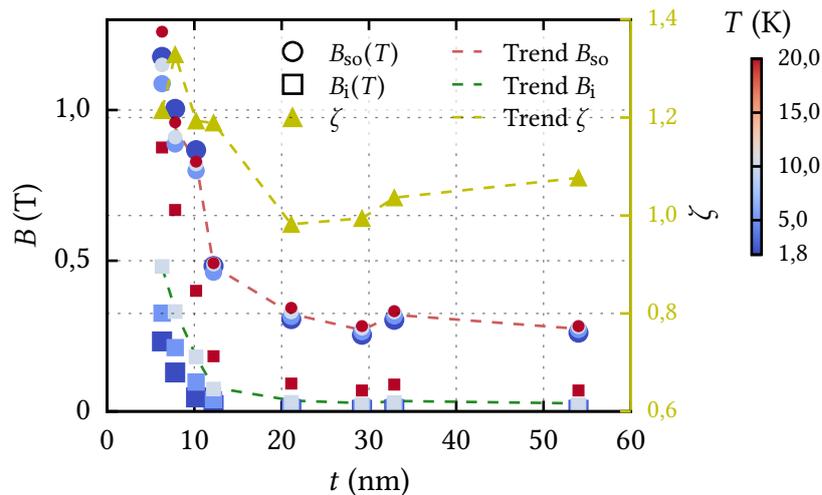


Abbildung 6.22: Schichtdickenabhängiger Trend relevanter Größen, die aus der selbstkonsistenten Fitroutine an BaPbO₃-Monolagen auf MgO-Substraten ermittelt werden können. Tendenziell nehmen die Werte von B_i , B_{so} und ζ mit zunehmender Schichtdicke ab. Gestrichelte Linien zeigen den Verlauf der jeweiligen Mittelwerte an. Bei jeder Schichtdicke werden die charakteristischen Magnetfelder bei unterschiedlichen (farblich kodierten) Temperaturen extrahiert.

t (nm)	t_{el} (nm)	α	β (mT/K $^\alpha$)	γ (mT)	B_{so} (T)	B_i (T)	ζ	$\zeta_{R(T,B)}$	T_i (K)
6,3	< 10	1,25	15,80	201,9	1,15	0,481	1,21		82
7,8	< 10	1,29	11,77	108,6	0,91	0,331	1,33	$1,38 \pm 0,04$	66
10,2	< 10	1,28	8,05	31,0	0,82	0,181	1,19		62
12,2	< 10	1,53	1,71	17,6	0,49	0,074	1,19	$1,23 \pm 0,02$	69
21,1	< 10	1,83	0,35	6,5	0,33	0,030	0,98	$1,07 \pm 0,01$	44
29,2	13,6	1,88	0,23	5,0	0,28	0,022	1,00	$1,08 \pm 0,01$	35
32,9	16,9	1,82	0,35	6,2	0,33	0,029	1,04	$1,11 \pm 0,10$	27
54,0	27,4	1,93	0,20	5,1	0,28	0,022	1,07	$1,15 \pm 0,10$	18

Tabelle 6.6: Übersicht relevanter Größen, die sich aus der Auswertung des elektrischen Transports von BaPbO₃-Monolagen auf MgO-Substraten ergeben. Die elektrisch aktive Schichtdicke t_{el} wurde als Anpassungsparameter freigegeben, wobei deren Einfluss auf den Verlauf mit abnehmender Schichtdicke an Bedeutung verliert und daher unterhalb von 10 nm nicht angegeben wird. Die Temperatur T_i beschreibt wieder jene Temperatur, oberhalb derer die QI in ein dreidimensionales Regime übergeht, wobei hier die Thouless-Länge mit der Schichtdicke und nicht der elektrisch aktiven Schichtdicke gleichgesetzt wurde. Ist diese kleiner als die Schichtdicke, so nimmt T_i zu. Im Vergleich zum Wert der Abschirmkonstante $\zeta_{R(T,B)}$ ist der über die selbstkonsistente Fitroutine bestimmte Wert systematisch etwas geringer. Die Werte von B_i und B_{so} sind bei 10 K angegeben.

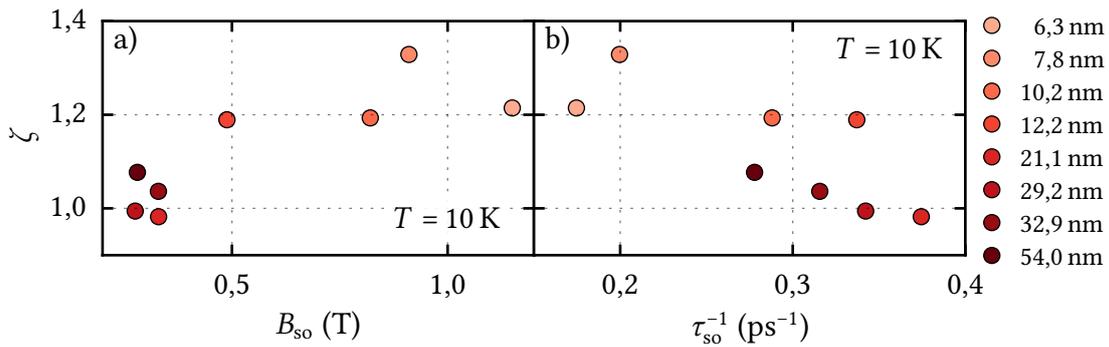


Abbildung 6.23: Relation zwischen Abschirmkonstante ζ und Spin-Bahn-Streuung bei 10 K. a) Bei der Auftragung gegen das charakteristische Feld B_{so} zeigt sich tendenziell eine direkte Proportionalität der beiden Größen. Dies entspricht dem Verlauf unter der Maßgabe, dass der Wert der Diffusionskonstante bei allen Schichtdicken konstant ist. b) Über die klassisch bestimmte Diffusionskonstante lässt sich τ_{so} berechnen (Gl. 5.27), wobei vor allem bei dickeren Proben die Werte der Diffusionskonstante weniger aussagekräftig sind (vgl. Tab. 6.5). Möglicherweise zeigt sich deswegen nicht die aus [303, 304] erwartete direkte Proportionalität zwischen ζ und τ_{so}^{-1} .

aus Oberflächen- und Bulk-Zuständen [302], andererseits mit einer starken Spin-Bahn-Streurate τ_{so}^{-1} [303, 304] in Kombination mit topologischen Eigenschaften [305] diskutiert. Bei Dotierungsversuchen unterschiedlicher Materialsysteme mit Gold kann eine Erhöhung der Spin-Bahn-Streurate τ_{so}^{-1} und damit einhergehend eine Zunahme von ζ beobachtet werden [303, 304]. Eine Korrelation mit dem charakteristischen Feld B_{so} zeigt sich auch ansatzweise bei den hier extrahierten Daten (vgl. Abb. 6.23 a)). Zur Berechnung der Spin-Bahn-Streurate werden die Werte der Diffusionskonstante benötigt, die vor allem bei dickeren Proben mit einer erhöhten Unsicherheit behaftet sind. Bei der Auftragung von τ_{so}^{-1} gegen ζ (vgl. Abb. 6.23 b)) zeichnet sich eine indirekte Proportionalität ab, wobei der Verlauf maßgeblich von den Werten der dickeren Proben geprägt wird und daher eine geringere Aussagekraft besitzt.

Das Verhältnis zwischen der Transportstreuzeit τ_{tr} und der Spin-Relaxationszeit τ_{so} ist ebenso von den ermittelten Werten der Diffusionskonstante abhängig. Nimmt man die klassisch bestimmten Werte für die Diffusionskonstante an, zeigt sich ein ähnliches Bild wie bei Proben auf SrTiO_3 -Substraten: schichtdickenabhängig stellt sich tendenziell eine indirekte Proportionalität ein, wohingegen sich temperaturabhängig mit wachsender Schichtdicke eine direkte Proportionalität zeigt (vgl. Abb. 6.24). Letztgenannte Proportionalität sollte wieder von der Diffusionskonstante weitgehend unabhängig sein, da diese gegenüber der Temperatur vergleichsweise konstant ist und damit im Wesentlichen den Verlauf von B_{so} widerspiegelt. Der schichtdickenabhängige Trend wird dagegen aufgrund der unterschiedlichen Werte für die Diffusionskonstante stark von diesen geprägt.

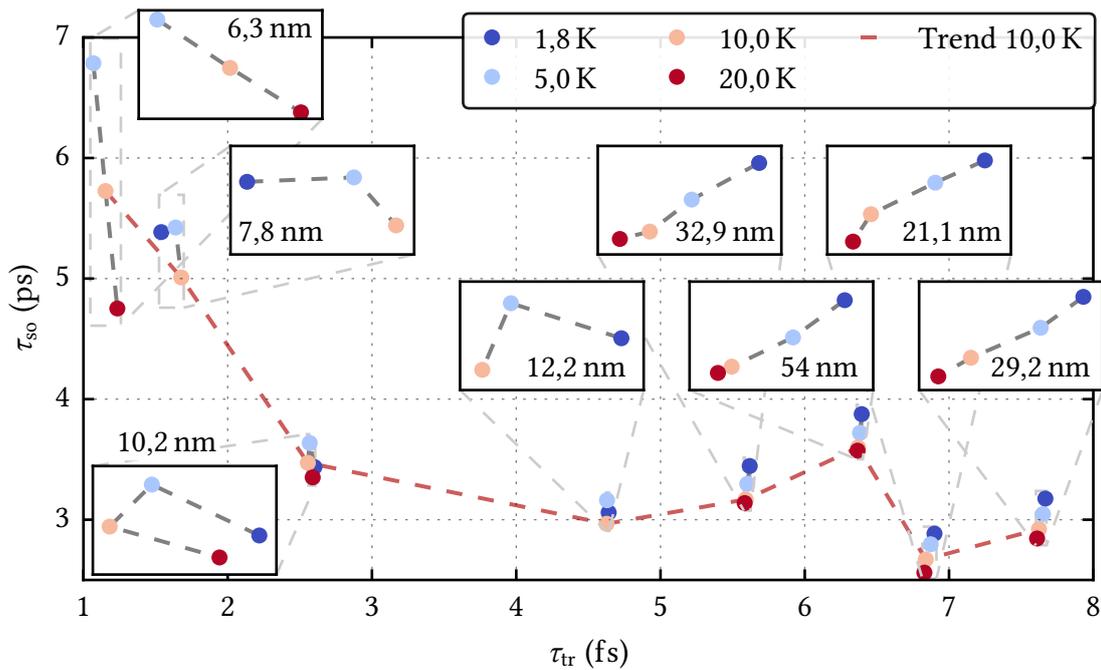


Abbildung 6.24: Zusammenhang zwischen der über die Drude-Theorie bestimmten Transportstreuzeit τ_{tr} und der aus der selbstkonsistenten Fitroutine bestimmten Spin-Bahn-Streuzeit τ_{so} von BaPbO₃-Monolagen auf MgO-Substraten. In Abhängigkeit der Schichtdicke zeigt sich tendenziell eine indirekte Proportionalität der beiden Größen, äquivalent zum DP-Mechanismus. Zur Bestimmung fließen die klassisch ermittelten Werte der Diffusionskonstante D ein, welche vor allem bei dickeren Proben eine größere Ungenauigkeit aufweisen können (vgl. Tab. 6.5). In Abhängigkeit der Temperatur sind die Werte der Diffusionskonstante weitgehend konstant, daher sollten die sich abzeichnenden Trends intrinsischer Natur sein. Bei dicken Proben zeigt sich eine direkte Proportionalität der aufgetragenen Größen, äquivalent zum EY-Mechanismus, wobei deren Extrapolationen nicht durch den Koordinatenursprung verläuft. Die dünnste Schicht zeigt dagegen eher eine indirekte Proportionalität zwischen τ_{tr} und τ_{so} , im dazwischenliegenden Bereich ist kein kontinuierlicher Trend erkennbar.

Äquivalent zu den Ergebnissen der Auswertung der BaPbO₃-Dünnschichtproben auf SrTiO₃-Substraten zeigt sich mit zunehmender Filmschichtdicke ein zunehmender Einfluss von Elektron-Phonon-Wechselwirkung im System. Ebenso nimmt der Sättigungsanteil γ des charakteristischen Magnetfelds B_i ab.

Paralleles Magnetfeld

Unter parallel zur Filmoberfläche orientierten Magnetfeldern lassen sich die Datenreihen bis zu einer Schichtdicke von 20 nm im gesamten aufgezeichneten Magnetfeldbereich bis 10 T gut anpassen. Bei dickeren Proben gelingt die Beschreibung der Daten nur bis zu einem Magnetfeld von etwa 2 T bis 3 T (vgl. Abb. 6.25). Da vorherige Analysen bei allen Proben $\zeta \geq 1$ ergaben, wurden die Daten hier ausschließlich mit QI beschrie-

6 Experimentelle Untersuchungen

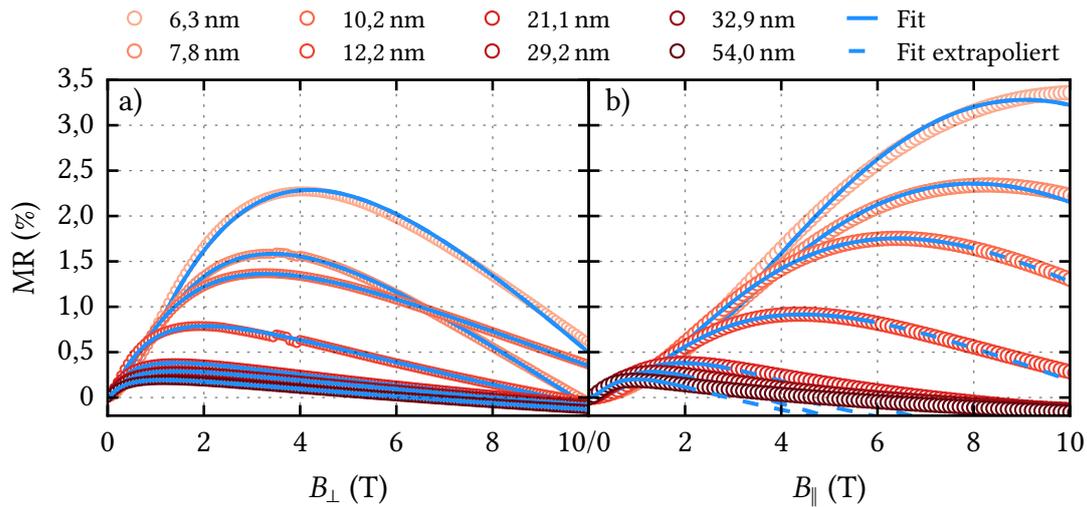


Abbildung 6.25: Magnetfeldabhängiger Magnetotransport verschieden dicker BaPbO_3 -Monolagen auf MgO -Substraten bei 10 K. **a)** Unter senkrecht einwirkendem Magnetfeld B_{\perp} können die Daten über den gesamten Magnetfeldbereich mit Gleichung 5.57 ($B_e \gg B$, mit t_{el} als Anpassungsparameter) beschrieben werden. **b)** Im parallelen Magnetfeld können vor allem die 10,2- und 12,2-nm-dicken Proben gut mit Gleichung 6.2 beschrieben werden. Bei dickeren Proben werden die Anpassungen aufgrund des abnehmenden Verhältnisses zwischen magnetischer Länge l_{mag} und (elektrisch aktiver) Schichtdicke t auf kleinere Magnetfelder limitiert. Dazugehörige Werte sind aus Tabelle 6.7 zu entnehmen.

ben (Gl. 6.2). Um die Signatur der WAL zu erfassen, muss der Anpassungsbereich (B_{lim}) dasjenige Magnetfeld, dass die Theorie durch die magnetische Länge limitiert (B_{mag}), um ein Vielfaches überschreiten (vgl. Tab. 6.7). Auch wird wieder bei den Anpassungen die elektrisch aktive Schichtdicke t_{el} als Anpassungsparameter freigegeben. Während bei Schichtdicken unterhalb von $t = 20$ nm der angepasste Wert der elektrisch aktiven Schichtdicke $t_{el,||}$ meist in etwa dem der BaPbO_3 -Schichtdicke t entspricht, weichen die Werte bei dickeren Proben zum Teil voneinander ab (vgl. Tab. 6.7).

Die geringe Anpassungsgüte bei größeren Magnetfeldern und dickeren Schichten ist unter anderem damit zu begründen, dass die Theorie diesen Magnetfeldbereich nicht erfasst und dreidimensionales Verhalten zu erwarten wäre. Dennoch lassen sich vor allem die 10,2- und die 12,2-nm-dicken Proben selbst bis 10 T äußerst gut beschreiben. Insgesamt ergeben sich aus Analysen des elektrischen Transports unter parallelem Magnetfeld tendenziell wieder kleinere Werte für das inelastische Feld B_i , für das charakteristische Magnetfeld der Spin-Bahn-Streuung B_{so} zeichnet sich dagegen kein eindeutiger Trend ab (vgl. Tab. 6.7). Die notwendige Orientierungsgenauigkeit θ_F der Proben im parallelen Magnetfeld wird vermutlich in den Experimenten bei einigen Proben nicht erfüllt (vgl. Kap. A.6), wodurch endliche Beiträge eines senkrechten Feldes in die Messdaten einfließen, die wiederum einen weiteren Grund für die Abweichungen der Anpassungen darstellen.

t (nm)	B_{mag} (T)	B_{lim} (T)	θ_{F} (°)	$t_{\text{el},\perp}$ (nm)	$B_{i,\perp}$ (T)	$B_{\text{so},\perp}$ (T)	$t_{\text{el},\parallel}$ (nm)	$B_{i,\parallel}$ (T)	$B_{\text{so},\parallel}$ (T)
6,3	4,15	10,0	3,51°	< 10	0,481	1,15	6,3	0,186	0,97
7,8	2,70	10,0	3,98°	<10	0,331	0,91	7,4	0,156	0,97
10,2	1,58	8,0	4,38°	<10	0,181	0,82	10,2	0,111	1,05
12,2	1,11	6,0	3,67°	<10	0,074	0,49	12,2	0,054	0,69
21,1	0,37	3,0	3,61°	<10	0,030	0,33	18,9	0,018	0,30
29,2	0,89	3,0	1,51°	13,6	0,022	0,28	17,0	0,022	0,01
32,9	0,58	2,0	3,37°	16,9	0,029	0,33	32,3	0,024	0,41
54,0	0,22	2,0	4,70°	27,4	0,022	0,28	41,3	0,018	0,38

Tabelle 6.7: Vergleich relevanter Größen, die sich aus der in Abbildung 6.7 gezeigten Auswertung der Magnetotransportdaten unter senkrecht sowie parallel zur Filmoberfläche einwirkendem Magnetfeld ergeben. Alle angegebenen Werte sind bei 10 K bestimmt. Die Theorie zur Beschreibung der QI unter parallel einwirkendem Magnetfeld ist auf Magnetfelder begrenzt, bei welchen die magnetische Länge l_{mag} größer als die Schichtdicke t ist. Diese Bedingung ist nur unterhalb der angegebenen Werte für B_{mag} erfüllt. Um die Signaturen zu erfassen, wurden die Daten über B_{mag} hinaus bis B_{lim} angepasst. Der maximal erlaubte Fehlwinkel zwischen Filmebene und Magnetfeldrichtung sollte θ_{F} (Gl. 5.60) nicht überschreiten. Bei der Beschreibung der B_{\parallel} -Daten fließt ebenfalls als freier Parameter der Wert der elektrisch aktiven Schichtdicke $t_{\text{el},\parallel}$ ein, der sowohl von der Schichtdicke t als auch von dem bestimmten Wert der elektrisch aktiven Schichtdicke aus dem senkrecht einwirkendem Magnetfeld ($t_{\text{el},\perp}$) abweichen kann. Die extrahierten Werte von B_i sind für den Fall B_{\parallel} tendenziell kleiner als für B_{\perp} , die Werte von B_{so} folgen keinem eindeutigen Trend.

Die 10,2-nm-dicke Dünnschichtprobe zeigt eine äußerst hohe Anpassungsgüte sowohl im senkrechten, als auch im parallelen Magnetfeld bis zu Magnetfeldern von 10 T (vgl. Abb. 6.25). Der Einfluss eines externen Magnetfelds, das weder senkrecht noch parallel zur Filmoberfläche ausgerichtet ist, ist komplex. Die Magnetotransportdaten im dazwischenliegenden Winkelbereich können nicht durch den naiven Ansatz von Sinus- und Cosinus-Projektionen der entsprechenden senkrechten bzw. parallelen Anteile beschrieben werden (vgl. Abb. 6.26). Dies zeigt sich auch bei anderen Arbeitsgruppen [307]. Während bei der hier gezeigten Probe das Maximum mit Rotation der Probe von senkrechter zu paralleler Orientierung zu größeren Magnetfeldern verschoben wird und einen größeren Hub aufzeigt, nimmt dieses Verhalten mit zunehmender Schichtdicke ab und kehrt sich sogar ansatzweise um (vgl. Abb. 6.27).

Bei konstanten Magnetfeldern oberhalb des jeweiligen Maximums führt eine Rotation der Probe im Magnetfeld in Abhängigkeit der Schichtdicke zu konträren Verläufen (Abb. 6.27 a)). Dabei sind die Spitzen in den Messkurven in paralleler Feldorientierung ($\theta = 90^\circ$ bzw. 270°) bei dünneren Proben deutlich schärfer, was auf die zweidimen-

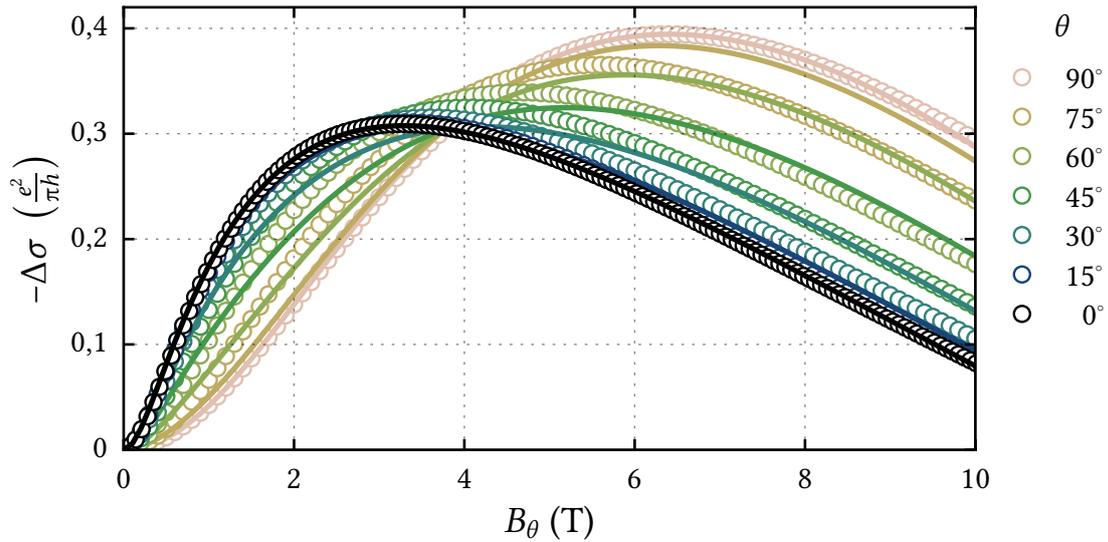


Abbildung 6.26: Änderung der spezifischen Leitfähigkeit in Abhängigkeit unterschiedlicher Einstellwinkel θ zwischen der Oberflächennormalen des Films und einem externen Magnetfeld B_θ , bei 10 K. Die Daten der hier gezeigten 10,2-nm-dicke Probe lassen sich sowohl unter senkrecht ($\theta = 0^\circ$) als auch unter parallel einwirkendem Magnetfeld ($\theta = 90^\circ$) über den gesamten Magnetfeldbereich ausschließlich mit Theorien der QI (durchgezogene Linien, mit Gl. 5.57 bzw. Gl. 6.2) anpassen. Verschiedene Versuche, die Daten im dazwischenliegenden Winkelbereich unter der Annahme zu beschreiben, dass nur Cosinus- oder Sinusprojektionen des angelegten Magnetfelds Einfluss auf die elektronischen Transporteigenschaften nehmen, sind nicht gelungen. Die der gezeigten Anpassung zugrundeliegende Gleichung lautet in Anlehnung an den anisotropen magnetoresistiven Effekt [306]: $\Delta\sigma(\theta) = \Delta\sigma_\perp + (\Delta\sigma_\parallel - \Delta\sigma_\perp) \cdot \sin^2(\theta)$.

sionale Natur der Proben zurückzuführen ist. Erstaunlicherweise wird bei dickeren Proben allerdings die Spitze in senkrechter Feldorientierung ($\theta = 0^\circ$ bzw. 180°) schärfer. Eigentlich wäre mit zunehmender Schichtdicke ein Übergang in dreidimensionales Verhalten zu erwarten, wodurch der Magnetotransport zunehmend isotrop werden sollte. Möglicherweise deutet das unerwartete Verhalten in dickeren Proben auf eine Anisotropie im Kristallgitter hin, die sich mit zunehmender Schichtdicke ausbildet. Ein mögliches Szenario ist, dass oberhalb einer gewissen Schichtdicke ein Übergang von relaxiertem zu verspanntem Gitter stattfindet, oder aufgrund von unterschiedlichen Sauerstoffbeladungen an der Film-zu-Substrat- und Film-zu-Vakuum-Grenzfläche effektiv zwei Transportkanäle vorliegen.

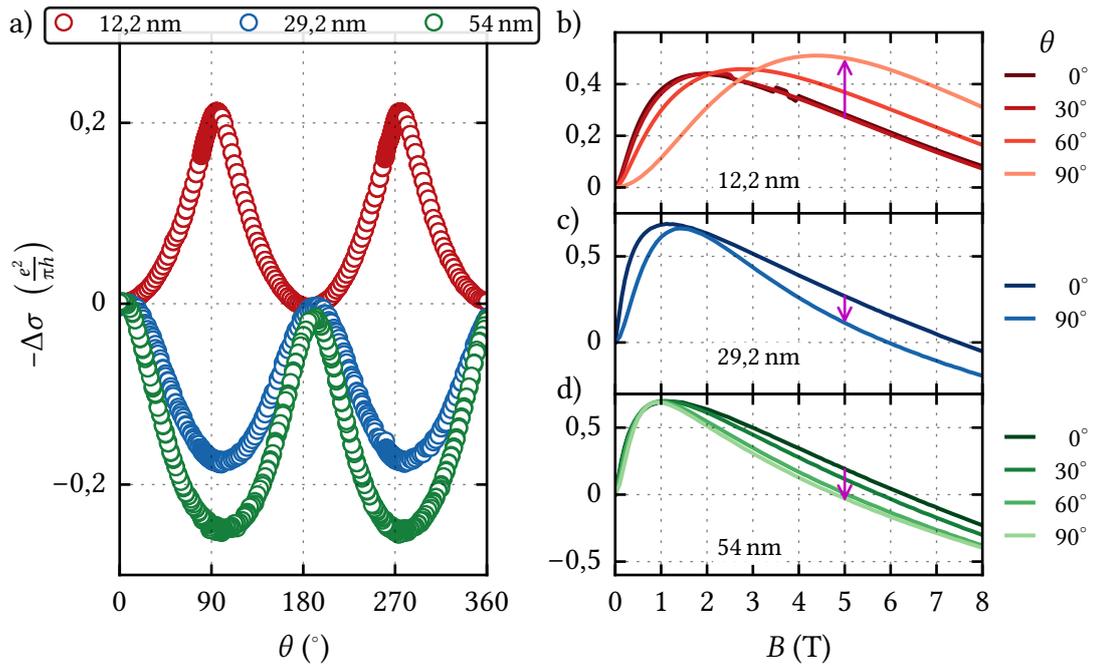


Abbildung 6.27: Anisotroper magnetoresistiver Effekt unterschiedlich dicker BaPbO₃-Monolagen auf MgO-Substraten, bei 10 K. a) Änderung der spezifischen Leitfähigkeit ($\Delta\sigma(\theta) = R_s(\theta)^{-1} - R_s(0^\circ)^{-1}$) bei einer vollständigen Rotation der Dünnschichtproben in einem konstanten Magnetfeld von $|B| = 5$ T bzw. 10 T um 360° (2π). Es zeigen sich Minima bzw. Maxima jeweils bei Vielfachen von 90° , was jeweils der senkrechten bzw. parallelen Orientierung der Probe im Magnetfeld entspricht. Die 12,2-nm-dicke Probe zeigt im Vergleich zu den beiden dickeren Proben Extrema mit kleineren Halbwertsbreiten im Parallelfeld, wobei bei der 54-nm-dicken Probe die Extrema im senkrechten Magnetfeld kleinere Halbwertsbreiten aufweisen. In Abhängigkeit der Schichtdicke kehrt sich der Verlauf der Änderung der spezifischen Leitfähigkeit um. Dies ist in b)-d) durch die Pfeilrichtungen angedeutet. Hier sind die magnetfeldabhängigen Änderungen der spezifischen Leitfähigkeit bei verschiedenen Ausrichtungen des Magnetfelds dargestellt. Je dünner die Probe, desto weiter ist das Maximum zu höheren Magnetfeldern verschoben. Bei der 54-nm-dicken Probe liegt das Maximum im Parallelfeld bei einer niedrigeren Magnetfeldstärke als im Senkrechtfeld.

6.2 BaPbO₃-BaBiO₃-Bilagen

Im Folgenden sollen die Erkenntnisse aus den Auswertungen der BaPbO₃-Monolagen auf – zum Teil supraleitende – BaPbO₃-BaBiO₃-Bilagen angewendet werden. Diese wurden in einer vorausgegangenen Doktorarbeit ausgiebig untersucht [D1]. Besonders hervorzuheben sind dabei BaPbO₃-BaBiO₃-Bilagen auf chemisch-mechanisch gereinigten SrTiO₃-Substraten, auf welche mittels PLD unter Verwendung von jeweils 100 Laserpulsen (LP) BaBiO₃- und mittels 60 LP BaPbO₃-Schichten gewachsen werden. Die jeweiligen Schichtdicken betragen dabei unter gleichen PLD-Bedingungen etwa 50 nm im Fall der BaBiO₃-Schicht und 18 nm im Fall der BaPbO₃-Schicht. Diese BaPbO₃-BaBiO₃-Bilagen zeigen zweidimensionale, supraleitende Eigenschaften. In den Abbildungen 2.7 und 2.8 sind Messdaten einer BaPbO₃-BaBiO₃-Bilage mit $T_{c,WP} = 4$ K

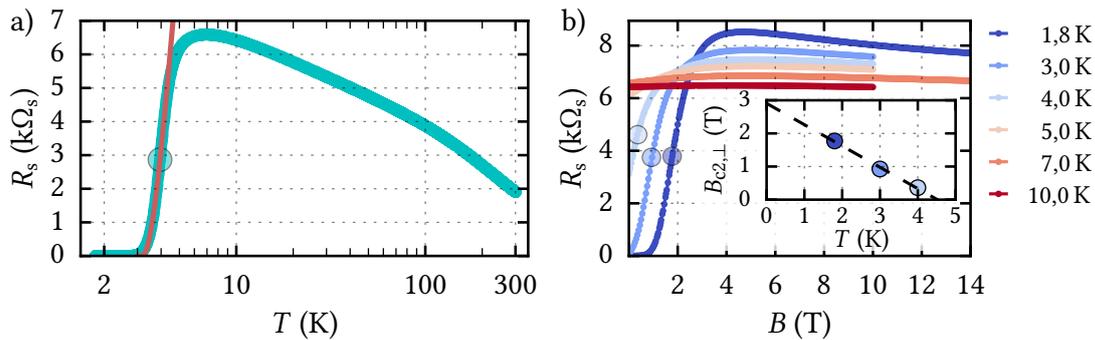


Abbildung 6.28: Elektrisches Transportverhalten einer BaPbO₃-BaBiO₃-Bilage aus 60 LP BaPbO₃ auf 100 LP BaBiO₃ auf einem SrTiO₃-Substrat. **a)** In Abhängigkeit der Temperatur zeigt der elektrische Schichtwiderstand R_s einen Anstieg, gefolgt von einem supraleitenden Übergang. Die markierte Stelle zeigt den Wendepunkt bei einer kritischen Temperatur von $T_{c,WP} = 3,95$ K. Aus der Anpassung mit Gleichung 5.81 (rote Kurve) ergibt sich eine BKT-Temperatur von $T_{BKT} = 3,05$ K. **b)** Der Magnetotransport wird bei Temperaturen nahe und unterhalb von $T_{c,WP}$ von Quasiteilchenanregungen dominiert. Die über die Wendepunkte bestimmten eingekreisten kritischen Magnetfelder $B_{c2,\perp}$ zeigen die erwartete lineare Abhängigkeit von der Temperatur (innenliegende Abbildung, mit $B_{c2,\perp}(T) \propto (1 - T/T_{c,WP})$). Durch Extrapolation des Verlaufs folgt $B_{c2,\perp}(T = 0 \text{ K}) = 2,9$ T, so dass die Ginzburg-Landau-Kohärenzlänge mit Gleichung 5.78 zu $\xi_{GL}(T = 0 \text{ K}) = 10,6$ nm abgeschätzt werden kann. Aus der Geradensteigung des angepassten $B_{c2}(T)$ -Verlaufs kann zudem der Wert der Diffusionskonstante über Gleichung 5.82 zu $D = 1,70 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$ bestimmt werden.

(am Wendepunkt, WP, der $R(T)$ -Kurve ermittelt) zu sehen. Zudem sind Signaturen eines BKT-Phasenübergangs bei etwa 3,2 K vorzufinden [12, D1]. Die supraleitende Schichtdicke t_{SL} kann aus der Winkelabhängigkeit des oberen kritischen Magnetfelds $B_{c2,\perp,WP}(\theta)$ mit Gleichung 5.80 zu $t_{SL} = 11,8$ nm abgeschätzt werden (vgl. Abb. 2.8 a)), womit diese deutlich kleiner als die BaPbO₃-Schichtdicke ($t = 18$ nm) ist und nahezu der Ginzburg-Landau-Kohärenzlänge entspricht ($\xi_{GL}(0 \text{ K}) = 11$ nm). Des Weiteren zeigt sich ein interessantes Zusammenspiel aus Spin-Bahn-Kopplung, EEI, sowie SLF, welches bisher nur an unstrukturierten BaPbO₃-BaBiO₃-Bilagen untersucht und unzureichend geklärt werden konnte [D1, D2] und daher zu weiteren Untersuchungen motiviert.

6.2.1 Elektronische Transporteigenschaften supraleitender Bilagen

Der temperaturabhängige elektrische Schichtwiderstand einer strukturierten BaPbO₃-BaBiO₃-Bilage aus 60 LP BaPbO₃ auf 100 LP BaBiO₃ auf einem chemisch-mechanisch gereinigtem SrTiO₃-Substrat zeigt ausgehend von hohen zu tiefen Temperaturen einen halbleiterähnlichen Anstieg, wobei bei etwa 150 K eine Änderung der Steigung zu beobachten ist (vgl. Abb. 6.28 a)). Bei etwa 7 K wird ein Maximum im Schichtwider-

stand durchlaufen, ehe der supraleitende Phasenübergang stattfindet. Anders als bei dreidimensionalen Supraleitern ist der Übergang aufgrund von SLF bei Systemen mit reduzierter Dimension (und hohen elektrischen Widerständen) abgerundet [270, 275, 308]. Die kritische Temperatur liegt bei etwa $T_{c,WP} = 3,95$ K. Aus Anpassungen mit Gleichung 5.81 kann die Temperatur des BKT-Phasenübergangs zu $T_{BKT} = 3,05$ K abgeschätzt werden (vgl. Abb. 6.28).

Der Magnetotransport bei Temperaturen nahe und unterhalb der kritischen Temperatur $T \lesssim T_{c,WP}$ ist nun von Quasiteilchenanregungen geprägt (vgl. Abb. 6.28 b)). Die über den Wendepunkt bestimmten kritischen Magnetfelder $B_{c2,\perp}$ zeigen die erwartete lineare Abhängigkeit $B_{c2}(T) \propto (1 - T/T_{c,WP})$ von der Temperatur (innenliegende Abbildung). Der Schnittpunkt mit der Ordinate entspricht dem kritischen Magnetfeld bei 0 K: $B_{c2,\perp}(T = 0 \text{ K}) = 2,9$ T. Mit Gleichung 5.78 kann somit die Ginzburg-Landau-Kohärenzlänge zu $\xi_{GL}(T = 0 \text{ K}) = 10,6$ nm abgeschätzt werden.

Über Gleichung 5.82 kann mit der Steigung $s = dB_{c2}/dT = -0,634 \text{ T K}^{-1}$ der Wert der Diffusionskonstante zu $D = 1,70 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$ bestimmt werden. Damit liegt diese in einer zu erwartenden Größenordnung (vgl. Tab. 6.5). Aus dem Schnittpunkt der Geraden mit der Abszisse lässt sich ebenfalls die kritische Temperatur ableiten. Der über diese Methode bestimmte Wert weicht mit $T_c(B = 0 \text{ T}) = 4,52$ K leicht von dem über den Wendepunkt im temperaturabhängigen Schichtwiderstand bestimmten Wert von $T_{c,WP} = 3,95$ K ab. Ein Grund für diese leichte Diskrepanz könnte darin liegen, dass ich den Wert $B_{c2,\perp}(4 \text{ K})$ zur Bestimmung der Geradensteigung mit in die Anpassung aufgenommen habe, obwohl bei dieser Temperatur die supraleitende Phase nicht mehr vollständig ausgebildet ist. Insofern könnten bereits weitere Quanteneffekte signifikant beitragen und den Verlauf beeinflussen. Ersetzt man diesen Datenpunkt in der Anpassung mit $T_{c,WP}(B = 0 \text{ T}) = 3,95$ K, ergeben sich mit $B_{c2,\perp}(T = 0 \text{ K}) = 3,29$ T, $\xi_{GL}(T = 0 \text{ K}) = 10,0$ nm und $D = 1,34 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$ leicht abweichende Werte. Vernachlässigt man den letzten Datenpunkt, so ergeben sich Werte von $B_{c2,\perp}(T = 0 \text{ K}) = 3,04$ T, $T_c = 4,28$ T, $\xi_{GL}(T = 0 \text{ K}) = 10,40$ nm und $D = 1,55 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$, die wiederum näher an den zuerst berechneten Werten liegen. Dementsprechend werde ich im Folgenden die ursprünglich benannten Werte verwenden.

Insgesamt sind die Werte der kritischen oberen Magnetfelder B_{c2} , der Ginzburg-Landau-Kohärenzlänge ξ_{GL} , die Temperatur des supraleitenden- sowie des BKT-Phasenübergangs als auch die elektrischen Absolutwiderstände⁴ und damit meine BaPbO₃-BaBiO₃-Bilagen vergleichbar zu denen aus [D1]. Aufgrund der schweren Elemente

⁴ Da in [D1] unstrukturierte Dünnschichtproben diskutiert werden, muss zum Vergleich der elektrischen Widerstände mit denen meiner strukturierten Proben ein Geometriefaktor f_{geo} angenommen, der über $R_s = f_{geo}R$ definiert ist. Mit $f_{geo} = 5,2$, der laut [D2] sinnvoll erscheint, gehen die Absolutwerte der Schichtwiderstände ineinander über.

Bi und Pb ist die Laserablation bei diesem Materialsystem schwierig und führt bei den Bilagen auch zu nicht-supraleitenden Proben. Daher ist die Optimierung des PLD-Prozesses wichtig. Weitere Optimierungsversuche der Bilage werde ich weiter unten diskutieren. Im Folgenden werden dementsprechend analoge Werte für die BaPbO₃-Schichtdicke von $t \approx 18$ nm und die supraleitende Schichtdicke von $t_{\text{SL}} \approx 11,8$ nm angenommen.

Quantenkorrekturen oberhalb der kritischen Temperatur

Neben Quanteneffekten der EEI sowie QI, können nun an den supraleitenden Bilagen zusätzlich SLF-Effekte auftreten. Zur kohärenten Beschreibung der Quantenkorrekturen oberhalb der kritischen Temperatur möchte ich zunächst die Dimensionalität sowie gültigen Regime der jeweiligen Effekte klären.

Mithilfe des ermittelten Wertes $D = 1,70 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$ für die Diffusionskonstante D kann der 2D-3D-Übergang der EEI auf Grundlage der thermischen Diffusionslänge (Gl. 5.75) bei einer Temperatur von etwa 4,0 K abgeschätzt werden, wobei als dimensionale Einschränkung die Dicke $t = 18$ nm der elektrisch aktiven BaPbO₃-Schicht gewählt wurde. Damit ist der Beitrag der EEI im relevanten Temperaturbereich ($T > T_c$) dreidimensional zu betrachten (s. Abb. 6.29).

Beim Auftreten von SLF ist die relevante Größe zur Abschätzung der Dimensionalität die Ginzburg-Landau-Kohärenzlänge ξ_{GL} . In der Nähe von T_c divergiert diese (s. Gl. 5.76). Nahe an der kritischen Temperatur sind die Systeme damit mindestens mit einer zweidimensionalen, wenn nicht sogar mit einer fraktal-dimensionalen Theorie zu beschreiben [270]. Bei etwa $T = 5,6$ K entspricht die Kohärenzlänge ξ_{GL} in etwa der Schichtdicke t der BaPbO₃-Deckschicht, bei $T = 8,9$ K der supraleitenden Schichtdicke t_{SL} . Vermutlich ist Letztgenanntes für den 2D-3D-Übergang im Fall der SLF entscheidend.

Zuletzt muss die dephasierende Länge l_ϕ (bzw. die Thoulesslänge l_t) zur Bestimmung der Dimension der QI-Beiträge betrachtet werden. Neben den bereits bekannten inelastischen Streuprozessen der EEI und Elektron-Phonon-Wechselwirkung, deren Temperaturabhängigkeit in den BaPbO₃-Monolagen über einen algebraischen Ausdruck beschrieben werden kann (Gl 5.63), können SLF nahe der kritischen Temperatur zu einem weiteren Beitrag führen [309, 310]. Dieser ergibt sich aus einem kontinuierlichen Übergang der Elektronen zu Cooperpaaranregungen und deren Wechselwirkung mit anderen Elektronen [309, 310]. Die daraus resultierende Streurrate kann mit

$$\tau_{\text{el-fl}}^{-1} = \frac{k_B T}{2\hbar} \left(\frac{R_s e^2}{\pi\hbar} \right) \frac{2 \ln(2)}{\ln\left(\frac{T}{T_c}\right) + C}, \quad (6.3)$$

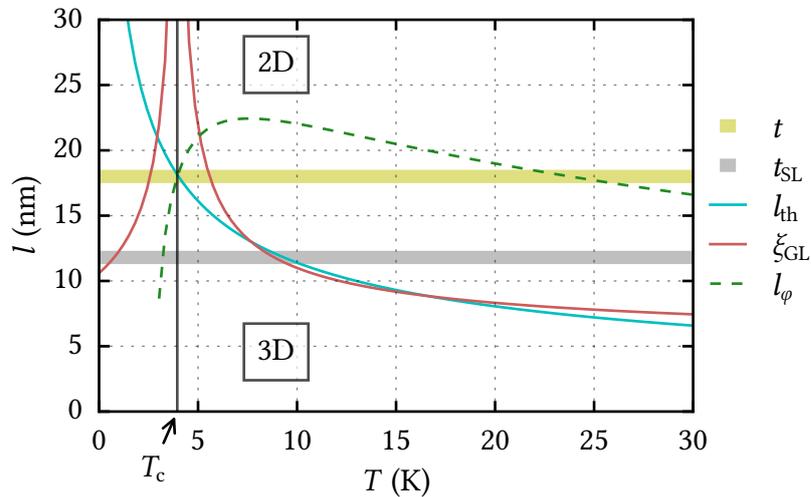


Abbildung 6.29: Temperaturabhängigkeit charakteristischer Längen der Quanteneffekte. Zur Abschätzung der Dimensionalität eines Effekts wird jeweils die (elektrisch aktive) BaPbO₃-Schichtdicke t (gelb) bzw. supraleitende Schichtdicke t_{SL} (grau) mit der entsprechenden charakteristischen Länge l_i verglichen. Basierend auf dem über Abbildung 6.28 b) bestimmten Wert der Diffusionskonstante $D = 1,7 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$ ergibt sich mit Gleichung 5.75 der blau dargestellte Verlauf der thermischen Diffusionslänge l_{th} . Mit steigender Temperatur ist damit ein 2D-3D-Übergang der EEI bei einer Temperatur von etwa 4,0 K zu erwarten ($t \approx l_{\text{th}}$). Die charakteristische Länge der supraleitenden Fluktuationen (SLF) ist die Ginzburg-Landau-Kohärenzlänge ξ_{GL} (rot), deren Temperaturabhängigkeit sich mit der kritischen Temperatur von $T_{\text{c,WP}} = 3,95 \text{ K}$ mittels Gleichung 5.76 bestimmen lässt. Bei etwa 5,6 K ist $\xi_{\text{GL}} \approx t$, bei etwa 8,9 K $\xi_{\text{GL}} \approx t_{\text{SL}}$. Letztgenannte Bedingung beschreibt die Temperatur des 2D-3D-Übergangs. Für QI-Effekte ist die dephasierende Streurrate relevant. Für deren exemplarisch gezeigten temperaturabhängigen Verlauf (grün) wurde der algebraische Zusammenhang von $B_i(T)$ der 15-nm-dicken BaPbO₃-Monolage (vgl. Tab. 6.2) mit einem zusätzlichen Beitrag, der aus der dephasierenden Streuung an Quasiteilchenanregungen aus Gleichung 6.3 mit $R_s = 6 \text{ k}\Omega_s$ resultiert, angenommen. In der Nähe der kritischen Temperatur dominieren in diesem Fall Dephasierungen der Elektronen an SLF. Mit ansteigender Temperatur ist sowohl ein 3D-2D- als auch ein 2D-3D-Übergang möglich.

$$C = \frac{4 \ln(2)}{\sqrt{\left[\ln \left(\frac{\pi \hbar}{e^2 R_s} \right) \right]^2 + \frac{128 \hbar}{e^2 R_s} - \ln \left(\frac{\pi \hbar}{e^2 R_s} \right)}} \quad (6.3a)$$

abgeschätzt werden [268, 270, 310]. Aufgrund der $\ln(T/T_c)^{-1}$ -Abhängigkeit wird $\tau_{\text{el-fl}}^{-1}$ für Temperaturen nahe T_c sehr groß. Die Streurrate kann dabei das bis zu zehnfache der Elektron-Elektron-Streurate annehmen [270]. In die Gleichung geht die Annahme eines quasi-zweidimensionalen Films ein, wodurch die mittlere freie Weglänge kleiner als die Schichtdicke und diese kleiner als die dephasierende Länge angenommen wird ($l_{\text{mfp}} < t < l_\varphi$). Die drei Streuraten $\tau_{\text{el-el}}^{-1}$, $\tau_{\text{el-ph}}^{-1}$ und $\tau_{\text{el-fl}}^{-1}$ setzen sich additiv zur dephasierenden Streurrate τ_φ^{-1} zusammen, woraus mit Gleichung 5.26 und dem bereits bestimmten Wert der Diffusionskonstante $D = 1,7 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$ der in Abbildung 6.29 gezeigte $l_\varphi(T)$ -Verlauf resultiert. Dabei wurden für die EEI und Elektron-Phonon-Wechselwirkung Werte einer ähnlich dicken BaPbO₃-Monolagen verwendet. Der Verlauf dient lediglich zur groben Abschätzung und beschreibt ein mögliches Szenario. Wohlgedenkt wird bei der Abschätzung die Bedingung des quasi-zweidimensionalen Films nicht über den gesamten Temperaturbereich erfüllt (teilweise ist $t > l_\varphi$).

Somit fasst Abbildung 6.29 die grundsätzlichen Schwierigkeiten zusammen, die bei der Interpretation der betrachteten supraleitenden BaPbO₃-BaBiO₃-Bilage intrinsisch sind: Im Temperaturbereich zwischen T_c und etwa 10 K ist einerseits ein dimensionaler 2D-3D-Übergang der SLF zu erwarten, für QI andererseits ein 3D-2D-Übergang möglich und darüber hinaus ist die EEI dreidimensional zu betrachten. Der letztgenannte Beitrag ist indirekt proportional zur Temperatur und wirkt sich damit erst bei sehr tiefen Temperaturen aus. Daher werde ich diesen Beitrag im Folgenden vernachlässigen. Zudem zeigen die Analysen der BaPbO₃-Monolagen, dass die Beiträge der EEI deutlich kleiner als die der QI sind. Gleichzeitig gilt als Faustregel, dass QI- sowie EEI-Beiträge erst oberhalb von $1,3T_c$ bis $3T_c$ einen merklichen Beitrag verglichen zu denen der SLF liefern sollten [270].

Die obige Diskussion zeigt, dass die dephasierende Streurrate bei tiefen Temperaturen maßgeblich von SLF beeinflusst sein kann. Dies hat einen weiteren Effekt zur Folge, auf den ich kurz verweisen will. Das Vorkommen von SLF ist nicht nur von der Temperatur, sondern auch von Magnetfeldern abhängig. Diese können die SLF unterdrücken, wodurch der Larkin-Parameter für die Stärke der EEI (nahe an T_c beschrieben über Gl. 5.91a), der im MT-Beitrag von Relevanz ist, selbst magnetfeldabhängig wird [283]. Dies erschwert die Interpretation des Einflusses der SLF weiter.

Durch den Einfluss der SLF auf die dephasierende Streurrate wird auch die Stärke und Dimensionalität der QI vom Magnetfeld abhängig: Nimmt mit steigender Magnetfeldstärke die dephasierende Streurrate ab (die Quasiteilchenanregungen nehmen ab), wird l_φ entsprechend größer. Ist l_φ bei $B = 0 \text{ T}$ kleiner als die Schichtdicke und dement-

sprechend das System dreidimensional, so kann mit zunehmender Magnetfeldstärke aufgrund der wachsenden dephasierenden Länge ein 3D-2D-Übergang stattfinden. Wird mit weiterer Erhöhung des magnetischen Feldes die magnetische Länge kleiner als die Schichtdicke, so kann wiederum ein 2D-3D-Übergang stattfinden. Somit können theoretisch aufgrund der SLF innerhalb einer MR-Messung gleich zwei dimensionale Übergänge der QI stattfinden, wobei nur der zweite über die finite Korrektur der HLN-Theorie kontinuierlich beschrieben werden kann.

Auswertung des Magnetotransports

Bei Temperaturen unterhalb von T_c ist der MR-Verlauf durch das Aufbrechen von Cooper-Paaren bestimmt. Oberhalb dominieren Quanteneffekte den elektrischen Transport. Die betrachtete BaPbO₃-BaBiO₃-Bilage erfüllt im Temperaturbereich von 4 K bis 10 K die Bedingung $\ln(T/T_c) < 1$, weswegen zur Beschreibung des MT-Beitrags Gleichung 5.91 verwendet wird. Dabei ist die Theorie auf Magnetfelder limitiert, die sich mit Gleichung 5.90 ergeben. Mit den bisher extrahierten Werten erhält man: $B_{\text{lim}}(4 \text{ K}) = 0,51 \text{ T}$, $B_{\text{lim}}(5 \text{ K}) = 0,63 \text{ T}$, $B_{\text{lim}}(7 \text{ K}) = 0,89 \text{ T}$ und $B_{\text{lim}}(10 \text{ K}) = 1,3 \text{ T}$.

Analog zur Beschreibung des elektrischen Transports von homogen dotierten Dünnschichtproben der Komposition BaPb_{1-x}Bi_xO₃ [274] verwende ich bei meinen Anpassungen für die Beschreibung der 2D-SLF die Beiträge nach AL (Gl. 5.84), MT (Gl. 5.91) und DOS (Gl. 5.93). Bei $T = 4 \text{ K}$ bzw. 5 K wird die Änderung der spezifischen Leitfähigkeit maßgeblich von SLF dominiert, weswegen ich hier beim Anpassen der Daten die Beiträge der EEI sowie QI vernachlässige. Durch Begrenzen des Magnetfelds bei der Anpassung bis B_{lim} ergeben sich unphysikalisch große Werte für die dephasierende Streurrate und das damit assoziierte Magnetfeld B_φ ($B_\varphi(4 \text{ K}) = 99\,439 \text{ T}$). Die Daten werden wesentlich besser beschrieben, wenn die Begrenzung aufgehoben wird und Magnetfelder bis 2 T in die Anpassung eingehen (vgl. Abb. 6.30). Die entsprechenden Werte der Anpassungsgrößen von B_φ , T_c und D sind in Tabelle 6.8 zusammengefasst. Die dephasierenden Magnetfelder von $B_\varphi(4 \text{ K}) = 1,10 \text{ T}$ und $B_\varphi(5 \text{ K}) = 2,35 \text{ T}$ sind deutlich größer als diejenigen, die an BaPbO₃-Monolagen ermittelt werden, was einerseits an unterschiedlichen Wachstumsbedingungen der BaPbO₃-Schicht, andererseits an der Wechselwirkung mit SLF liegen könnte. Im letztgenannten Fall sollte allerdings die dephasierende Streurrate mit Annäherung an T_c zunehmen, was bei den extrahierten Daten nicht der Fall ist.

Die Beschreibung der Daten bei Temperaturen von 7 K und 10 K erweist sich als weniger eindeutig (s. Abb. 6.31). Bereits am Hub der $\Delta\sigma(B)$ -Daten ist zu erkennen, dass die Dominanz der SLF-Beiträge deutlich abgenommen hat, weswegen zur Beschreibung der Daten nun auch QI-Beiträge hinzugenommen werden. Der dimensionale Übergang

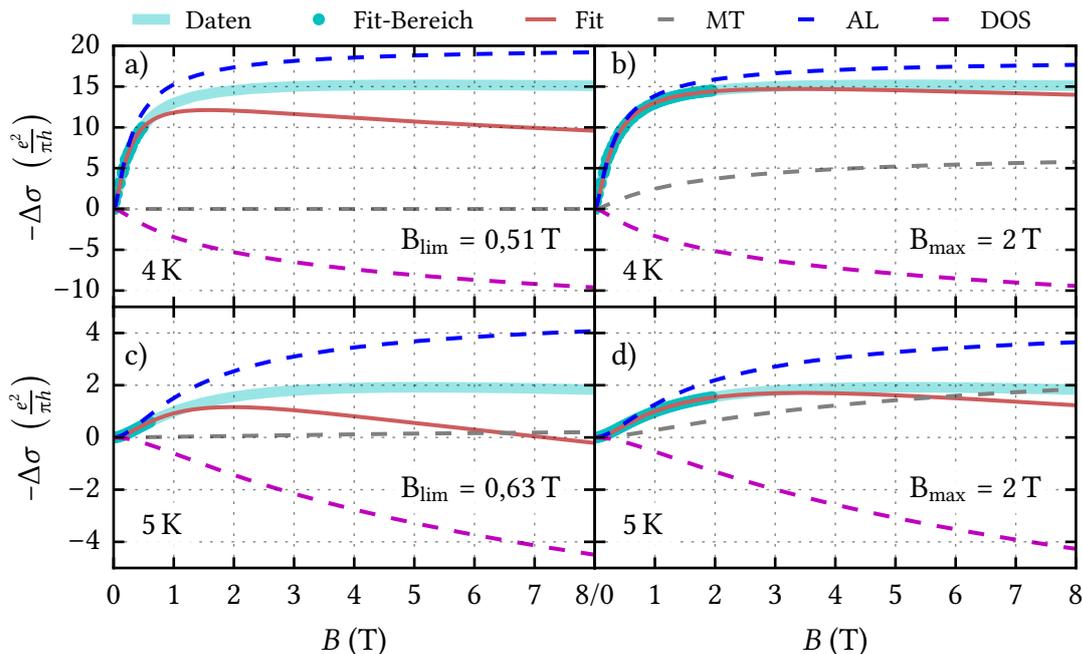


Abbildung 6.30: Magnetotransportdaten einer $\text{BaPbO}_3\text{-BaBiO}_3$ -Bilage (60 LP-100 LP) auf SrTiO_3 , aufgenommen bei 4 K (**a**) und **b**) bzw. 5 K (**c**) und **d**). Die Anpassungen berücksichtigen die Theorien nach AL (Gl. 5.84), MT (Gl. 5.91) und DOS (Gl. 5.93). EEI sowie QI werden aufgrund der dominierenden SLF vernachlässigt. In **a**) und **c**) sind Anpassung der Daten bis zum Magnetfeld B_{lim} gezeigt. In diesem Magnetfeldbereich lassen sich die Daten gut beschreiben, bei größeren Magnetfeldern weicht der extrapolierte Verlauf der Anpassung deutlich von den Messdaten ab. Die Anpassung ergibt eine vollständige Unterdrückung des MT-Beitrags aufgrund eines großen dephasierenden Magnetfelds. In **b**) und **d**) ist die Erweiterung des Anpassungsbereichs bis 2 T gezeigt. Dies führt zur verbesserten Beschreibung der Messdaten durch den extrapolierten Verlauf der Anpassung auch bei größeren Magnetfeldern. Die angepassten Werte für das charakteristische Feld B_φ nehmen dabei physikalisch sinnvollere Größen an. Die resultierenden Werte der Anpassungsparameter sind in Tabelle 6.8 aufgelistet.

der SLF wird im Temperaturbereich zwischen 5,6 K ($\xi_{\text{GL}} \approx t$) und 8,9 K ($\xi_{\text{GL}} \approx t_{\text{SL}}$) erwartet (vgl. Abb. 6.29). Es ist anzunehmen, dass für die dimensionale Abschätzung die supraleitende Schichtdicke t_{SL} entscheidend ist, weswegen die Daten der 7 K-Messung zunächst mit den zweidimensionalen Theorien der SL und QI beschrieben werden.

Bei der Anpassung der Daten bis zu einem Magnetfeld von B_{lim} ergibt sich erneut ein unphysikalisch großer Wert für B_φ (s. Tab. 6.8), aufgrund dessen die Beiträge nach MT und der QI nahezu komplett unterdrückt werden. Eine Beschreibung über B_{lim} hinaus gelingt im zweidimensionalen Bild der Supraleitung nicht. Dies ändert sich, wenn die

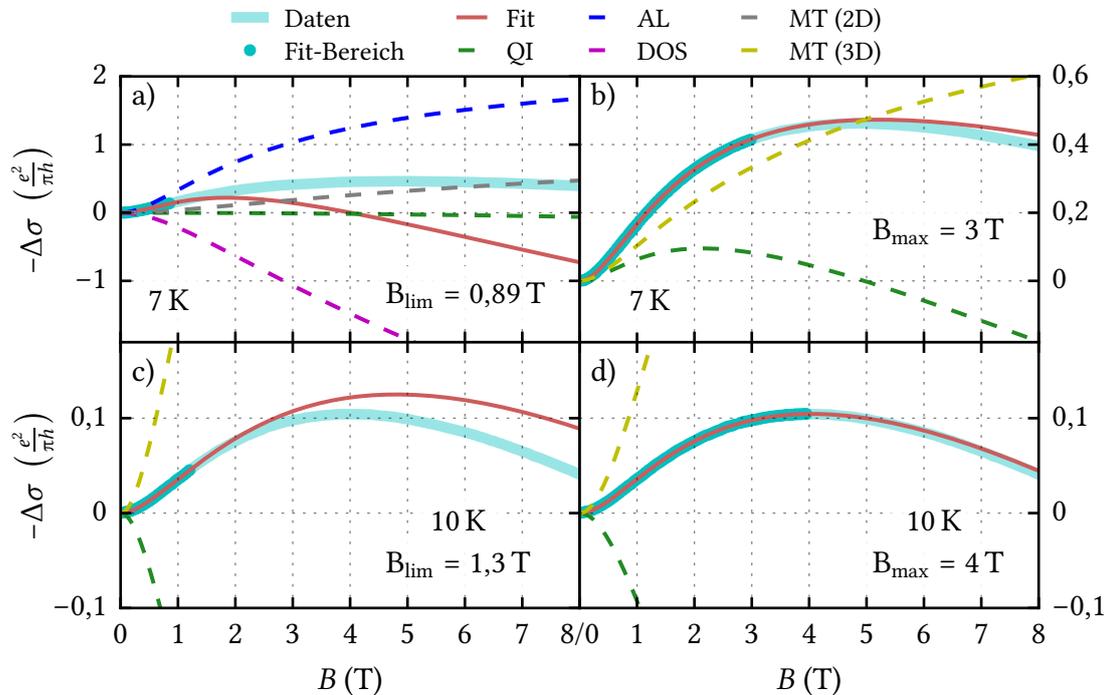


Abbildung 6.31: Magnetotransportdaten einer BaPbO₃-BaBiO₃-Bilage (60 LP-100 LP), aufgenommen bei 7 K bzw. 10 K. **a)** Anpassung der Magnetotransportdaten bei 7 K mit zweidimensionalen Theorien zur Supraleitung (Gl. 5.84, 5.91 und 5.93) und QI (Gl. 5.45) im Magnetfeldbereich bis B_{lim} (Gl. 5.90). Innerhalb des Anpassungsbereichs können die Messdaten gut beschrieben werden, der extrapolierte Verlauf der Anpassung weicht bei größeren Magnetfeldern aber deutlich vom Verlauf der Messdaten ab. **b)** Dreidimensionale Beschreibung der SLF und Ausweitung des Anpassungsbereichs bis $B_{\text{max}} = 3$ T. DOS- sowie AL-Beiträge habe ich hierbei vernachlässigt, da diese nur nahe der kritischen Temperatur signifikant beitragen sollten. Der dreidimensionale Beitrag nach MT (s. Kap. 5.5.3) wird mit Gleichung 6.4 und der als Anpassungsparameter freigegebenen supraleitenden Schichtdicke t_{SL} in einen zweidimensionalen Beitrag übersetzt. Die Daten werden über B_{max} hinaus durch den so angepassten Verlauf gut beschrieben. **c)** Anpassung der Magnetotransportdaten bei 10 K über das in b) beschriebene Verfahren in einem Magnetfeldbereich bis B_{lim} . **d)** Ausweitung der Anpassungsgrenze aus c) bis $B_{\text{max}} = 4$ T. Auch hier führt die Ausweitung des Anpassungsbereichs zu einer verbesserten Beschreibung der Messdaten über die Anpassungsgrenze hinaus. Die Ergebnisse sind in Tabelle 6.8 zusammengefasst.

T	Abb.	B_{\max}	B_{so} (T)	B_{φ} (T)	T_c (K)	D ($\text{cm}^2 \text{s}^{-1}$)	t_{SL} (nm)
4 K	6.30 a)	B_{lim}	–	99439	3,76	1,95	–
	6.30 b)	2 T	–	1,10	3,74	2,01	–
5 K	6.30 c)	B_{lim}	–	23,98	3,88	1,87	–
	6.30 d)	2 T	–	2,35	3,78	1,89	–
7 K	6.31 a)	B_{lim}	0,67	6,24	4,14	2,78	–
	6.31 b)	3 T	0,64	0,32	4,68	2,09	5,2
10 K	6.31 c)	B_{lim}	0,04	0,30	5,00	3,00	17,5
	6.31 d)	4 T	0,07	0,44	5,00	3,00	15,2

Tabelle 6.8: Zusammenfassung der Ergebnisse der in den Abbildungen 6.30 und 6.31 gezeigten Auswertungen des Magnetotransports einer $\text{BaPbO}_3\text{-BaBiO}_3$ -Bilage. Die angegebenen Werte entsprechen jeweils den Ergebnissen der in den entsprechenden Abbildungen gezeigten Anpassungen. Die Daten wurden jeweils bis zu einem Magnetfeld B_{\max} angepasst, wobei einerseits als Anpassungsgrenze die Limitierung im Rahmen der MT-Theorie gewählt wurde (B_{lim} nach Gl. 5.90), andererseits der Anpassungsbereich darüber hinaus bis zu den angegebenen Werten ausgeweitet wurde. Bei den Temperaturen 4 K und 5 K wird der Einfluss durch QI vernachlässigt. Sofern ein Wert für die angepasste supraleitende Schichtdicke t_{SL} angegeben ist, wurde der MT-Beitrag im Dreidimensionalen beschrieben und über t_{SL} und Gleichung 6.4 in einen zweidimensionalen Beitrag übersetzt. Orange markierte Werte liegen nahe an den vorgegebenen Grenzwerten der Anpassungsparameter.

SLF im Dreidimensionalen beschrieben werden. Um gleichzeitig Quantenkorrekturen unterschiedlicher Dimensionalität anzupassen, wird folgende Relation ausgenutzt:

$$\Delta\sigma_{2\text{D}} = \frac{1}{R_s} - \frac{1}{R_{s,0}} = \frac{t}{\rho} - \frac{t}{\rho_0} = \Delta\sigma_{3\text{D}}t. \quad (6.4)$$

Somit können durch Bezug auf die elektrisch aktive Schichtdicke zwei- und dreidimensionale spezifische Leitfähigkeiten miteinander verglichen werden [275] und analog dazu auch deren jeweilige Änderungen $\Delta\sigma$.

Die Anpassung der Daten mit einer zweidimensionalen Theorie der QI und einem dreidimensionalen Beitrag nach MT führt unter Freigabe der supraleitenden Schichtdicke als Anpassungsparameter zu einer hohen Anpassungsgüte. Für die supraleitende Schichtdicke ergeben sich jedoch in Abhängigkeit der Temperatur unterschiedliche Werte (vgl. Tab. 6.8), bei 7 K ist diese mit einem extrahierten Wert von $t_{\text{SL}} = 5,2 \text{ nm}$ nur etwa halb so groß wie erwartet. Die Daten können durch unterschiedliche Gewichtung der Einzelbeiträge jeweils gut beschrieben werden, was zur Folge hat, dass die Ergebnisse der Anpassungen von den vorgegebenen Start- und Grenzwerten der jeweiligen Parameter abhängig werden. Ein globales Minimum kann auch mit re-

chenintensiveren Fitroutinen nicht eindeutig bestimmt werden. Die Einschränkung der Anpassungsparameter ist zum Teil erforderlich, um diese in einem physikalisch sinnvollen Bereich zu halten. Dreidimensionale Beiträge nach AL bzw. DOS habe ich hierbei vernachlässigt, da diese lediglich nahe der kritischen Temperatur signifikant beitragen sollten.

In Tabelle 6.8 sind die Ergebnisse der Auswertungen zusammengefasst. Wenngleich die jeweiligen Dimensionen und Regime besser kontrolliert wurden als in [D1, D2] und die Analysen durch Untersuchung von strukturierten Proben stichhaltiger sind, ist eine konsistente Beschreibung der Magnetotransportdaten der supraleitenden BaPbO₃-BaBiO₃-Bilagen weiterhin herausfordernd. Meine experimentellen Untersuchungen führen zu folgenden Aussagen:

- Die Theorien zu den SLF haben nur eine begrenzte Anwendbarkeit, wodurch entscheidende Signaturen der Messdaten zum Teil außerhalb der von den Theorien zulässigen Bereiche liegen. Zwar gibt es bereits Ansätze, die MT-Theorie auf einen größeren Temperatur- und Magnetfeldbereich auszuweiten [77, 310] bzw. alle Beiträge der SLF auf den gesamten B - T -Phasenraum anzuwenden [265, 266], allerdings sind die Formelzusammenhänge analytisch nur durch Eingrenzungen lösbar und darüber hinaus numerisch rechenintensiv. Des Weiteren wird diese Theorie zum Teil auch als inkonsistent kritisiert [311].
- Im unteren Magnetfeldbereich können verschiedene Kombination von SLF-, QI- und EEI-Beiträgen sowie deren unterschiedliche Gewichtung (auch aufgrund des nahezu gleichen Aufbaus der Formeln von MT, DOS, WL) die Daten jeweils anpassen. Dadurch sind die Ergebnisse der Anpassungen von vorgegebenen Start- und Grenzwerten abhängig. Es lässt sich kein eindeutiges globales Minimum der jeweiligen Anpassung finden.
- Nachdem die supraleitende Schichtdicke t_{SL} kleiner als die Schichtdicke t der BaPbO₃-Schicht ist [D1], letztere jedoch möglicherweise über die gesamte Schichtdicke elektrisch aktiv ist, können zwei Bereiche unterschiedlicher Transporteigenschaften gleichzeitig im System vorliegen. Sind deren Beiträge von gleicher Größenordnung (was insbesondere deutlich oberhalb der kritischen Temperatur zu erwarten ist), so können ähnlich wie bei Multilagen unterschiedliche Transport-Kanäle gleichzeitig beitragen.
- Die dephasierende Streurrate nahe T_c wird möglicherweise durch Wechselwirkungen mit SLF dominiert. Damit wird B_ϕ selbst magnetfeldabhängig. Dieses Phänomen wird in [309] genauer untersucht.
- Die BaPbO₃-BaBiO₃-Bilagen zeichnen sich aufgrund unterschiedlicher Dimensionalitäten der jeweiligen Quanteneffekte in unterschiedlichen Temperaturbe-

reichen und den damit einhergehenden dimensionalen Übergängen (s. Abb. 6.29) durch eine hohe Komplexität aus.

- Während in der Literatur über die Beschreibung der SLF im Zweidimensionalen ein allgemeiner Konsens besteht, werden die Theorien nur teilweise ins Dreidimensionale erweitert und sind daher umstritten.

Auswertung des temperaturabhängigen elektrischen Widerstands

Um den supraleitenden Übergang in $R(T)$ -Messungen mit Quantenkorrekturen beschreiben zu können, wird häufig angenommen, dass bei tiefen Temperaturen der Einfluss der EEI die dephasierende Streuung dominiert. Dadurch ist deren Streurate direkt proportional zur Temperatur ($\tau_\varphi^{-1} \propto T$), wodurch der Parameter δ_{MT} , der die MT-Paarbrechung beschreibt (Gl. 5.87), temperaturunabhängig wird [D2, 267, 308]. Dieser ist damit ausschließlich vom Schichtwiderstand $R_{s,0}$ abhängig [D2, 267]:

$$\delta_{MT} = \frac{e^2 \pi R_{s,0}}{h} \ln \left(\frac{h}{e^2} \frac{1}{2R_{s,0}} \right). \quad (6.5)$$

Diese Näherung erweist sich bereits in Referenz [D2] als inkonsistent: Zur Beschreibung der QI resultiert ein Temperaturkoeffizient von $\alpha \approx 1,89$, wobei $\alpha = 1$ für reine EEI und $\alpha = 2$ für reine Elektron-Phonon-Wechselwirkung steht. Damit ist ein deutlicher Anteil an Elektron-Phonon-Wechselwirkungen vorhanden und damit die Näherung für den Parameter δ_{MT} nicht mehr zutreffend. Um zu überprüfen, ob Untersuchungen an strukturierten Proben mit dieser Methode ein konsistentes Bild liefern, werden die Daten mit

$$\delta\sigma(T) = \frac{e^2}{\pi h} \left\{ \underbrace{\alpha' \ln \left(\frac{T}{T_{ref}} \right)}_{EEI+QI} + \underbrace{\left[\frac{\pi^2}{8 \left(\ln \frac{T}{T_c} \right)} + \frac{\pi^2}{4 \left(\ln \left(\frac{T}{T_c} \right) - \delta_{MT} \right)} \ln \left(\frac{\ln \left(\frac{T}{T_c} \right)}{\delta_{MT}} \right) \right]}_{AL+MT} \right\} \quad (6.6)$$

angepasst. Die Anpassungsgüte ist dabei niedrig (vgl. Abb. 6.32 a)) und es ergeben sich mit $\alpha' = p\alpha + \zeta > 10$ unrealistische Werte (p ist $-0,5$ für WAL und 1 für WL, α sollte zwischen 1 und 2 liegen, ζ zwischen $0,35$ bis 1). Da Anpassungen in [D2] an Daten einer unstrukturierten BaPbO₃-BaBiO₃-Bilage mit dem Geometriefaktor $f_{geo} = w/l$, der das Verhältnis aus Probenbreite w und Probenlänge l beschreibt, als zusätzlicher freie Parameter die Daten deutlich besser beschreiben, wird dieser in Abbildung 6.32 b) ebenfalls freigegeben. Dies verbessert die Anpassungsgüte, allerdings bleibt der Wert von $\alpha + \zeta$ weiterhin zu groß. Zudem ist beispielsweise durch Ätزشäden bei der Präparation des Messstegs eine geringfügige Abweichung des Geometriefaktors von 1

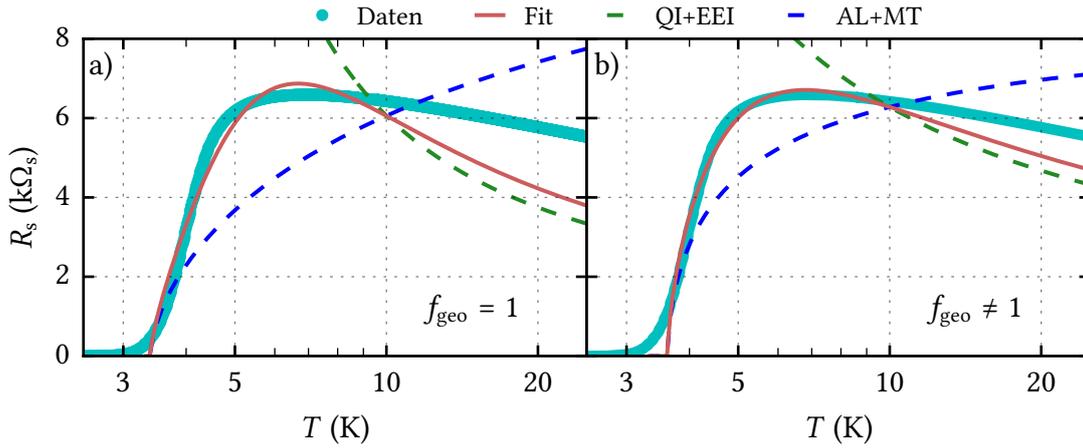


Abbildung 6.32: Beschreibung des temperaturabhängigen Schichtwiderstands einer BaPbO₃-BaBiO₃-Bilage (60LP-100LP) mit Quantenkorrekturen. Die Daten werden mit Beiträgen der QI, EEI, MT und AL über Gleichung 6.6 analog zu [D2] durchgeführt. Der Parameter zur MT-Paarbrechung wird dabei über Gleichung 6.5 berechnet. Anders als dort ist die Probe in dieser Arbeit strukturiert, wodurch der Geometriefaktor $f_{\text{geo}} = w/l$, der das Verhältnis aus Probenbreite w zu Probenlänge l beschreibt, bekannt ist. Die Daten werden im Bereich von 1,8 K bis 10 K angepasst. a) Mittels dem experimentell vorgegebenen Geometriefaktor können die Messdaten nicht beschrieben werden. b) Durch Freigabe von f_{geo} als Anpassungsparameter nimmt dieser einen Wert von $f_{\text{geo}} = 0,48$ an und die Messdaten werden besser beschrieben. Allerdings ist eine so deutliche Abweichung von $f_{\text{geo}} = 1$ unverständlich. Zugleich ergeben sich mit $p\alpha + \zeta \approx 11,9$ bzw. 13,6 in beiden Fällen physikalisch nicht sinnvolle Werte für den Temperaturkoeffizienten α , für die Abschirmkonstanten ζ der EEI oder dem Parameter p : der Wert von α sollte im Bereich zwischen 1 und 2 liegen, der von ζ zwischen 0,35 und 1, der von p entweder $-0,5$ für WAL oder 1 für WL. Als weitere freie Anpassungsparameter gehen T_c sowie $R_{s,0}$ in die Anpassungen ein.

denkbar, der sich ergebende Wert $f_{\text{geo}} = 0,48$ scheint dafür allerdings zu gering. Zuletzt ist aus Abbildung 6.29 ersichtlich, dass die EEI eher dreidimensional betrachtet werden sollte, sodass mit dem in [D2] vorgeschlagenem Verfahren der temperaturabhängige Verlauf des elektrischen Widerstands nicht konsistent beschrieben werden kann.

Um die Beschreibung des elektrischen Transports zu vereinfachen, wird der Wert von τ_φ im relevanten Temperaturbereich häufig als konstant angenommen [157]. Diese Näherung ist allerdings nur in einem kleinen Temperaturfenster bei sehr tiefen Temperaturen gültig.

Das Vorgehen anderer Arbeitsgruppen [275, 312], bei welchem das $B_\varphi(T)$ -Verhalten aus den Magnetotransportdaten extrahiert wird, ist aufgrund der Komplexität der Beschreibung der BaPbO₃-BaBiO₃-Bilagen hier nicht möglich. Dementsprechend möchte ich zur Auswertung von $B_\varphi(T)$ dessen Temperaturabhängigkeit mit anpassen lassen. Hierfür kommt einerseits der algebraische Zusammenhang aus Gleichung 5.63 in Fra-

ge, andererseits könnte man diesen um einen Beitrag, der durch Wechselwirkungen der Elektronen mit SLF entsteht (Gl. 6.3), wie folgt erweitern:

$$B_{\varphi}(T) = \gamma + \beta T^{\alpha} + \delta \frac{T}{\ln\left(\frac{T}{T_c}\right)}. \quad (6.7)$$

Dieser Beitrag kann den MT-Paarbrechungs-Mechanismus δ_{MT} nahe T_c vergrößern und damit den MT-Beitrag teilweise unterdrücken. Auch der QI-Beitrag ist vom $B_{\varphi}(T)$ -Verlauf abhängig. Wird eine starke Dephasierung der Elektronen an SLF angenommen, so steigt der Wert von B_{φ} mit sinkender Temperatur, wodurch Elektronen trotz eines lokalisierenden Regimes zunehmend der Lokalisierung entkommen würden. Allerdings wird ein derartiger Einfluss der SLF auf das $B_{\varphi}(T)$ -Verhalten und damit auf den QI-Beitrag in der gesichteten Literatur nicht diskutiert.

Analog zu [274] berücksichtige ich nun alle SLF-Beiträge, indem ich jeweils die Änderungen der spezifischen Leitfähigkeit durch Beiträge nach AL (Gl. 5.83, mit der reduzierten Temperatur aus Gl. 5.77b), MT (Gl. 5.86) und DOS (Gl. 5.94), sowie durch Beiträge der QI (Gl. 5.61) und EEI (3D, Gl. 5.73) aufsummiere. Im Temperaturbereich bis 10 K lässt sich der temperaturabhängige Schichtwiderstand sowohl mit $\delta \neq 0 \text{ mT K}^{-1}$ (vgl. Abb. 6.33 a)) als auch mit $\delta = 0 \text{ mT K}^{-1}$ (vgl. Abb. 6.33 b)) anpassen. Dabei wird der dreidimensionale EEI-Beitrag der zweidimensionalen Änderung der spezifischen Leitfähigkeit mittels Gleichung 6.4 zugeordnet, indem dieser auf die BaPbO₃-Schichtdicke t bezogen wird (alternativ wäre der Bezug auf die supraleitende Schichtdicke t_{SL} denkbar).

Durch Freigabe von δ als Anpassungsparameter (in Gl. 6.7) wird der MT-Beitrag bis zur kritischen Temperatur nahezu komplett unterdrückt. Der Beitrag der QI führt trotz eines lokalisierenden Regimes ($B_{\varphi} > B_{\text{so}}$) aufgrund des Verlaufs von B_{φ} zu einer Erhöhung der spezifischen Leitfähigkeit mit sinkender Temperatur (verursacht durch mehr inelastische Stöße mit Quasiteilchenanregungen nahe T_c).

Physikalisch sinnvollere Werte ergeben sich, wenn $\delta = 0$ angenommen wird. Die Abschirmkonstante indiziert dann mit Werten von $\zeta \approx 0,8$ schwach abgeschirmte EEI, die kritische Temperatur sowie die Werte der Diffusionskonstante liegen mit entsprechend $T_c \approx 3,6 \text{ K}$ und $D \approx 1,4 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$ nahe an denen vorangegangener Analysen (vgl. Tab. 6.9).

Aufgrund der Vielzahl an zur Verfügung stehender Beiträge und Anpassungsparameter ist die Suche nach einem globalen Anpassungsminimum erschwert und die Anpassungen werden wieder von gewählten Start- und Grenzwerten abhängig. Diese Arbeit erweitert somit das Verständnis um die Komplexität der Dimensionalität der jeweiligen Quanteneffekte. Auch wenn mit diesem erweiterten Verständnis bisher keine konsistente Beschreibung der Daten gelingt, erweisen sich die Analysen insofern als in-

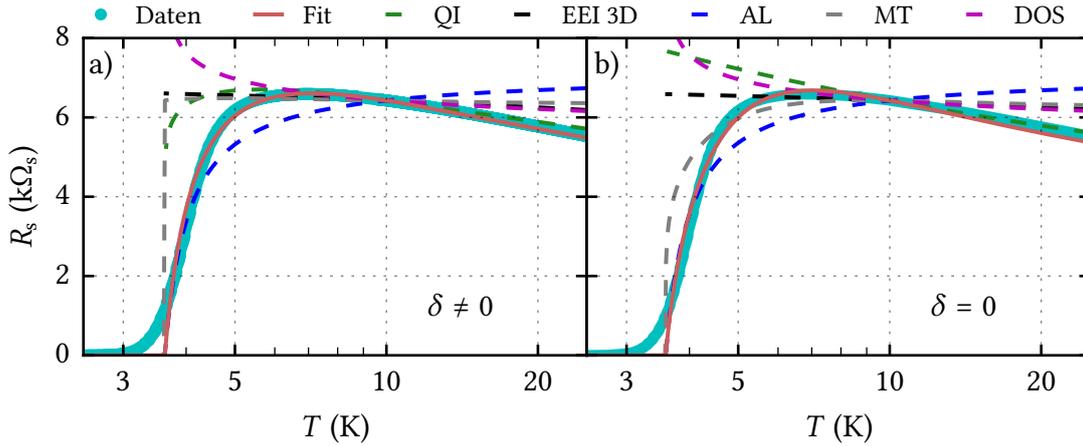


Abbildung 6.33: Anpassungen der Messdaten einer BaPbO₃-BaBiO₃-Bilage (60LP-100LP) mit Theorien der Quantenkorrekturen. In beiden Teilabbildungen werden die Theorien der QI (Gl. 5.61), EEI in 3D (Gl. 5.73), AL (Gl. 5.83), MT (Gl. 5.86) und DOS (Gl. 5.94) additiv (Gl. 5.34) zusammengesetzt und mit Gleichung 5.31 auf den Schichtwiderstand bezogen. Die Daten werden jeweils in einem Temperaturbereich bis 10 K angepasst unter der Annahme, dass in etwa bei dieser Temperatur ein 2D-3D-Übergang der SLF stattfindet (vgl. Abb. 6.29). a) Beschreibung der Temperaturabhängigkeit von B_φ mit Gleichung 6.7 mit δ als freien Parameter. Der $R_s(T)$ -Verlauf lässt sich gut beschreiben, allerdings wird der Beitrag nach MT durch einen unphysikalisch großen Wert von $\delta = 996,2 \text{ mTK}^{-1}$ komplett unterdrückt. Gleichzeitig steigt $B_\varphi(T)$ mit sinkender Temperatur an und führt damit formell zu einer Erhöhung der spezifischen Leitfähigkeit, obwohl das System im lokalisierenden Regime ist. Ein solches Verhalten wird in der gesichteten Literatur nicht beschrieben und daher nicht als physikalisch sinnvoll erachtet. b) Beschreibung der Temperaturabhängigkeit von B_φ unter Ausschluss von dephasierenden Streuungen an Quasiteilchenanregungen (mit Gl. 6.7 und $\delta = 0$). Die Daten lassen sich ebenfalls gut anpassen. Resultierende Werte für die verschiedenen Anpassungsparameter sind in Tabelle 6.9 zusammengefasst.

	α	β (mT/K $^\alpha$)	γ (mT)	δ (mTK $^{-1}$)	B_{so} (T)	ζ	T_c (K)	D (cm $^2 \text{ s}^{-1}$)
6.33 a)	2,00	260,2	48,7	996,2	0,17	0,85	3,63	1,35
6.33 b)	2,00	62,2	0	–	0	0,80	3,59	1,37

Tabelle 6.9: Zusammenfassung der Ergebnisse der Auswertungen aus Abbildung 6.33. Mit den angegebenen Temperaturkoeffizienten (α , β , γ und δ), die die Temperaturabhängigkeit des charakteristischen Feldes B_φ der dephasierenden Streuung beschreiben, ergeben sich aus der in Abbildung 6.33 a) gezeigten Auswertung vergleichsweise große Werte für B_φ (mit Gl. 6.7, $B_\varphi(10 \text{ K}) = 35,9 \text{ T}$ bzw. $B_\varphi(4 \text{ K}) = 45,3 \text{ T}$). Damit ist das System im lokalisierenden Regime ($B_{\text{so}} = 0,17 \text{ T}$). Die Werte für den Abschirmparameter ζ , der kritischen Temperatur T_c und der Diffusionskonstante D liegen in physikalisch sinnvollen Bereichen. Die in Abbildung 6.33 b) gezeigte Auswertung unter Annahme von $\delta = 0 \text{ mTK}^{-1}$ ergibt plausible, wenngleich noch immer sehr große Werte für B_φ ($B_\varphi(10 \text{ K}) = 6,3 \text{ T}$ bzw. $B_\varphi(4 \text{ K}) = 1,0 \text{ T}$). Auch hier ist das System im lokalisierenden Regime. Die restlichen Parameter nehmen ebenfalls physikalisch sinnvollere Werte an. Orange markierte Werte liegen dabei jeweils an den Grenzen der Anpassungslimits.

teressant, da ein dominanter Beitrag nur einer Wechselwirkung auszuschließen ist und darauf hingewiesen wird, dass eine Beschreibung der Daten nur im Zusammenspiel unterschiedlicher Quantenkorrekturen gelingen kann.

Neben dem Einfluss der SLF in den BaPbO₃-BaBiO₃-Bilagen kann natürlich auch die zusätzlich eingeführte BaPbO₃-BaBiO₃-Grenzfläche die elektronischen Transporteigenschaften der Bilagen beeinflussen. Während in [D1] hauptsächlich der Einfluss der BaPbO₃-Schichtdicke auf die supraleitenden Transporteigenschaften untersucht wird, habe ich in dieser Doktorarbeit auch experimentell untersucht, ob die Eigenschaften der BaPbO₃-BaBiO₃-Grenzfläche während der PLD-Herstellung optimiert werden kann. Diese experimentellen Untersuchungen möchte ich gerne im folgenden Kapitel vorstellen.

6.2.2 Untersuchung der BaPbO₃-BaBiO₃-Grenzflächen

Ich möchte im Folgenden Ergebnisse an BaPbO₃-BaBiO₃-Bilagenproben vorstellen, bei deren Herstellung jeweils 60 LP BaPbO₃ auf eine variierende BaBiO₃-Schicht gewachsen wurden. Die BaPbO₃-Schicht wurde bereits in Vorarbeiten auf diese Schusszahl optimiert [D1]. Als Notation für die Bezeichnung der Bilagen werde ich im weiteren Verlauf die jeweilige Anzahl an Laserpulsen während der Ablation als Index schreiben und die Materialien BaBiO₃, BaPbO₃, SrTiO₃ und MgO jeweils mit BBO, BPO, STO und MGO abkürzen. Eine BaPbO₃-BaBiO₃-Bilage, hergestellt mittels 60 LP auf ein BaPbO₃-Target und 100 LP auf ein BaBiO₃-Target mit SrTiO₃ als Substratmaterial, wird im Folgenden mit BPO₆₀BBO₁₀₀-STO bezeichnet.

Bei einer Modulation der BaBiO₃-Schichtdicke in dieser Doktorarbeit auf chemisch-mechanisch gereinigten SrTiO₃-Substraten bleibt die mittlere mediale Raumtemperatur-Gitterkonstante der BaBiO₃-Einheitszelle mit einem Wert von 4,34 Å (ermittelt über Gl. 4.16) konstant (vgl. Abb. 6.34 a)). Die mediale Gitterkonstante des darauf aufgewachsenen BaPbO₃-Films sowie die kritische Temperatur nehmen mit der BaBiO₃-Schichtdicke tendenziell zu (vgl. Abb. 6.34). Ein Zusammenhang zwischen mechanischen Verspannungen in der BaPbO₃-Schicht und der supraleitenden Phase wurde bereits in Vorarbeiten gefunden [D1]. Mit zunehmender BaBiO₃-Schichtdicke wird eine ansteigende Grenzflächenrauigkeit erwartet. Gleichzeitig kann die Konzentration an Sauerstofffehlstellen an der Grenzfläche zunehmen, da anzunehmen ist, dass das Filmwachstum zunehmend sauerstoffdefizitär stattfindet und mit zunehmender Schichtdicke eine Sauerstoffsättigung des Films durch das nachträgliche Annealing erschwert wird. Um die Unordnung an der Grenzfläche sowie deren Sauerstoffbeladung zu manipulieren, habe ich die gewachsenen BaBiO₃-Schichten vor dem Bewachsen mit BaPbO₃ einem zusätzlichen Ausheizschritt (Zwischenannealing, ZA) ausgesetzt.

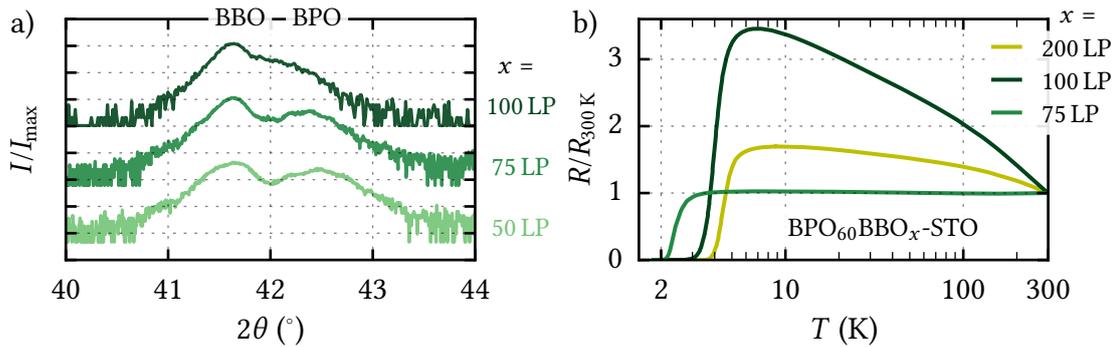


Abbildung 6.34: Einfluss der BaBiO₃-Schichtdicke auf physikalische Eigenschaften von BaPbO₃-BaBiO₃-Bilagen. a) XRD-Analysen zeigen eine unveränderte BaBiO₃-Einheitszelle mit einer konstanten medialen Gitterkonstante von 4,34 Å. Die Gitterkonstante von BaPbO₃ nimmt mit zunehmender BaBiO₃-Schichtdicke von 4,25 Å auf 4,29 Å zu. b) Auf 300 K normierte $R(T)$ -Messungen zeigen eine Abhängigkeit der kritischen Temperatur von der BaBiO₃-Schichtdicke: $T_{c,WP} = 2,38$ K bei 75 LP, $T_{c,WP} = 3,95$ K bei 100 LP und $T_{c,WP} = 4,43$ K bei 200 LP.

Dafür wird die Probe unter einem definierten Sauerstoffhintergrunddruck innerhalb weniger Sekunden auf 900 °C aufgeheizt und für eine gewisse Zeitdauer (meist fünf Minuten) gehalten. Direkt vor der Ablation der BaPbO₃-Schicht wird der Sauerstoffhintergrunddruck und die Temperatur wieder auf die für das Wachstum benötigten Werte eingestellt, ehe mit dem Filmwachstum fortgesetzt wird.

Den ZA-Einfluss auf die Topographie der BaBiO₃-Oberfläche in Abhängigkeit des gewählten Sauerstoff-Hintergrunddrucks dokumentieren beispielsweise nivellierte AFM-Aufnahmen (vgl. Abb. 6.35): Bei 1,1 mbar O₂ entsteht eine lamellenartige Struktur mit Vorzugsachsen, die um 45° verkippt zu den Kristallachsen stehen, bei 1 bar O₂ entstehen vergleichsweise saubere Flächen mit Stufen, deren Höhen mit etwa 4 Å der Höhe einer BaBiO₃-Einheitszelle entsprechen. Daneben entstehen aber auch Löcher mit einer Tiefe von mindestens 50 nm.

Zudem kann auch ein Einfluss des ZAs auf die Struktur und den elektrischen Transport in BaPbO₃-BaBiO₃-Bilagen beobachtet werden: bei hohen Drücken zeigen sich in XRD-Diffraktogrammen Anzeichen von Doppelspitzen beim BaBiO₃-Reflex, was auf eine teilweise Relaxierung bzw. Verspannung des Films schließen lässt, oder auf Bereiche unterschiedlicher Sauerstoffbeladungen hindeutet (vgl. Abb. 6.36). Das ZA, durchgeführt bei unterschiedlichen Drücken mit jeweils unterschiedlichen Haltezeiten im Bereich von 5 bis 300 Sekunden, verschiebt die supraleitende Sprungtemperatur hin zu niedrigeren Temperaturen oder unterdrückt die supraleitende Phase im untersuchten Temperaturbereich vollständig (vgl. exemplarisch gezeigte Datenreihen in Abb. 6.36).

Bei BaPbO₃-BaBiO₃-Bilagen auf MgO-Substraten zeigt sich ein ähnliches Bild. Die kritische Temperatur ist wieder abhängig von der darunterliegenden BaBiO₃-

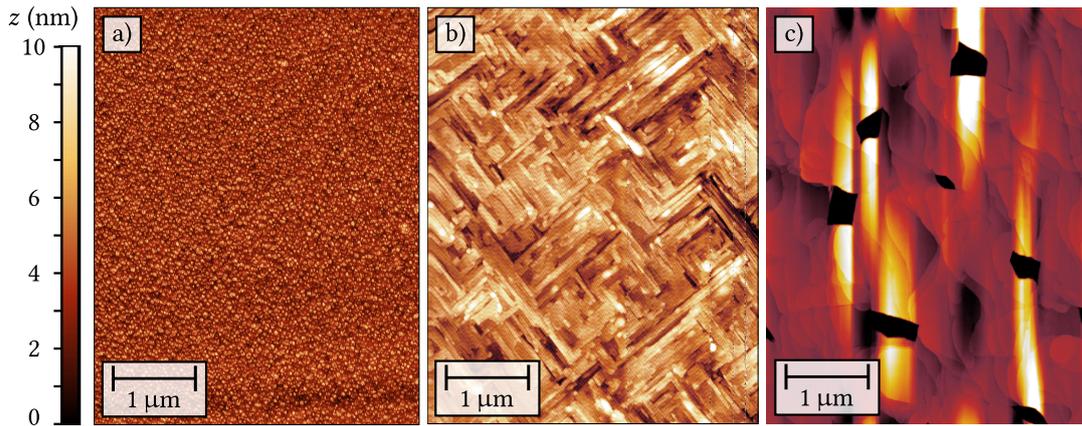


Abbildung 6.35: Nivellierte Oberflächentopographie von BaBiO_3 -Schichten, die unterschiedlichen Ausheizprozeduren ausgesetzt sind. Die Schichten bestehen aus 200 LP BaBiO_3 (Schichtdicke etwa 100 nm) auf chemisch-mechanisch gereinigtem SrTiO_3 -Substraten. a) Ohne zusätzlicher thermischer Behandlung zeigt die Topographi der Oberfläche eine Mosaikstruktur mit $\text{RMSR} = 1,42 \text{ nm}$. b) Nach einem Annealing bei $900 \text{ }^\circ\text{C}$ für fünf Minuten unter $1,1 \text{ mbar O}_2$ -Hintergrunddruck zeigt sich eine lamellenartigen Struktur mit Vorzugsachsen, die um 45° verkippt zu den Kristallachsen stehen. Der Mittenrauwert erhöht sich dabei auf $\text{RMSR} = 2,61 \text{ nm}$. c) Eine identische thermische Behandlung bei 1 bar O_2 führt zu Stufen, die an die Stufen der terminierten SrTiO_3 -Substrate erinnern. Mit einer Höhe von etwa 4 \AA entspricht die Stufenhöhe jeweils etwa einer BaBiO_3 -Einheitszelle. Gleichzeitig werden Löcher mit einer Tiefe von mindestens 50 nm induziert. Der Mittenrauwert von $\text{RMSR} = 5,44 \text{ nm}$ wird maßgeblich durch die Löcher dominiert, abseits davon ist $\text{RMSR} \sim 500 \text{ pm}$.

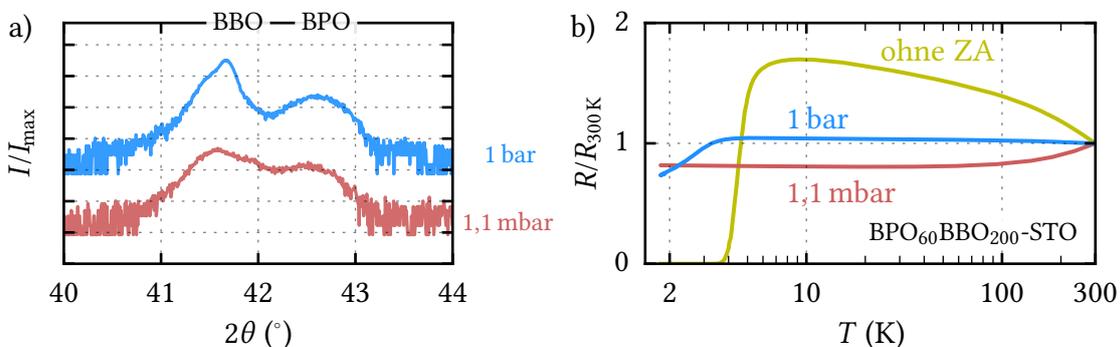


Abbildung 6.36: Einfluss eines Zwischenannealings (ZA) auf die Struktur und auf elektronische Transporteigenschaften von Bilagen aus 60 LP BaPbO_3 auf 200 LP BaBiO_3 auf SrTiO_3 -Substraten. a) Unter hohen Drücken ist an den Flanken des BaBiO_3 -Reflexes eine Ausbildung einer weiteren Phase sichtbar, was auf eine teilweise Relaxierung/Verspannung des Films hindeuten kann. Die mittlere mediale Gitterkonstanten der BaBiO_3 - sowie BaPbO_3 -Einheitszelle bleiben durch die thermische Behandlung weitgehend unverändert. b) Im elektrischen Transport unterdrückt das ZA die supraleitende Phase (gelbe Kurve) und induziert bei tiefen Drücken ein metallisches Verhalten. Magnetotransportdaten deuten darauf hin, dass das Abknicken der blauen Kurve als Einsetzen der supraleitenden Phase interpretiert werden kann.

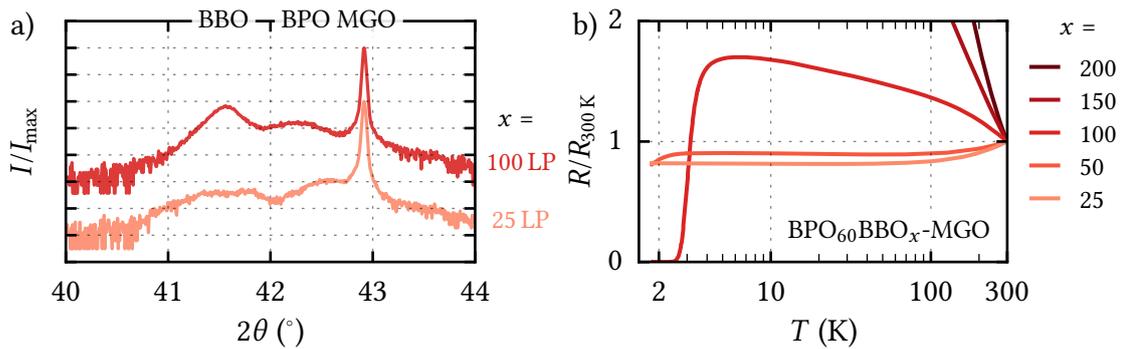


Abbildung 6.37: Einfluss der BaBiO₃-Schichtdicke auf die Struktur und elektronischen Transporteigenschaften einer BaPbO₃-BaBiO₃-Bilage auf MgO-Substraten. **a)** Die BaBiO₃-Einheitszelle ist mit einer medialen Gitterkonstante von 4,35 Å konstant, die von BaPbO₃-Gitterkonstante nimmt mit zunehmender BaBiO₃-Schichtdicke leicht von 4,23 Å nach 4,26 Å zu. **b)** Die BaBiO₃-Schichtdicke beeinflusst den elektrischen Transport signifikant. Mit zunehmender Schichtdicke zeigt der temperaturabhängige Verlauf des normierten elektrischen Widerstands verstärkt halbleiterähnliches Verhalten. Ein vollständiger supraleitender Übergang kann innerhalb des Messbereichs nur bei der Probe mit 100 LP BaBiO₃ beobachtet werden, mit $T_{c,WP} = 3,01$ K.

Schichtdicke. Ein Optimum von $T_{c,WP} = 3,01$ K kann wieder an der Stapelfolge aus 60 LP BaPbO₃ auf 100 LP BaBiO₃ beobachtet werden. Ist die BaBiO₃-Schicht dünner, so verhält sich das System metallisch, bei dickeren BaBiO₃-Schichten zeigt das System halbleiterähnliches Verhalten (vgl. Abb. 6.37 a)). Auch hier wird eine mechanische Verspannung der BaPbO₃-Einheitszelle in Abhängigkeit der BaBiO₃-Schichtdicke vermutet, während die BaBiO₃-Gitterkonstante konstant bleibt. Messreihen mit ZA bei unterschiedlichen Zeitkonstanten und Drücken führen auch bei diesen Proben zu einer Unterdrückung der supraleitenden Phase (vgl. Abb. 6.38).

Die nicht-supraleitenden Bilagen zeigen auch im Magnetotransport WAL-Signaturen. Die magnetfeldabhängigen Änderungen der spezifischen Leitfähigkeit bei verschiedenen Temperaturen im Bereich zwischen 1,8 K bis 20 K liegen in ähnlicher Größenordnung und schließen damit eine (starke) Beeinflussung des elektrischen Transports durch SLF aus. Interessanterweise gelingt eine systematische Beschreibung dieser Daten im Bild der EEI und QI mit der selbstkonsistenten Fitroutine nicht (vgl. Abb. A.22), was den Schluss nahe legt, dass durch die zusätzliche BaBiO₃-Schicht und der damit einhergehenden weiteren Grenzfläche die Komplexität des Systems erhöht wird. Die supraleitende Sprungtemperatur kann durch die durchgeführten Optimierungsversuche nur leicht von $T_{c,WP} \approx 4$ K auf $T_{c,WP} \approx 4,4$ K erhöht werden. Die Komplexität der supraleitenden BaPbO₃-BaBiO₃-Bilagen wird durch die Optimierung der BaPbO₃-Schicht nicht weiter reduziert, was sich bereits bei der Betrachtung der nicht-supraleitenden BaPbO₃-BaBiO₃-Bilagen abzeichnet.

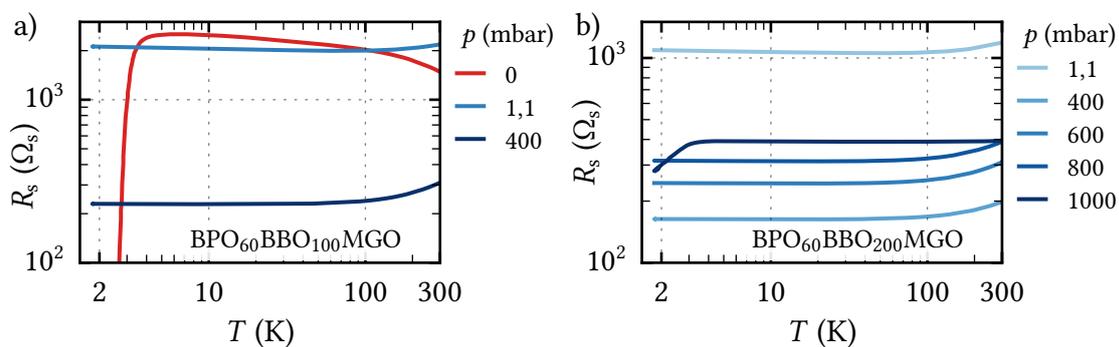


Abbildung 6.38: Einfluss eines Zwischenannealings (ZA) auf die elektronischen Transporteigenschaften von BaPbO_3 - BaBiO_3 -Bilagen auf MgO -Substraten. **a)** Bei der BaPbO_3 - BaBiO_3 -Bilage aus 60 LP BaPbO_3 auf 100 LP BaBiO_3 induziert das ZA einen metallischen Charakter im elektronischen Transportverhalten und unterdrückt gleichzeitig die supraleitende Phase, die bei Proben ohne ZA beobachtet wird (rote Kurve). **b)** Die Stapelfolge von 60 LP BaPbO_3 auf 200 LP BaBiO_3 zeigt ohne ZA einen hohen elektrischen Widerstand und stark halbleiterähnlichen Verhalten (nicht gezeigt), durch ein ZA reduziert sich der elektrische Widerstand um ein Vielfaches. Das Abknicken des elektrischen Widerstand bei einem Druck von 1 bar O_2 wird aufgrund von MR-Analysen auf die einsetzende Supraleitung zurückgeführt.

7 Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen dieser Doktorarbeit habe ich BaPbO_3 -Monolagen und BaPbO_3 - BaBiO_3 -Bilagen untersucht. In diesen Dünnschichtsystemen kann zweidimensionale Supraleitung nachgewiesen werden. Darüber hinaus gibt es theoretische Hinweise auf verborgene topologische Eigenschaften. Bei tiefen Temperaturen können durch Unordnung getriebene Quanteneffekte auftreten, wie beispielsweise Elektron-Elektron-Wechselwirkung (EEI) oder Quanteninterferenz (QI), wobei bei der QI die starke Spin-Bahn-Kopplung des Systems die schwache Lokalisierung (WL) zur schwachen Antilokalisierung (WAL) übergehen lässt. Die Dünnschichtproben habe ich mittels gepulster Laserablation auf SrTiO_3 - und MgO -Substraten synthetisiert. Durch Aufnahme und Auswertung von Polfiguren und θ - 2θ -Messungen kann ein epitaktisches Wachstum bei allen untersuchten BaPbO_3 -Monolagen auf SrTiO_3 -Substraten sowie bei Schichtdicken unterhalb von etwa 54 nm auf MgO -Substraten nachgewiesen werden. Die erstellten reziproken Raumkarten deuten einerseits auf ein pseudokubisches Wachstum der BaPbO_3 -Dünnschichten auf MgO -Substraten und andererseits auf eine tetragonale Verspannung auf SrTiO_3 -Substraten hin, wobei letztere sich möglicherweise aus einer domänenangepassten Epitaxie ergibt.

Anschließend habe ich etablierte Theorien zur Beschreibung des elektrischen Transports in dünnen, störstellengetriebenen Filmen zusammengefasst, die vor allem bei tiefen Temperaturen Abweichungen vom klassischen Transport beschreiben. Dabei habe ich jeweils den theoretisch erwarteten Einfluss der Temperatur und externer Magnetfelder auf die Quanteneffekte der QI, EEI und supraleitenden Fluktuationen (SLF) aufgezeigt.

Bei Untersuchungen des elektrischen Transports zeigen alle gemessenen BaPbO_3 -Monolagen eine lineare Abhängigkeit des Hall-Widerstands vom Magnetfeld und somit ein effektives Einbandverhalten mit (Bloch-)Elektronen als Ladungsträger. Die Volumenladungsträgerdichte korreliert maßgeblich mit der Schichtdicke, wobei die Kristallinität der Proben diese weiter beeinflusst. Bei BaPbO_3 -Monolagen auf MgO -Substraten zeigt sich mit wachsender Schichtdicke, dass die elektrisch aktive Schichtdicke von der geometrischen deutlich abweicht, was mit einer ansteigenden Grenz- und Oberflächenrauigkeit sowie möglicherweise mit einer Änderung der Sauerstoffbeladung in Zusammenhang steht. Die Absolutwerte der spezifischen Widerstände nehmen tendenziell in Filmen mit niedriger Schichtdicke zu, was zumindest teilweise auf den

erhöhten Einfluss der Grenzfläche auf die mittlere freie Weglänge zurückzuführen ist. Der temperaturabhängige Verlauf des elektrischen Widerstands kann prinzipiell im Bereich des metallischen Abfalls (bei hohen Temperaturen) klassisch durch das Wechselspiel von Streuprozessen der Elektronen mit Gitterdefekten, Phononen und anderen Elektronen verstanden werden.

Der elektrische Transport der BaPbO₃-Monolagen lässt sich bei tiefen Temperaturen durch das Zusammenspiel aus EEI und QI verstehen. Für die Auswertung des elektrischen Transports habe ich eine Fitroutine implementiert, mit deren Hilfe die jeweiligen Beiträge der QI und EEI konsistent herausgearbeitet werden. Folgende Schritte bestimmen den Programmablauf: Anpassung der magnetfeldabhängigen Änderung der spezifischen Leitfähigkeit $\Delta\sigma(B)$ mit Theorien der QI; algebraische Beschreibung der Temperaturabhängigkeit der extrahierten Werte des charakteristischen Magnetfelds der inelastischen Streuung $B_i(T)$; Berechnung des damit erwarteten Einflusses der QI auf die temperaturabhängige Änderung der spezifischen Leitfähigkeit $\Delta\sigma(T)$ und Abzug von dessen Beitrag von den Rohdaten; Beschreibung des korrigierten $\Delta\sigma(T)$ -Verlaufs mit Theorien der EEI und Bestimmung des Abschirmparameters ζ , welcher die gegenseitige Abschirmung der Elektronen bei der EEI beschreibt; Berechnung des damit erwarteten Einflusses der EEI auf die magnetfeldabhängige Änderung der spezifischen Leitfähigkeit $\Delta\sigma(B)$ und Abzug von dessen Beitrag von den Rohdaten. Diese Schritte werden mehrmals iterativ durchlaufen, sodass die Werte der charakteristischen Größen, die die beteiligten Effekte beschreiben, konvergieren. Die Berücksichtigung des temperaturabhängigen WL-WAL-Übergangs kann dabei von Relevanz sein. Die extrahierten Werte der Abschirmkonstante können durch Messung des temperaturabhängigen elektrischen Widerstands bei einem angelegten Magnetfeld B , das größer als das charakteristische Feld der inelastischen Streuung ist ($B > B_i$), unabhängig verifiziert werden.

Die Auswertung der Daten erfolgt dabei unter Beachtung der angenommenen Dimensionalitäten und jeweils gültigen Regime. Die Transportdaten der BaPbO₃-Monolagen können mit der Theorie nach Hikami, Larkin und Nagaoka (HLN) unter Erweiterung der finiten Schichtdicke verstanden werden. Es zeigt sich, dass diese unter Berücksichtigung des D'yakonov-Perel'-Spin-Relaxationsmechanismus äquivalent zur Theorie nach Iordanskii, Lyanda-Geller und Pikus (ILP) unter Annahme einer dreifachen Spinwindung beim Umlauf um die Fermifläche ist.

Der elektrische Transport mit und ohne senkrecht zur Filmebene angelegtem Magnetfeld kann konsistent über die implementierte Fitroutine beschrieben werden. Es ergibt sich bei allen Untersuchungen bis mindestens zu einer Temperatur von etwa 5 K eine $\ln(T)$ -Abhängigkeit der um den QI-Beitrag bereinigten temperaturabhängigen Änderungen der spezifischen Leitfähigkeit. In diesem Temperaturbereich ist die Be-

dingung der zweidimensionalen EEI erfüllt, sodass die thermische Diffusionslänge l_{th} kleiner als die (elektrisch aktive) Schichtdicke t (bzw. t_{el}) ist. Aus derjenigen Temperatur T_{th} , oberhalb derer die $\ln(T)$ -Abhängigkeit nicht mehr gegeben ist, kann der Wert der Diffusionskonstante abgeschätzt werden. Bei Dünnschichtproben auf SrTiO₃-Substraten stimmen diese Werte mit den klassisch abgeschätzten Werten überein. Bei Dünnschichtproben auf MgO-Substraten weichen die beiden Werte mit zunehmender Schichtdicke weiter voneinander ab, was auf die im Verhältnis zur Filmschichtdicke t kleinere elektrisch aktive Schichtdicke t_{el} zurückzuführen ist. Diese Beobachtung wird durch die Beschreibung der Magnetotransportdaten dickerer BaPbO₃-Monolagen auf MgO-Substraten gestützt, da diese mit dünneren Schichtdicken besser gelingt. Verlässliche Werte für t_{el} ergeben sich oberhalb von etwa 10 nm bis 15 nm und sind in etwa halb so groß wie die Filmschichtdicke.

Der Vergleich von Transportstreuzeit τ_{tr} und Spin-Bahn-Streuzeit τ_{so} deutet sowohl den D'yakonov-Perel'- als auch den Elliott-Yafet-Mechanismus als vorherrschende Spinrelaxationsmechanismen an, wobei ersterer tendenziell mit abnehmender Schichtdicke und zunehmender mittlerer freier Weglänge an Relevanz gewinnt. An allen Messreihen zeigen sich mit zunehmender Schichtdicke t kleinere Werte für die charakteristischen Magnetfelder der Spin-Bahn-Streuung B_{so} und der inelastischen Streuung B_i sowie der Koeffizienten β und γ , die den $B_i(T)$ -Verlauf algebraisch beschreiben. Dabei nimmt der Einfluss von Elektron-Phonon-Streuungen auf die inelastische Streuung mit zunehmender Schichtdicke zu.

Im Unterschied zu BaPbO₃-Monolagen auf SrTiO₃ ergeben sich bei Monolagen auf MgO größere Werte für das charakteristische Feld B_{so} und für die Abschirmkonstante ζ , wobei mit $\zeta > 1$ die extrahierten Werte der Abschirmkonstante systematisch die theoretische Grenze von 1 überschreiten. Letztgenanntes wird in der Literatur mit einer starken Spin-Bahn-Streureate sowie topologischen Isolatoren in Zusammenhang gebracht.

Ein anisotroper Magnetwiderstand (MR) deutet auf einen zweidimensionalen Charakter in den von mir untersuchten Dünnschichtproben hin, wobei sich mit abnehmender Schichtdicke das Maximum des MR im parallelen Magnetfeld zu höheren Werten und Magnetfeldern verschiebt. Die Theorie nach Maekawa-Fukuyama kann den abfallenden MR bei hohen Magnetfeldern im parallelen Magnetfeld nicht erklären. Über Einbeziehung des Aharanov-Bohm-Effekts lassen sich vor allem dünne BaPbO₃-Filme auf MgO-Substraten mit einer hohen Anpassungsgüte beschreiben. Dabei extrahierte Werte für B_{so} und B_i weichen von denjenigen leicht ab, die unter senkrechten Magnetfeldern gewonnen werden. Die Messergebnisse unter parallel zur Filmoberfläche einwirkendem Magnetfeld sind von der elektrischen Stromrichtung weitestgehend unabhängig. Ist das Magnetfeld weder senkrecht noch parallel zur Filmoberfläche

ausgerichtet, so ist eine Beschreibung der Daten über Projektionen aus senkrechten und parallelen Beiträgen nicht möglich.

Zuletzt habe ich mich mit den BaPbO₃-BaBiO₃-Bilagen befasst, in welchen eine BaBiO₃-Schicht zwischen dem Substrat und dem BaPbO₃-Film aufgewachsen wird. Meine Untersuchungen knüpfen an [D1, D2] an, wo durch Variation der BaPbO₃-Schichtdicke auf einer konstanten BaBiO₃-Schicht in einer unstrukturierten BaPbO₃-BaBiO₃-Bilage zweidimensionale Supraleitung mit einer kritischen Temperatur von $T_c \approx 4$ K gefunden wurde. Erste Versuche, den elektrischen Transport der unstrukturierten BaPbO₃-BaBiO₃-Bilage zu beschreiben, sind zum Teil widersprüchlich [D2]. Um das Tieftemperaturverhalten der BaPbO₃-BaBiO₃-Bilage besser zu verstehen, habe ich im Rahmen dieser Arbeit diese BaPbO₃-BaBiO₃-Bilagen mit identischen charakteristischen Größen reproduziert und den elektrischen Transport in nun strukturierten Proben vermessen. Meine Untersuchungen ermöglichen eine Überprüfung der Regime und Dimensionalität, welche im relevanten Temperaturbereich ein komplexes Zusammenspiel aus EEI, QI und SLF andeuten, wobei möglicherweise gleich mehrere Quanteneffekte temperaturabhängig einen dimensional Übergang durchlaufen (vgl. Abb. 6.29). Eine konsistente Beschreibung der Daten wird dadurch und aufgrund von Limitierungen der Theorien sowie unterschiedlichen Anpassungsmöglichkeiten erschwert.

Mit der Idee einerseits die Topographie an der (supraleitenden) Grenzfläche zu manipulieren und andererseits einen Einfluss auf die Sauerstoffbeladung der Grundschicht zu nehmen, habe ich im Rahmen dieser Arbeit die BaPbO₃-BaBiO₃-Grenzfläche genauer studiert und deren strukturelle Eigenschaften modifiziert. Dabei stellt sich heraus, dass der Einfluss der BaBiO₃-Schichtdicke sowohl auf die mechanischen Verspannungen im BaPbO₃ als auch auf die Sprungtemperatur groß ist. In den meisten Fällen wird die supraleitende Phase zu tieferen Temperaturen verschoben. Ein zusätzlich eingeführter, zeitlich begrenzter Aufheizprozess der BaBiO₃-Grundschicht bei unterschiedlichen Sauerstoffhintergrunddrücken hat einen erheblichen Einfluss auf die elektronischen Transporteigenschaften der BaPbO₃-BaBiO₃-Bilage, wobei in den meisten Fällen die supraleitende Phase unterdrückt wird. Interessanterweise lassen sich die nicht-supraleitenden Bilagen dennoch nicht alleinig mit einem Zusammenspiel aus EEI und QI beschreiben, was auf eine zunehmende Komplexität durch die zusätzliche Zwischenschicht hindeutet.

Ausblick und offene Fragestellungen

Auf der Suche nach einem theoretisch vorhergesagten symplektischen Metall-Isolator-Übergang bleibt das Material BaPbO₃ aufgrund seiner hohen Ladungsträgerdichte und starken Spin-Bahn-Kopplung weiterhin ein hoffnungsvoller Kandidat. Hierfür

sind große Werte von B_{so} , eine Reduzierung der Werte von B_i und eine Verbesserung der Abschirmung der EEI erstrebenswert. Experimentell interessant könnte dabei die Manipulation der Streuzentrendichte sein. Man könnte beispielsweise Fremdatome, insbesondere solche, die als starke Spin-Bahn-Streuer bekannt sind (bspw. Gold), einbringen. Alternativ könnte die Sauerstoffbeladung der Dünnschichtproben variiert werden. Hierzu wurden bereits im Rahmen der von mir mitbetreuten Masterarbeit [M3] Vorarbeiten geleistet, wobei der Hintergrunddruck während des Annealings variiert wurde. Während dies einen großen Einfluss auf die Absolutwerte des elektrischen Widerstands hat, konnte im Rahmen dieser Arbeit eine wesentliche Einflussnahme auf die Werte von B_{so} , B_i oder ζ nicht gefunden werden. Daran anschließende Experimente könnten den Einfluss der Zeitdauer oder der Temperatur während des Annealings untersuchen.

Des Weiteren ist für die Suche des symplektischen Übergangs sowie zur Untersuchung topologischer Eigenschaften die Modulation der Ladungsträgerdichte interessant. Auch hier habe ich bereits Vorarbeiten in Form von Feldeffektuntersuchungen geleistet, deren schematische Aufbauten in Abbildung 7.1 dargestellt sind. Die Feldeffektuntersuchungen zeigten leider hohe parasitäre Leckströme, die zwar durch Ionenätzen der Probenränder und Einbringen dickerer Isolationsschichten prinzipiell minimiert werden konnten, aber die Modulation der Ladungsträgerdichte nicht im gewünschten Umfang realisieren ließen. Auch werden durch den komplexen Aufbau der Proben die Oberflächenrauigkeiten und die Sauerstoffbeladung beeinflusst, was wiederum Auswirkungen auf den elektrischen Transport hat. Dennoch sind die Vorarbeiten vielversprechend für weitere Experimente. In Bezug auf die supraleitende Phase sind Untersuchungen des Feldeffekts ebenfalls interessant, da hiermit die zweidimensionale supraleitende Phase manipuliert und so ein supraleitender Feldeffekttransistor realisiert werden könnte.

Zudem zeigen die Untersuchungen von [D1] wie auch diejenigen dieser Arbeit, dass mechanische Verspannungen in der $BaPbO_3$ -Schicht die supraleitende Phase induzieren. Möglicherweise könnte ein ähnliches Maß an mechanischer Verspannung auch durch die Wahl eines entsprechenden Substrats oder einer weiteren Zwischenschicht induziert werden, und somit die supraleitende Phase auch ohne die hier verwendete $BaBiO_3$ -Zwischenschicht erreicht werden. Hierfür wäre ein Substrat oder eine Zwischenschicht mit gegebenenfalls von der (001)-Orientierung abweichende Oberflächennormale interessant, das bzw. die eine größere Gitterkonstante als die des $BaPbO_3$ -Kristalls hat.

Aus theoretischer Sicht wäre eine Erweiterung der Theorien zu größeren Magnetfeldern hilfreich. Sowohl die SLF als auch die EEI werden durch unterschiedliche Bedingungen auf vergleichsweise kleine Magnetfelder limitiert, sodass zum Teil die entsprechenden Signaturen der Quanteneffekte nicht erfasst werden können.

7 Zusammenfassung und Ausblick

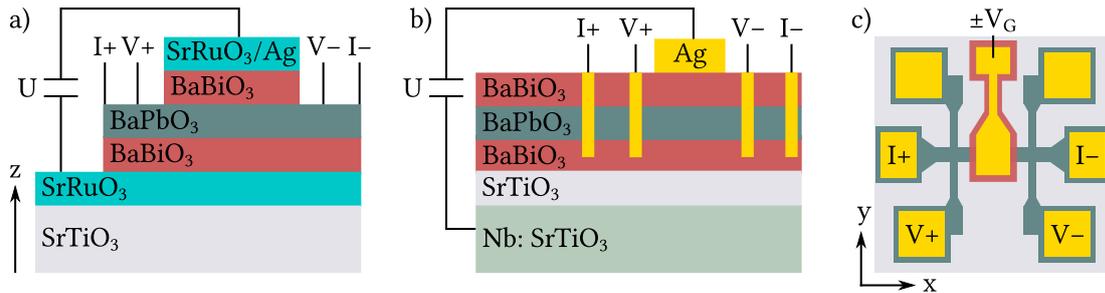


Abbildung 7.1: Realisierte, schematische Aufbauten zur möglichen Manipulation der Ladungsträgerdichte im BaPbO_3 - BaBiO_3 -System. Um ein möglichst hohes elektrisches Feld senkrecht zur Filmebene (entlang z -Richtung) zu erreichen, soll die Gate-Spannung direkt am zu untersuchenden Dünnsfilm anliegen. Hierfür kann entweder a) eine leitfähige Schicht mit einer ähnlichen Gitterkonstante wie der des SrTiO_3 -Substrats als unterste Schicht aufgewachsen werden (hier: SrRuO_3), oder b) Niob-dotiertes SrTiO_3 als Substrat verwendet werden, welches aufgrund seiner Dotierung elektrisch leitfähig ist. Letzteres kann durch eine zusätzliche homoepitaktisch gewachsene SrTiO_3 -Schicht bedeckt werden. Das zu untersuchende Dünnsfilmsystem muss beidseitig elektrisch isolierend auf das entsprechend präparierte Substrat aufgewachsen werden. Am Beispiel der hier gezeigten BaPbO_3 - BaBiO_3 -Bilagen kann BaBiO_3 als Isolationsschicht verwendet werden, für den Fall von Monolagen empfiehlt sich beispielsweise die Verwendung von SrTiO_3 . Der obere Gate-Kontakt kann wiederum aus SrRuO_3 oder aus Gold bestehen. Die Stacks wurden einerseits durch Photolithographie und Ionenätzen, andererseits durch definierte $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ -Schichten und anschließendem nasschemischen Ätzen präpariert. Bei allen durchgeführten Versuchen waren parasitäre Leckströme entlang der z -Richtung messbar, deren Stärke zwar durch Bearbeitung der Probenränder durch Ionenätzen und durch dickere Isolationsschichten verringert, jedoch nicht ganz unterdrückt werden konnte. c) Schematischer Messaufbau zur Untersuchung des Feldeffekts an strukturierten Proben. Der untere Gate-Kontakt wird hierbei auf die Unterseite der Probe gelegt. Die rote Fläche stellt (zur besseren Unterscheidung) eine SrTiO_3 -Schicht dar, ansonsten sind die Farben konsistent zu a) und b) gewählt.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass das BaPbO_3 -System weiterhin interessante Fragestellungen aufwirft. Mit dieser Arbeit leiste ich dabei einen wichtigen Beitrag zum tieferen Verständnis des BaPbO_3 -Systems, indem ich eine umfassende Auswertemethode des elektrischen Transports dünner Schichten anbiete, die unterschiedliche Quanteneffekte berücksichtigt und dabei deren gegenseitige Einflussnahme herausarbeitet. Mit dem vorgestellten Verfahren können dünne Filme mit ausgeprägter EEI und QI konsistent beschrieben werden.

A Anhang

A.1 Strukturelle Untersuchungen: Ergänzungen

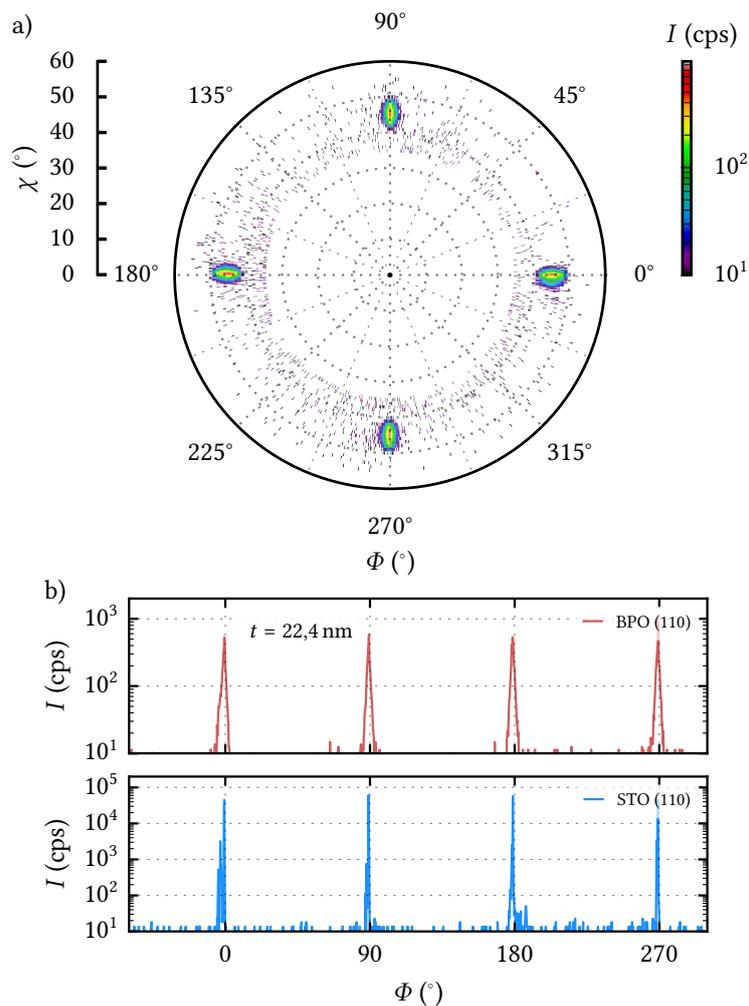


Abbildung A.1: Nachweis der Übernahme der lateralen kristallographischen Vorzugsrichtung aus Untersuchungen der Textur der (110)-Netzebenen eines 22,4-nm-dicken (60 LP) BaPbO₃-Films auf einem SrTiO₃-Substrat. a) Die Polfigur des Films zeigt eine vierzählige Rotationssymmetrie, wie es für einkristallines Wachstum zu erwarten ist. b) Die Φ -Scans von Film (rot) und Substrat (blau) bei $\chi = 45^\circ$ zeigen jeweils vier Maxima bei gleichen Positionen entlang der Kristallachsen. Die Halbwertsbreiten der Reflexe von Substrat und Film betragen $(0,32 \pm 0,07)^\circ$ bzw. $(0,90 \pm 0,42)^\circ$.

A.2 Elektronischen Transporteigenschaften: Ergänzungen

Diffusionskonstante

Die Bewegung von Ladungsträgern in einem durch Störstellen getriebenen System kann als diffusiver Prozess aufgefasst werden. Ein maßgeblicher Parameter ist dabei die Diffusionskonstante D mit deren Herleitung ich mich in diesem Kapitel befassen werde: Das erste Fick'sche Gesetz verbindet über die Diffusionskonstante D den Teilchenstrom j_T mit dem Gradienten der Teilchendichte n_T :

$$j_T = -D \frac{\partial n_T}{\partial r}. \quad (\text{A.1})$$

Bezogen auf die elektrische Stromdichte j_{el} geladener Teilchen mit der Ladung q folgt damit:

$$j_{\text{el}} = -qD \frac{\partial n_{\text{el}}}{\partial r}. \quad (\text{A.2})$$

Die partielle Ableitung der Ladungsträgerdichte n_{el} kann auch in Abhängigkeit der Energie E ausgedrückt werden:

$$\frac{\partial n_{\text{el}}}{\partial r} = \frac{\partial n_{\text{el}}}{\partial E} \cdot \frac{\partial E}{\partial r}. \quad (\text{A.3})$$

Dabei ist die Energie E die Energie, die die Ladungsträger mit der Ladung q im elektrischen Feld E_{el} erfahren:

$$E = q \int E_{\text{el}} dr. \quad (\text{A.4})$$

Im thermodynamischen Gleichgewicht sind die elektrischen Stromdichten des Drift- und Diffusionsstroms gleich groß:

$$j_{\text{el}}^{\text{drift}} = j_{\text{el}}^{\text{diff}}. \quad (\text{A.5})$$

Mit den Definitionen des Ohm'schen Gesetzes (Gl. 5.1), der elektrischen Stromdichte $j_{\text{el}}^{\text{drift}}$ (Gl. 5.2) und der Mobilität μ der Ladungsträger (Gl. 5.4) ergibt sich:

$$j_{\text{el}}^{\text{drift}} = qn_{\text{el}}\mu E_{\text{el}} \quad (\text{A.6})$$

und damit die folgende Relation:

$$j_{\text{el}} = -qD \frac{\partial n_{\text{el}}}{\partial r} = -qD \frac{\partial n_{\text{el}}}{\partial E} \cdot \frac{\partial E}{\partial r} = -q^2 D \frac{\partial n_{\text{el}}}{\partial E} E_{\text{el}} = qn_{\text{el}}\mu E_{\text{el}} \quad (\text{A.7})$$

Aus diesen Formelzusammenhängen lässt sich die Diffusionskonstante D folgendermaßen extrahieren:

$$D = -\frac{\sigma}{q^2 \frac{\partial n_{\text{el}}}{\partial E}} = -\frac{n_{\text{el}} q^2 \tau_{\text{tr}} / m_{\text{T}}}{q^2 \frac{\partial n_{\text{el}}}{\partial E}} = -\frac{\tau_{\text{tr}} n_{\text{el}}}{m_{\text{T}} \frac{\partial n_{\text{el}}}{\partial E}}. \quad (\text{A.8})$$

Nun ist ein Ausdruck für die Zustandsdichte an der Fermikante erforderlich. Die Anzahl N_{el} der elektronischen Zustände in einem d -dimensionalen Hyperkubus mit der Ausdehnung L kann über das Verhältnis der d -dimensionalen Fermikugel und dem Volumen eines elektronischen Zustands hergeleitet werden. Für Ladungsträger mit halbzahligen Spin gilt:

$$N_{\text{el}} = 2 \cdot \frac{V_d(k)|_{k_{\text{F}}}}{\left(\frac{2\pi}{L}\right)^d}. \quad (\text{A.9})$$

Dabei kann das Volumen $V_d(k)$ einer d -dimensionalen Kugel im Impulsraum mithilfe der Gamma-Funktion Γ beschrieben werden:

$$V_d(k) = \frac{\pi^{d/2}}{\Gamma(d/2 + 1)} k^d. \quad (\text{A.10})$$

Der Fermi-Wellenvektor k_{F} kann durch den Zusammenhang aus der Anzahl der Zustände und der Dimensionalität des Volumens einer Kugel allgemein folgendermaßen ausgedrückt werden:

$$k_{\text{F}} = \left(\frac{\Gamma(d/2 + 1)}{2 \cdot 2^{-d} \pi^{-d/2} n_{\text{el}}} \right)^{1/d}. \quad (\text{A.11})$$

Die Zustandsdichte

$$\frac{\partial n_{\text{el}}}{\partial E} = \frac{\partial n_{\text{el}}}{\partial k} \cdot \frac{\partial k}{\partial E} \quad (\text{A.12})$$

mit $n_{\text{el}} = N_{\text{el}}/L^d$ hängt nun von der Dispersion der Ladungsträger

$$E = \frac{\hbar^2}{2m_{\text{T}}} k^2 \quad (\text{A.13})$$

ab. Ein allgemeiner Ausdruck für die Zustandsdichte an der Fermikante lautet demnach:

$$\left. \frac{\partial n_{\text{el}}}{\partial E} \right|_{k_{\text{F}}} = \left. \frac{\partial n_{\text{el}}}{\partial k} \cdot \frac{\partial k}{\partial E} \right|_{k_{\text{F}}} = \left. \frac{\partial n_{\text{el}}}{\partial k} \right|_{k_{\text{F}}} \cdot \frac{m_{\text{T}}}{\hbar^2 k_{\text{F}}} = \frac{2}{(2\pi)^d} \cdot \frac{\pi^{d/2}}{\Gamma(d/2 + 1)} \cdot d k_{\text{F}}^{d-1} \cdot \frac{m_{\text{T}}}{\hbar^2 k_{\text{F}}}. \quad (\text{A.14})$$

Zusammen mit dem Ausdruck für die Diffusionskonstante aus Gleichung A.8 findet man somit folgendes Ergebnis für den Betrag der Diffusionskonstante:

$$D = \frac{\tau_{\text{tr}} n_{\text{el}}}{m_{\text{T}} \frac{\partial n_{\text{el}}}{\partial E}} = \frac{\tau_{\text{tr}}}{m_{\text{T}}} \cdot 2k^d \frac{2^{-d} \pi^{-d/2}}{\Gamma(d/2 + 1)} \cdot \frac{(2\pi)^d \Gamma(d/2 + 1)}{2} \frac{\hbar^2}{\pi^{d/2} m_{\text{T}} k_{\text{F}}^{d-2} d} = \frac{\tau_{\text{tr}} \hbar^2 k_{\text{F}}^2}{d m_{\text{T}}^2} = \frac{\tau_{\text{tr}} v_{\text{F}}^2}{d}. \quad (\text{A.15})$$

HLN-Theorie in dreidimensionalen Systemen

Für Systeme mit großen Werten für die Diffusionskonstante ($D > 2 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$) lässt sich die Quantenkorrektur im Dreidimensionalen folgendermaßen beschreiben [249, 251, 313, 314]:

$$\delta\sigma_{3D} = \frac{e^2}{\pi h} \sqrt{\frac{eB}{\hbar}} \left[\frac{3}{2} f_3\left(\frac{B}{B_2}\right) - \frac{1}{2} f_3\left(\frac{B}{B_3}\right) \right] \quad (\text{A.16})$$

mit

$$f_3(x) = \sum_{n=0}^{\infty} \left[2 \left(n + 1 + \frac{1}{x} \right)^{\frac{1}{2}} - 2 \left(n + \frac{1}{x} \right)^{\frac{1}{2}} - \left(n + \frac{1}{2} + \frac{1}{x} \right)^{-\frac{1}{2}} \right]. \quad (\text{A.17})$$

Dabei entsprechen B_2 und B_3 den bereits bekannten Magnetfeldern aus Gl. 5.45b bzw. 5.45c im EY-Regime. Allgemeinere Fälle werden in [251, 313, 315] diskutiert. Die Verläufe der magnetfeldabhängigen Änderungen der spezifischen Leitfähigkeit, die sich aus der zweidimensionalen HLN-Theorie unter Erweiterung finiter Schichtdicken (Gl. 5.56) ergeben, beschreiben im Grenzfall dicker Filme die dreidimensionalen Verläufe (s. Abb. A.2). Damit beschreibt Gleichung 5.56 den dimensionalen Übergang der Probe.

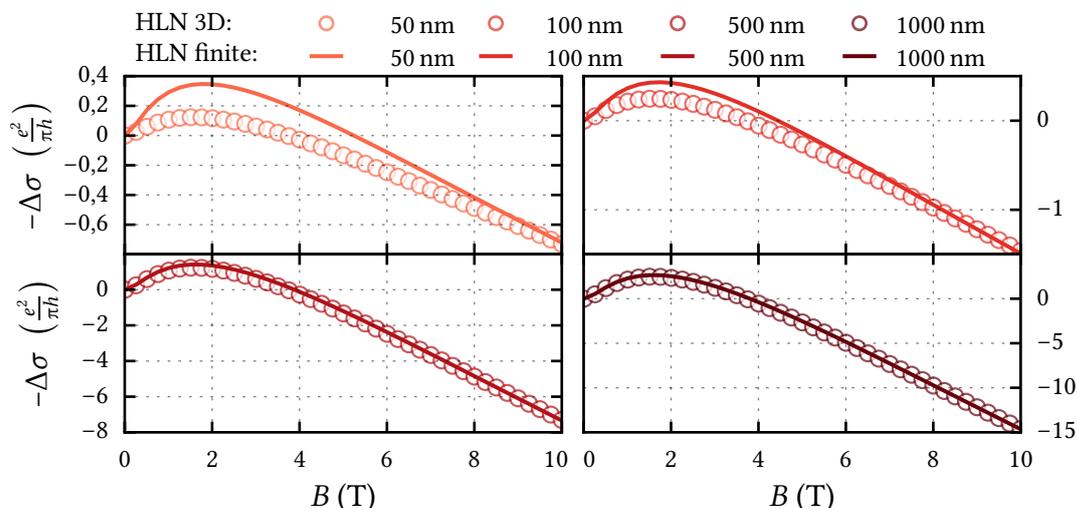


Abbildung A.2: Modellrechnungen der Schichtdickenabhängigkeit der magnetfeldabhängigen Änderung der (zweidimensionalen) spezifischen Leitfähigkeit. Mit zunehmender simulierter Schichtdicke geht die HLN-Theorie unter finiter Erweiterung (Gl. 5.56) in den berechneten Verlauf der dreidimensionalen HLN-Theorie (Gl. A.16) über. Die dreidimensionale Änderung der spezifischen Leitfähigkeit wird mit der Schichtdicke t in einen zweidimensionalen Betrag umgerechnet: $\Delta\sigma^{2D} = \Delta\sigma^{3D} t$. Weitere festgelegte Parameter lauten: $B_{s0} = 0,5 \text{ T}$, $B_i = 0,1 \text{ T}$ und $B_e \gg B$.

ILP-Theorie

In diesem Abschnitt sollen lediglich kurz die wichtigsten Gleichungen der ILP-Theorie [233] wiedergegeben werden. Eine ausführliche Aufbereitung ist beispielsweise in [D2] vorzufinden. In der ILP-Theorie geht der DP-Mechanismus direkt in die Auswertung der Cooperon-Diagramme (Leiterdiagramme) ein. Die Korrekturen der spezifischen Leitfähigkeit können wieder über die diagrammatische Störungstheorie berechnet werden. Als Ergebnis resultiert für die Änderung der spezifischen Leitfähigkeit [D2, 233, 316]:

$$\Delta\sigma^{\text{ILP}}(B) = -\frac{1}{2} \frac{e^2}{\pi h} \left[\mathcal{L}(B) - \mathcal{L}(0) + \Psi\left(\frac{B}{B_i}\right) \right], \text{ mit} \quad (\text{A.18})$$

$$\begin{aligned} \mathcal{L}(B) = & \frac{1}{a_0} + \frac{2a_0 + 1 + \frac{B_{\text{so}}}{B}}{a_1 \left(a_0 + \frac{B_{\text{so}}}{B}\right) - 2\frac{B'_{\text{so}}}{B}} \\ & + \sum_{n=1}^{n_{\text{max}}} \frac{3a_n^2 + 2a_n \frac{B_{\text{so}}}{B} - 1 - 2(2n+1) \frac{B'_{\text{so}}}{B}}{\left(a_n + \frac{B_{\text{so}}}{B}\right) a_{n-1} a_{n+1} - 2\frac{B'_{\text{so}}}{B} [(2n+1) a_n - 1]}, \end{aligned} \quad (\text{A.18a})$$

mit

$$a_n = n + \frac{1}{2} + \frac{B_i + B_{\text{so}}}{B}. \quad (\text{A.18b})$$

Dabei gibt es zwei unterschiedliche charakteristische Felder der Spin-Bahn-Streuung B_{so} und B'_{so} . Über deren Relation lassen sich zwei Spezialfälle ableiten: Ist $B'_{\text{so}} = 0$ T windet sich bei einem vollen Umlauf der Spin dreifach, bei $B_{\text{so}} = B'_{\text{so}}$ einfach. Im ersten Fall lässt sich die ILP-Theorie in den Ausdruck aus der HLN-Theorie im DP-Regime (Gl. 5.53) unter der Annahme dominierender elastischer Streuungen transferieren. Damit ergibt sich [D2, 233, 316]:

$$\Delta\sigma_3^{\text{ILP}}(B) = \frac{e^2}{\pi h} \left[\Psi\left(\frac{B}{B_{\text{so}} + B_i}\right) - \frac{1}{2} \Psi\left(\frac{B}{B_i}\right) + \frac{1}{2} \Psi\left(\frac{B}{2B_{\text{so}} + B_i}\right) \right]. \quad (\text{A.19})$$

Unter einfacher Spinwindung lässt sich die Gleichung A.18 nach Punnose [317] vereinfachen:

$$\begin{aligned} \Delta\sigma_1(B) = & \frac{1}{2} \frac{e^2}{\pi h} \left[\sum_{s=0,\pm 1} u_s \psi\left(\frac{1}{2} + \frac{B_i}{B} - v_s\right) - \psi\left(\frac{1}{2} + \frac{B_i}{B}\right) \right. \\ & \left. - 2 \ln\left(\frac{B_i}{B}\right) + \frac{4B^2}{4(B_{\text{so}} + B_i)^2 - B^2} + C \right], \text{ mit} \end{aligned} \quad (\text{A.20})$$

$$C = -2 \ln\left(1 + \frac{B_{\text{so}}}{B_i}\right) - \ln\left(a + \frac{2B_{\text{so}}}{B_i}\right) + \frac{8}{\sqrt{7 + 16 \frac{B_i}{B_{\text{so}}}}} \cos^{-1}\left(\frac{\left(\frac{2B_i}{B_{\text{so}}}\right) - 1}{\sqrt{\left[\left(\frac{2B_i}{B_{\text{so}}}\right) + 3\right]^2 - 1}}\right), \quad (\text{A.21})$$

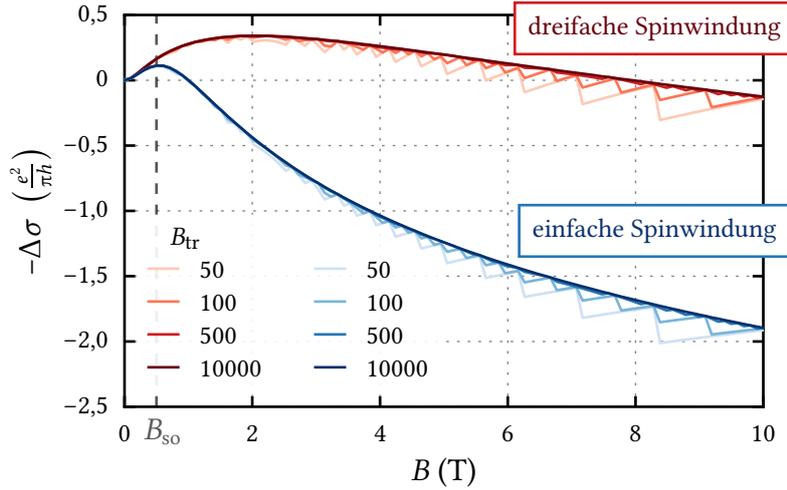


Abbildung A.3: Magnetfeldabhängige Änderung der spezifischen Leitfähigkeit, beschrieben nach der ILP-Theorie. Mit $B_{so} = B'_{so}$ resultieren durch die Gleichung A.18 die blau gefärbten Verläufe. Diese entsprechen einer Einfach-Windung des Spins um die Fermifläche. Dessen Verlauf unterscheidet sich oberhalb von B_{so} deutlich von dem unter Dreifach-Spinwindung ($B'_{so} = 0$, rot). Dabei wurden $B_{so} = 0,5$ T und $B_i = 0,1$ T gewählt. Die unterschiedliche Farbstärken repräsentieren die unterschiedliche Wahl von B_{tr} und sind in der Legende zugeordnet. Zu sehen ist, dass die Kurven schnell konvergieren. Der Verlauf der Dreifach-Spinwindung (rot) entspricht dem der HLN-Theorie im DP-Regime (Gl. A.19).

$$u_s = \frac{3v_s^2 + 4v_s \left(\frac{B_{so}}{B}\right) + 5 \left(\frac{B_{so}}{B}\right)^2 + 4 \left(\frac{B_i}{B}\right) \left(\frac{B_{so}}{B}\right) - 1}{\prod_{s' \neq s} (v_s - v_{s'})}, \quad (\text{A.22})$$

$$v_s = 2\delta \cos \left[\theta - \frac{2\pi}{3} (1 - s) \right], \quad (\text{A.23})$$

$$\delta = \sqrt{\frac{1 - 4 \left(\frac{B_i}{B}\right) \left(\frac{B_{so}}{B}\right) - \left(\frac{B_{so}}{B}\right)^2}{3}} \quad \text{und} \quad (\text{A.24})$$

$$\theta = \frac{1}{3} \cos^{-1} \left[- \left(\frac{B_{so}}{B\delta}\right)^3 \left(1 + \frac{2B_i}{B_{so}}\right) \right]. \quad (\text{A.25})$$

Die unterschiedlichen Auswirkungen auf die magnetfeldabhängige Änderung der spezifischen Leitfähigkeit unter einfacher sowie dreifacher Spinwindung sind in Abbildung A.3 schematisch aufgezeigt. Während sich die Kurven bei niedrigen Magnetfeldern bis zum Wert von B_{so} sehr ähneln, reagiert die einfach-Spinwindung wesentlich stärker auf stärkere Magnetfelder. Die beiden Verläufe bilden die Grenzfälle der ILP-Theorie (Gl. A.18).

Maekawa-Fukuyama

In den Theorien von Maekawa und Fukuyama (MF) [244] wird der zusätzliche Effekt der Zeeman-Aufspaltung aufgrund eines externen Feldes auf die QI untersucht. Da

die Zeeman-Aufspaltung rein von der Stärke des Magnetfelds, nicht aber von dessen Orientierung abhängt, ist ein Einfluss auch in einem parallel zur Filmoberfläche angelegten Magnetfeld zu erwarten. Doch auch bei der Beschreibung des senkrechten Falls ändert sich die Änderung der spezifischen Leitfähigkeit damit zu [D2]:

$$\Delta\sigma_{\perp}^{\text{MF}}(B_{\perp}) = \frac{e^2}{\pi h} \left\{ \Psi \left(\frac{2B_{\text{so},x} + 2B_{\text{so},z} + B_i}{B_{\perp}} \right) - \frac{1}{2} \ln \left(\frac{4B_{\text{so}}^x + B_i}{B_i} \right) + \frac{1}{2\sqrt{1-\gamma_{\perp}}} \left[\psi \left(\frac{1}{2} + \frac{2B_{\text{so},x}(1 + \sqrt{1-\gamma_{\perp}}) + B_i}{B_{\perp}} \right) - \psi \left(\frac{1}{2} + \frac{2B_{\text{so}}^x(1 - \sqrt{1-\gamma_{\perp}}) + B_i}{B_{\perp}} \right) \right] \right\}, \quad (\text{A.26})$$

$$\gamma_{\perp} = \gamma_{\perp}(B_{\perp}) = \left(\frac{g\mu_B}{4eD} \frac{B_{\perp}}{2B_{\text{so}}^x} \right)^2, \quad (\text{A.26a})$$

mit dem Landé-Faktor g , der Diffusionskonstante D , der Elementarladung e sowie dem Bohrschen Magneton μ_B . Im parallelen Magnetfeld ergibt sich für die Änderung der spezifischen Leitfähigkeit [D2]:

$$\Delta\sigma_{\parallel}^{\text{MF}}(B_{\parallel}) = \frac{e^2}{\pi h} \left[\frac{1}{2\sqrt{1-\gamma_{\parallel}}} \ln \left(\frac{B_i + (B_{\text{so},x} + B_{\text{so},z})(1 + \sqrt{1-\gamma_{\parallel}})}{B_i + (B_{\text{so},x} + B_{\text{so},z})(1 - \sqrt{1-\gamma_{\parallel}})} \right) - \frac{1}{2} \ln \left(1 + \frac{2B_{\text{so},x} + 2B_{\text{so},z}}{B_i} \right) \right], \quad (\text{A.27})$$

$$\gamma_{\parallel} = \gamma_{\parallel}(B_{\parallel}) = \left(\frac{g\mu_B}{4eD} \frac{B_{\parallel}}{B_{\text{so}}^x + B_{\text{so}}^z} \right)^2. \quad (\text{A.27a})$$

Mit diesem allgemeinen Ausdruck kann nun wieder sowohl der DP-Mechanismus über $2B_{\text{so},x} = B_{\text{so}}$ und $B_{\text{so},z} = 0$ als auch der EY-Mechanismus über $3B_{\text{so},x} = 3B_{\text{so},z} = B_{\text{so}}$ berücksichtigt werden.

Umrechnung des MR

Mit dem Ausdruck $\Delta\sigma(B) = \sigma(B) - \sigma(0)$ lässt sich der Magnetotransport folgendermaßen umschreiben:

$$\begin{aligned} \text{MR} &= \frac{R(B) - R(0)}{R(0)} = \frac{R_s(B) - R_s(0)}{R_s(0)} = \frac{\rho(B) - \rho(0)}{\rho(0)} = \frac{\rho(B)}{\rho(0)} - 1 \\ &= \frac{\sigma(0)}{\sigma(B)} - 1 = \frac{\sigma(0)}{\sigma(0) + \Delta\sigma(B)} - 1 = \frac{1}{1 + \frac{1}{\sigma(0)}\Delta\sigma(B)} - 1 \\ &= \frac{1}{1 + \rho(0)\Delta\sigma(B)} - 1, \end{aligned} \quad (\text{A.28})$$

wobei die 0 jeweils vom Magnetfeld unabhängige Beiträge indiziert. Der Parameter R beschreibt den Widerstand, R_s den Schichtwiderstand, ρ den spezifischen Widerstand, σ die spezifische Leitfähigkeit und $\Delta\sigma(B)$ dessen magnetfeldabhängige Änderung, die beispielsweise durch Quanteneffekte verursacht werden.

A.3 Experimentellen Untersuchungen: Ergänzungen

Klassische Leitfähigkeit – Namba-Fuchs

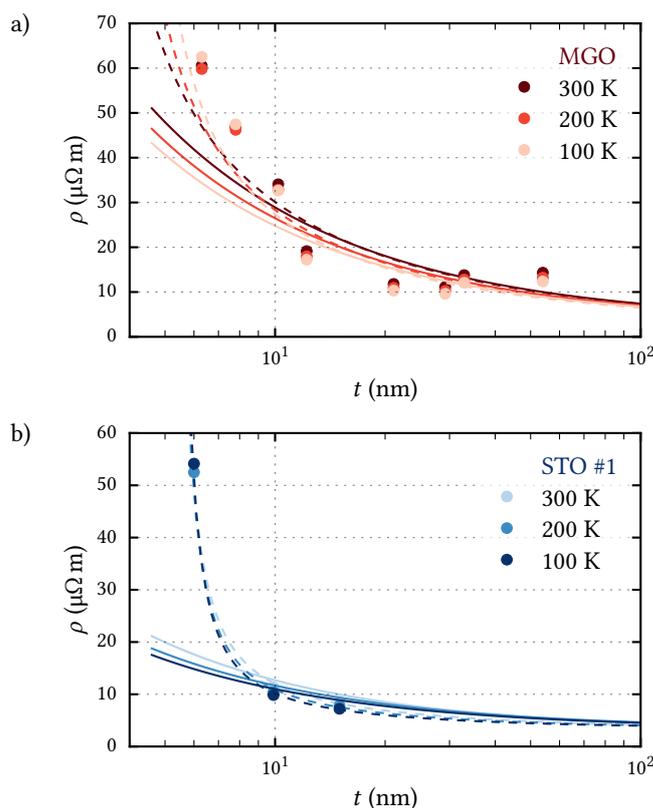


Abbildung A.4: Einfluss der Grenzfläche nach Namba-Fuchs auf den spezifischen elektrischen Widerstand von $BaPbO_3$ -Dünnschichtproben der Datenreihe **a)** MGO und **b)** STO #1. Der spezifische Widerstand ρ bei verschiedenen Temperaturen ist jeweils gegen die aus XRR-Messungen bekannte $BaPbO_3$ -Schichtdicke t aufgetragen. Durchgezogene Linien zeigen jeweils die beste Anpassung aus der Auswertung nach Fuchs mit Gleichung 5.17, gestrichelte Linien nach Namba-Fuchs mit Gleichung 5.19. Die Anpassungen gelingen durch die zusätzliche Modulation der Oberflächentopographie besser, es ergeben sich jedoch teilweise physikalisch nicht sinnvolle Werte, wie beispielsweise eine mittlere freie Weglänge von $l_{mfp} > 1 \mu m$ oder eine Spekularität von $p \approx 0$. Als Wert für den spezifischen Widerstand bei $t \rightarrow \infty$ (Bulk-Widerstand) wird für die gezeigte Anpassung der Literaturwert aus [99] mit $3,5 \mu\Omega m$ angenommen.

Ausschluss des Kondo-Effekts

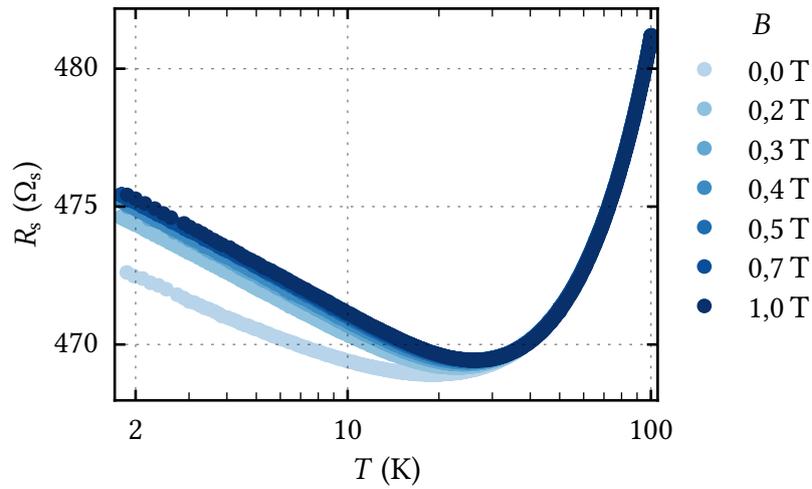


Abbildung A.5: Temperaturabhängigkeit des Schichtwiderstands als Funktion eines äußeren Magnetfelds einer 15-nm-dicken $BaPbO_3$ -Dünnschichtprobe auf $SrTiO_3$. Der temperaturabhängige Verlauf des Schichtwiderstands ändert sich durch Anlegen eines äußeren Magnetfelds senkrecht zur Filmebene bei tiefen Temperaturen signifikant. Die Erhöhung des elektrischen Widerstands durch das äußere Magnetfeld sättigt für hohe Magnetfelder. Diese Abhängigkeit vom Magnetfeld kann durch die Unterbindung der QI bei kleinen Magnetfeldern verstanden werden. Da diese bei größeren Magnetfeldern keinen weiteren Einfluss auf den Schichtwiderstand haben, ist der Kondo-Effekt auszuschließen.

Ablaufdiagramm der selbstkonsistenten Fitroutine

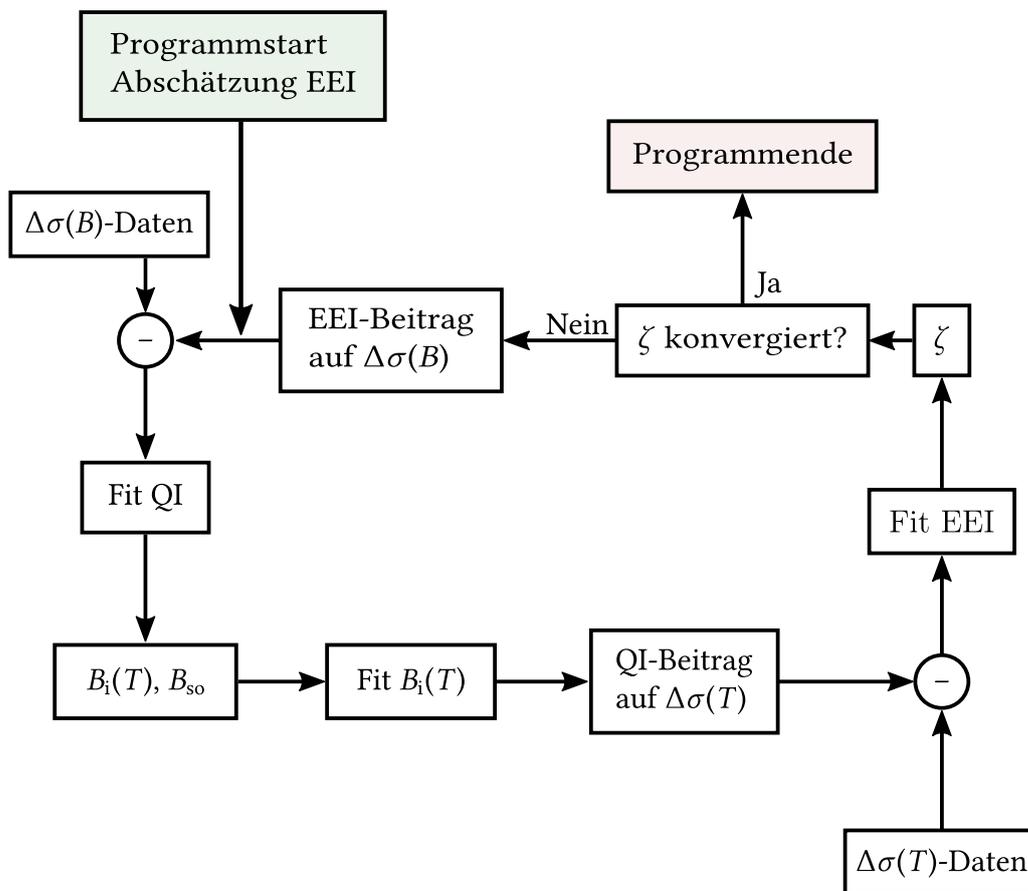


Abbildung A.6: Schematisches Ablaufdiagramm der selbstkonsistenten Fitroutine, die im Rahmen dieser Arbeit in Python implementiert wurde. Ausgehend von einem geschätzten bzw. vernachlässigten EEI-Beitrags auf die magnetfeldabhängige Änderung der spezifischen Leitfähigkeit $\Delta\sigma(B)$ (bei verschiedenen Temperaturen) wird dieser von den Rohdaten abgezogen. Die um den EEI-Beitrag bereinigten $\Delta\sigma(B)$ -Daten werden mit Theorien der QI angepasst, woraus sich die charakteristischen Felder B_i und B_{so} ergeben. Aus diesen Analysen bei verschiedenen Temperaturen ergibt sich eine Temperaturabhängigkeit von B_i , die mathematisch beschrieben werden kann. Hieraus lässt sich der Betrag der QI auf die temperaturabhängige Änderung der spezifischen Leitfähigkeit $\Delta\sigma(T)$ ermitteln. Durch Abzug des Beitrags von den Rohdaten ergeben sich die um den QI-bereinigten $\Delta\sigma(T)$ -Daten, die wiederum mit Theorien der EEI angepasst werden können. Daraus kann der Abschirmparameter ζ bestimmt werden. Dieser wird auf Konvergenz geprüft. Falls diese nicht gegeben ist, wird auf Basis des bestimmten Wertes von ζ der Beitrag der EEI auf $\Delta\sigma(B)$ berechnet und die Iteration beginnt von vorne.

Selbstkonsistente Auswertung von BaPbO₃-Dünnschichten auf SrTiO₃-Substraten, Datenreihe STO #1

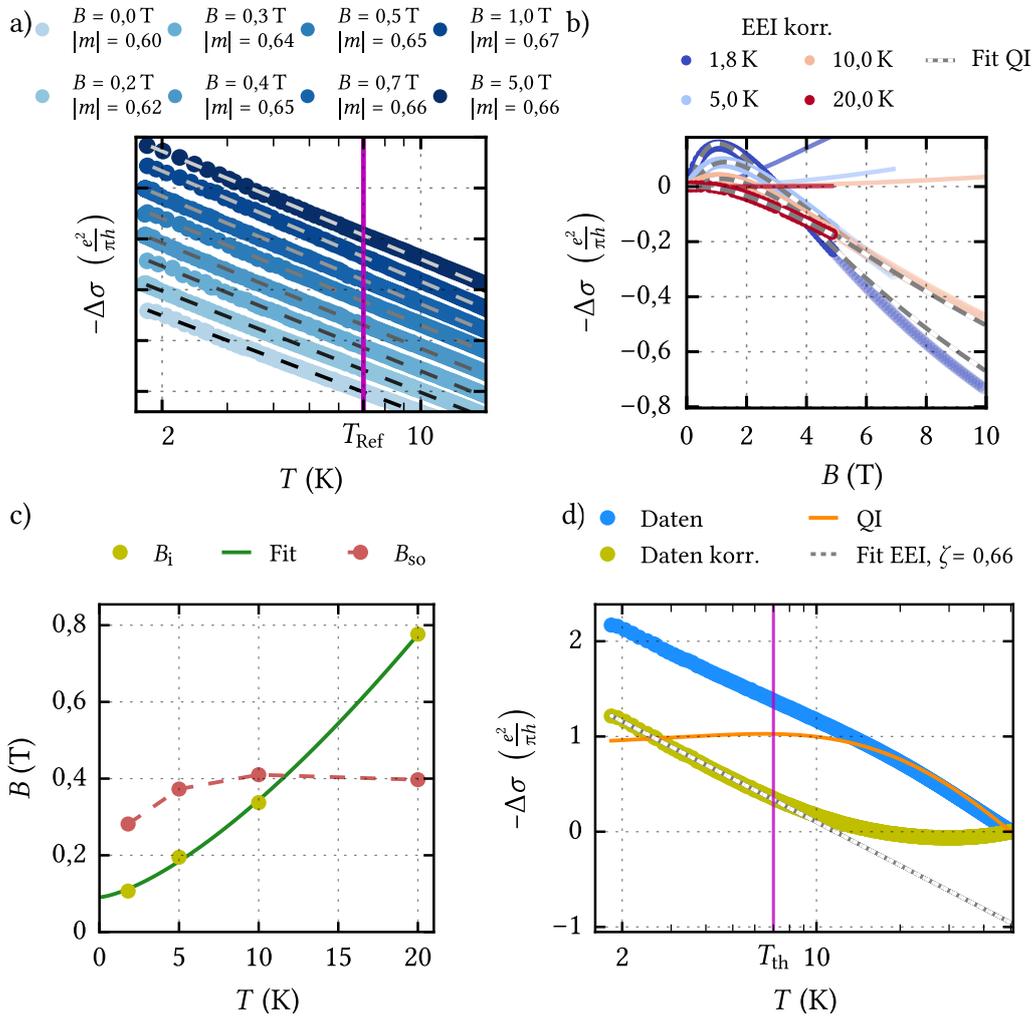


Abbildung A.7: Ergebnis der selbstkonsistenten Beschreibung des elektrischen Transports einer 6-nm-dicken BaPbO₃-Monolage, gewachsen auf SrTiO₃ (Datenreihe STO #1). a) Unabhängige Bestimmung des Wertes für die Abschirmkonstante ζ durch Analysen der temperaturabhängigen Änderung der (zweidimensionalen) spezifischen Leitfähigkeit bei unterschiedlichen (konstanten) Magnetfeldern B . Das Auswerteverfahren wird in Abbildung 6.17 genauer beschrieben. Für $B > B_i$ entspricht $|m| = \zeta$, was bei dieser Probe mit $B > 0,4\text{ T}$ und $|m| = 0,658 \pm 0,008$ gegeben ist. b) Ergebnis der Fitroutine nach dem in Abbildung 6.14 beschriebenen Verfahren. Durchgezogene Linien beschreiben jeweils die erwarteten EEI-Beiträge, die sich durch Auswertung von $\Delta\sigma(T)$ ergeben. Die gezeigten Daten wurden um diese Beiträge korrigiert und mit der HLN-Theorie angepasst. c) Temperaturabhängigkeit der aus b) extrahierten Werte von B_{so} und B_i , letztere Abhängigkeit kann algebraisch angepasst werden. d) Abzug des aus c) bestimmbaren QI-Beitrags auf $\Delta\sigma(T)$ und Bestimmung der Abschirmkonstante zu $\zeta = 0,66$ aus dem resultierenden Verlauf, nach dem in Abbildung 6.15 beschriebenen Verfahren. Die Temperatur T_{th} beschreibt die Temperatur, oberhalb derer die korrigierten $\Delta\sigma(T)$ -Daten nicht mehr mit einem zweidimensionalen EEI-Beitrag beschrieben werden können. Weitere Größen, die aus den Teilabbildungen b)-d) extrahiert wurden, sind in Tabelle 6.2 aufgelistet.

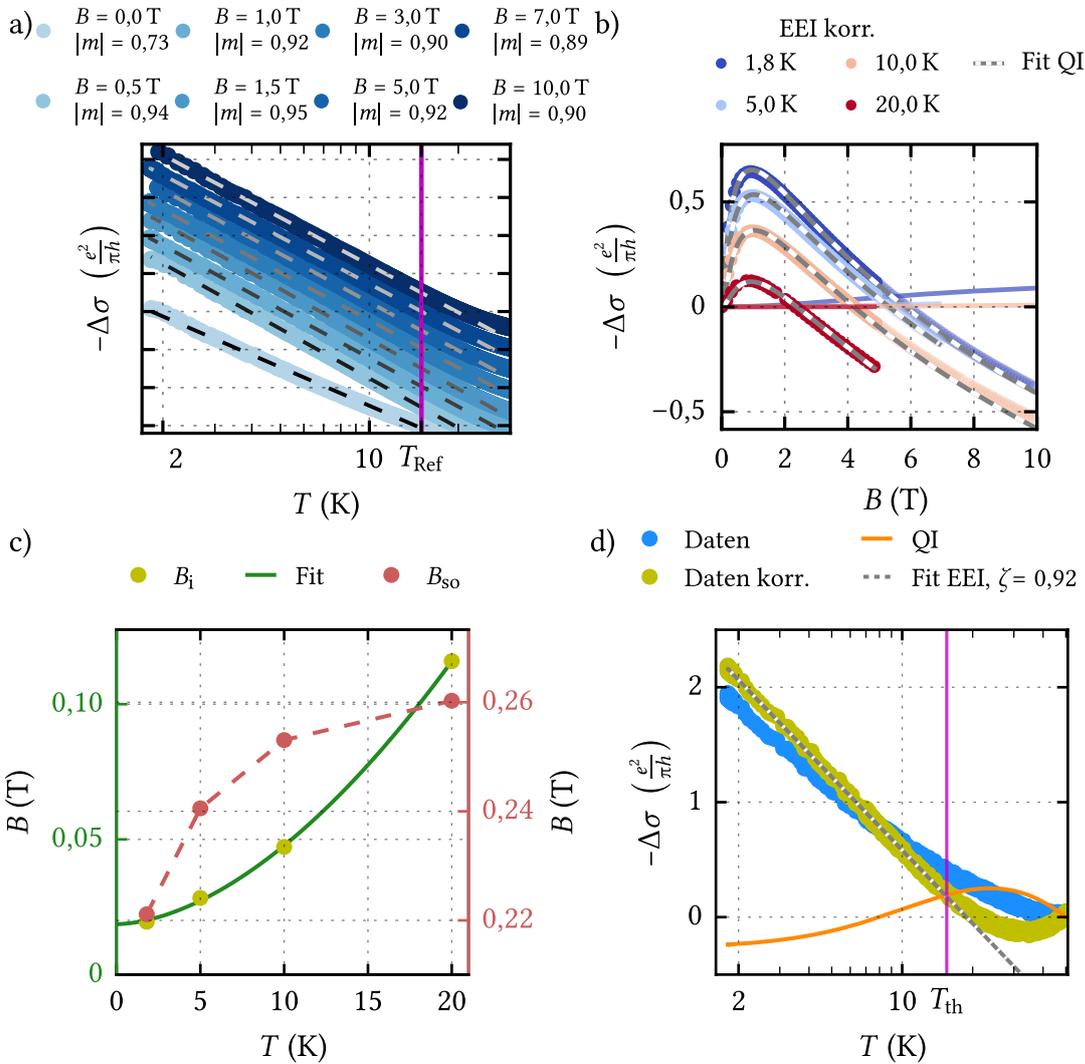


Abbildung A.8: Ergebnis der selbstkonsistenten Beschreibung des elektrischen Transports einer 9,9-nm-dicken BaPbO₃-Monolage, gewachsen auf SrTiO₃ (Datenreihe STO #1). Für eine ausführlichere Beschreibung wird auf die Bildunterschrift von Abbildung A.7 verwiesen. Extrahierte Werte der selbstkonsistenten Auswertung sind in Tabelle 6.2 aufgelistet.

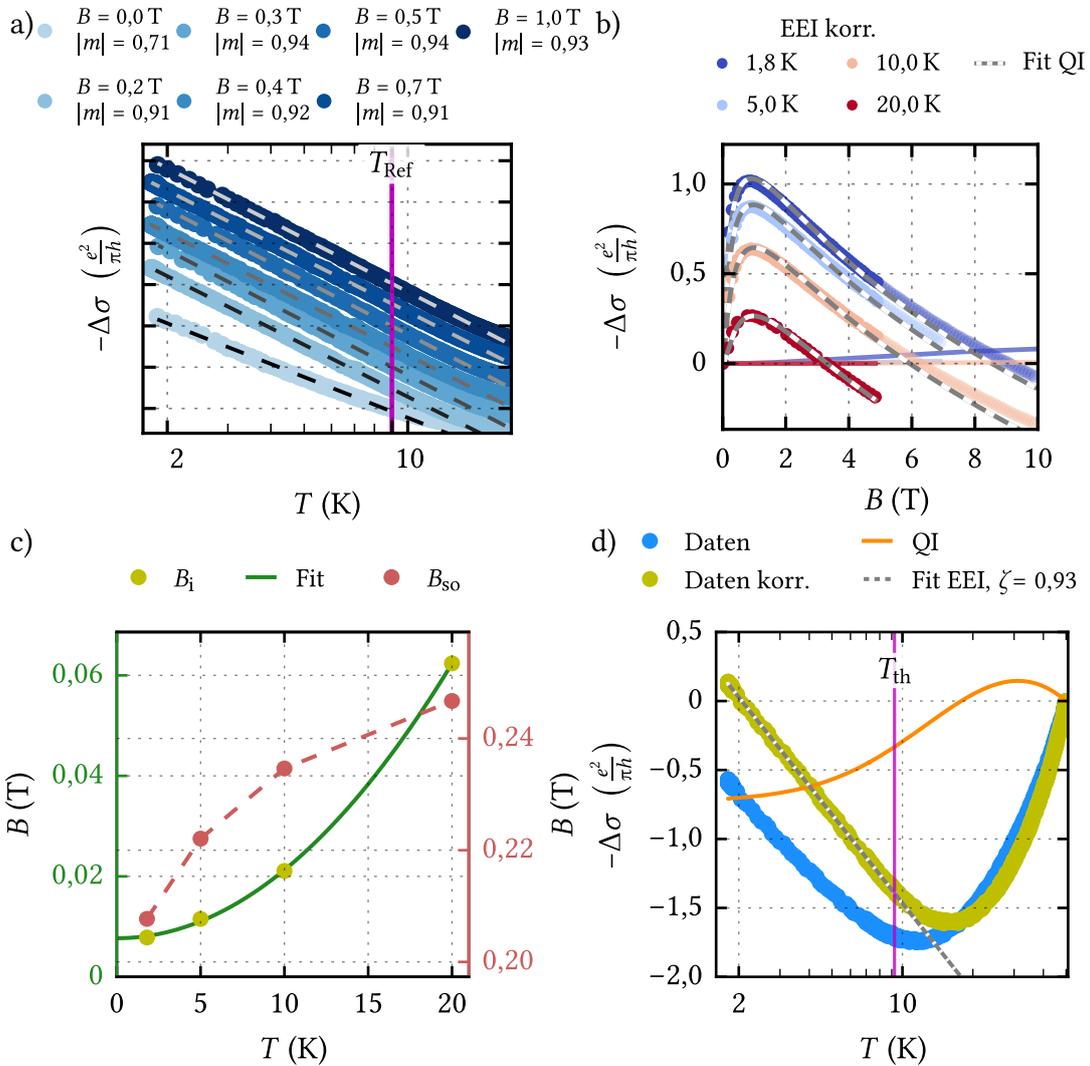


Abbildung A.9: Ergebnis der selbstkonsistenten Beschreibung des elektrischen Transports einer 15-nm-dicken BaPbO_3 -Monolage, gewachsen auf SrTiO_3 (Datenreihe STO #1). Für eine ausführlichere Beschreibung wird auf die Bildunterschrift von Abbildung A.7 verwiesen. Extrahierte Werte der selbstkonsistenten Auswertung sind in Tabelle 6.2 aufgelistet.

Selbstkonsistente Auswertung von BaPbO₃-Dünnschichten auf SrTiO₃-Substraten, Datenreihe STO #2

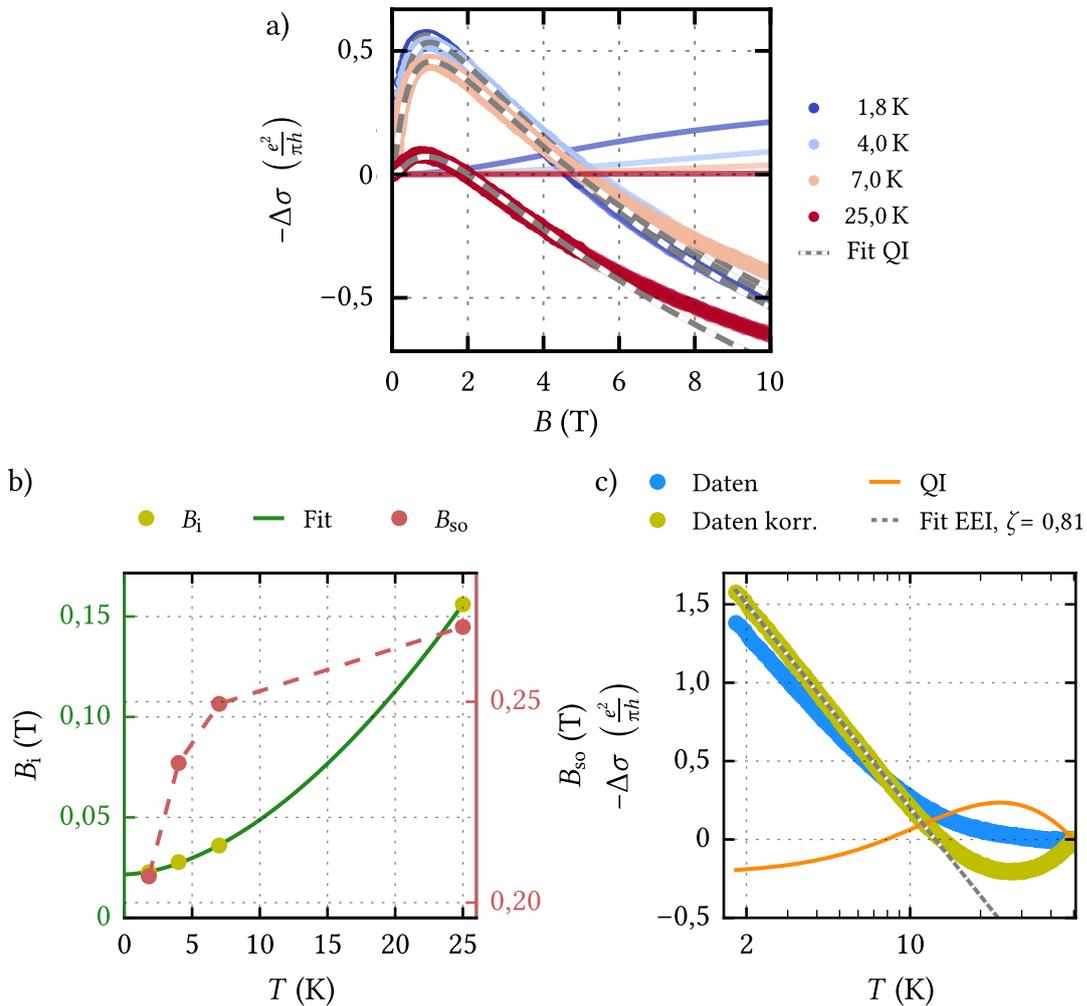


Abbildung A.10: Ergebnis der selbstkonsistenten Beschreibung des elektrischen Transports einer 4,8-nm-dicken BaPbO₃-Monolage, gewachsen auf SrTiO₃ (Datenreihe STO #2). **a)** Ergebnis der Fitroutine nach dem in Abbildung 6.14 beschriebenen Verfahren. Durchgezogene Linien beschreiben jeweils die erwarteten EEI-Beiträge, die sich durch Auswertung von $\Delta\sigma(T)$ ergeben. Die gezeigten Daten wurden um diese Beiträge korrigiert und mit der HLN-Theorie angepasst. **b)** Temperaturabhängigkeit der aus a) extrahierten Werte von B_{so} und B_i , letztere Abhängigkeit kann algebraisch angepasst werden. **c)** Abzug des aus b) bestimmbaren QI-Beitrags auf $\Delta\sigma(T)$ und Bestimmung der Abschirmkonstante zu $\zeta = 0,81$ aus dem resultierenden Verlauf, nach dem in Abbildung 6.15 beschriebenen Verfahren. Weitere Größen, die aus den Teilabbildungen a)-c) extrahiert wurden, sind in Tabelle 6.2 aufgelistet.

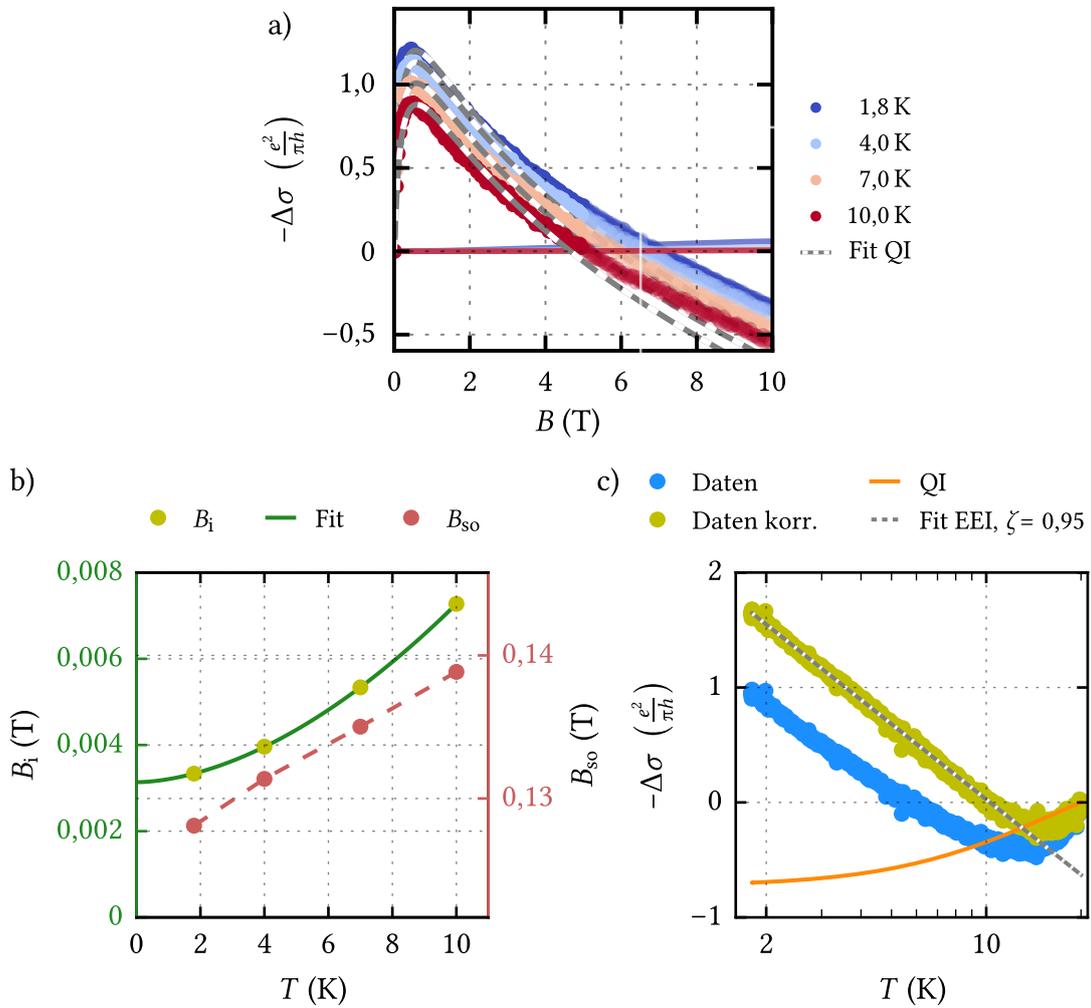


Abbildung A.11: Ergebnis der selbstkonsistenten Beschreibung des elektrischen Transports einer 21,3-nm-dicken BaPbO₃-Monolage, gewachsen auf SrTiO₃ (Datenreihe STO #2). Für eine ausführlichere Beschreibung wird auf die Bildunterschrift von Abbildung A.10 verwiesen. Extrahierte Werte der selbstkonsistenten Auswertung sind in Tabelle 6.2 aufgelistet.

Selbstkonsistente Auswertung von BaPbO₃-Dünnschichten auf MgO-Substraten

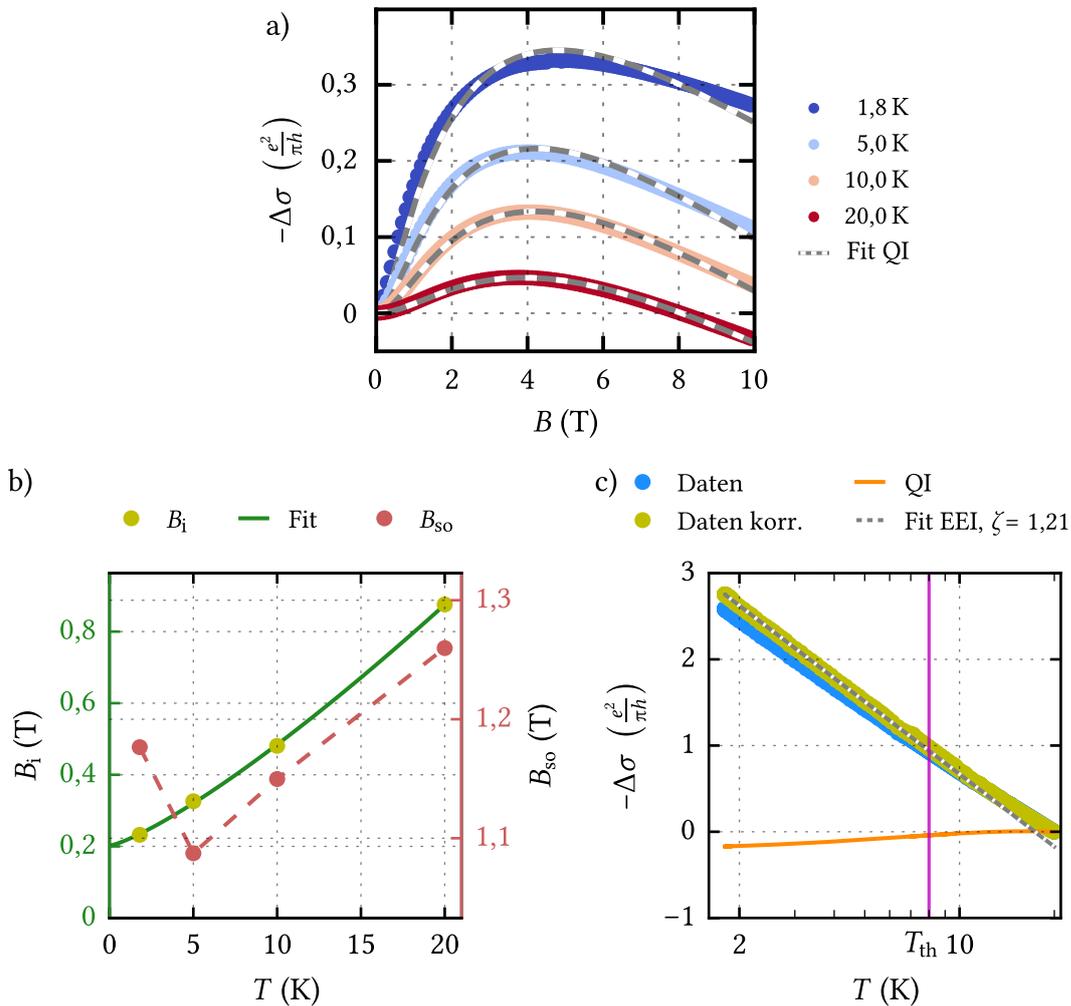


Abbildung A.12: Ergebnis der selbstkonsistenten Beschreibung des elektrischen Transports einer 6,3-nm-dicken BaPbO₃-Monolage, gewachsen auf MgO. **a)** Ergebnis der Fitroutine nach dem in Abbildung 6.14 beschriebenen Verfahren. Als Erweiterung werden bei Proben auf MgO-Substraten die elektrisch leitfähigen Schichtdicken als Anpassungsparameter freigegeben. Zudem wird ein Wert für die Abschirmkonstante von $\zeta > 1$ im $\Delta\sigma(T)$ als $\zeta = 1$ an $\Delta\sigma(B)$ weitergegeben, wodurch bei den meisten BaPbO₃-Monolagen auf MgO der Beitrag der EEI auf $\Delta\sigma(B)$ entfällt. **b)** Temperaturabhängigkeit der aus a) extrahierten Werte von B_{so} und B_i , letztere Abhängigkeit kann algebraisch angepasst werden. **c)** Abzug des aus b) bestimmaren QI-Beitrags auf $\Delta\sigma(T)$ und Bestimmung der Abschirmkonstante zu $\zeta = 1,21$ aus dem resultierenden Verlauf, nach dem in Abbildung 6.15 beschriebenen Verfahren. Die Temperatur T_{th} beschreibt die Temperatur, oberhalb derer die korrigierten $\Delta\sigma(T)$ -Daten nicht mehr mit einem zweidimensionalen EEI-Beitrag beschrieben werden können. Weitere Größen, die aus den Teilabbildungen a)-c) extrahiert wurden, sind in Tabelle 6.6 aufgelistet.

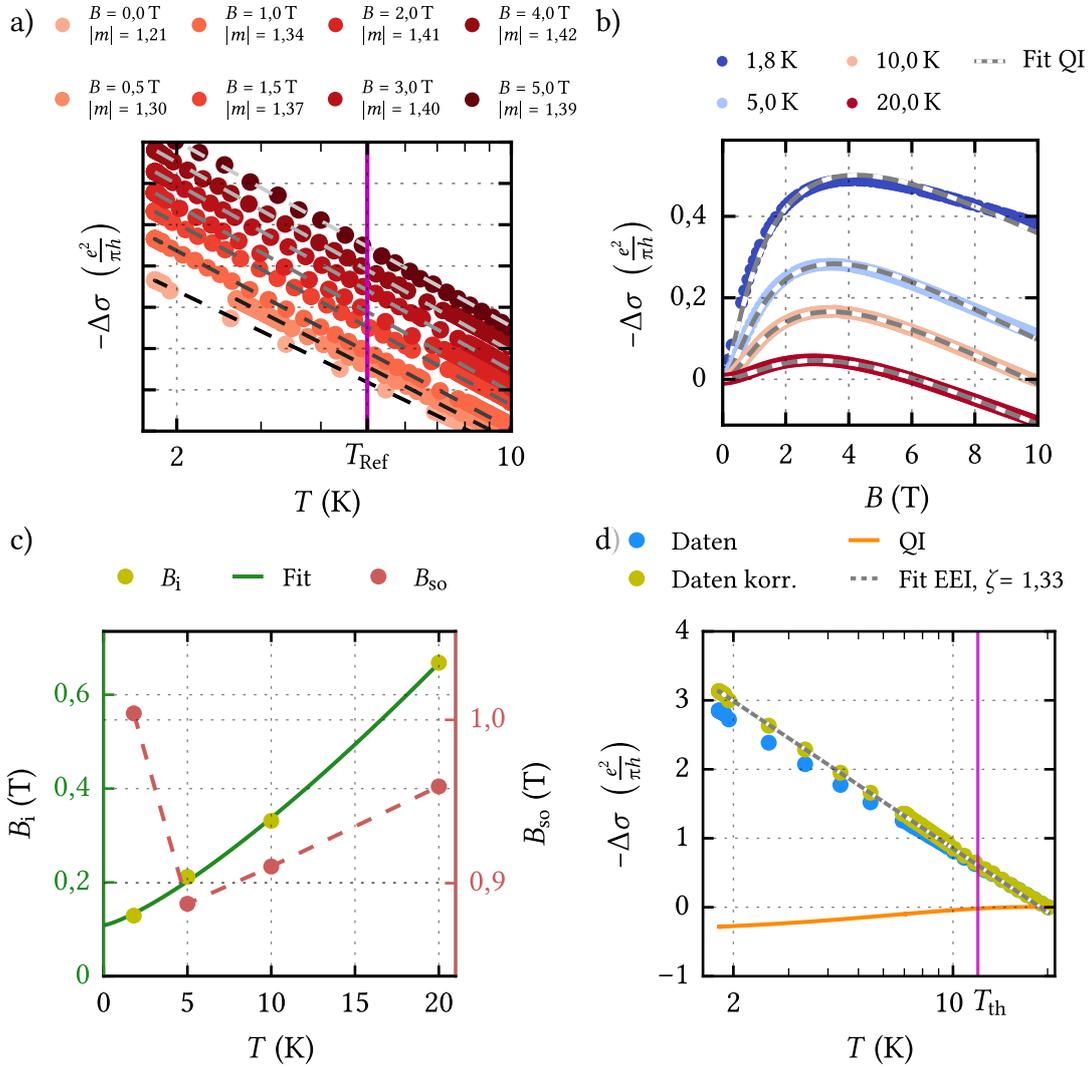


Abbildung A.13: Ergebnis der selbstkonsistenten Beschreibung des elektrischen Transports einer 7,8-nm-dicken BaPbO_3 -Monolage, gewachsen auf MgO . a) Unabhängige Bestimmung des Wertes für die Abschirmkonstante ζ durch Analysen der temperaturabhängigen Änderung der (zweidimensionalen) spezifischen Leitfähigkeit bei unterschiedlichen (konstanten) Magnetfeldern B . Das Auswerteverfahren wird in Abbildung 6.17 genauer beschrieben. Für $B > B_i$ entspricht $|m| = \zeta$, was bei dieser Probe mit $B > 0,4 \text{ T}$ und $|m| = 1,38 \pm 0,04$ gegeben ist. Für b)-d) wird auf die ausführlichere Beschreibung in der Bildunterschrift von Abbildung A.12 verwiesen. Extrahierte Werte der selbstkonsistenten Auswertung sind in Tabelle 6.6 aufgelistet.

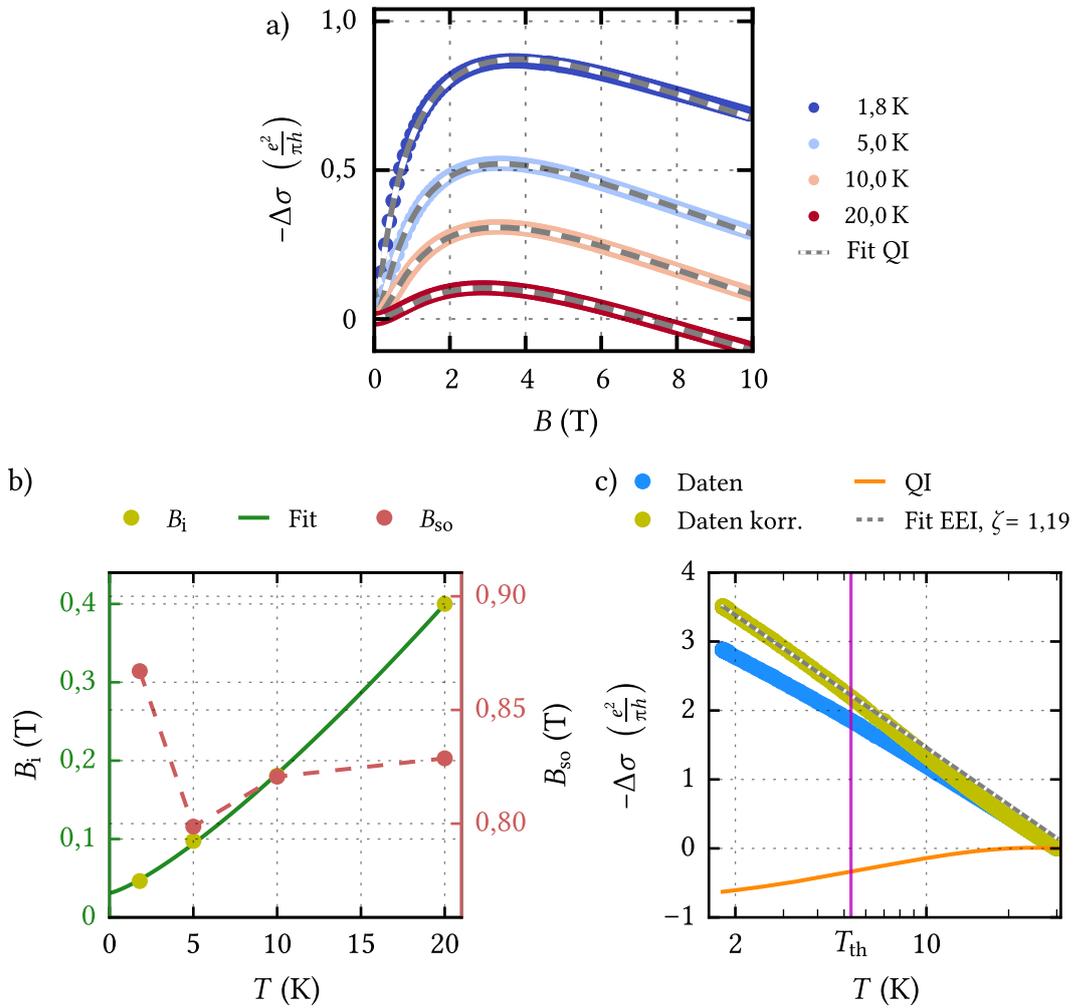


Abbildung A.14: Ergebnis der selbstkonsistenten Beschreibung des elektrischen Transports einer 10,2-nm-dicken BaPbO₃-Monolage, gewachsen auf MgO. Für eine ausführlichere Beschreibung wird auf die Bildunterschrift von Abbildung A.12 verwiesen. Extrahierte Werte der selbstkonsistenten Auswertung sind in Tabelle 6.6 aufgelistet.

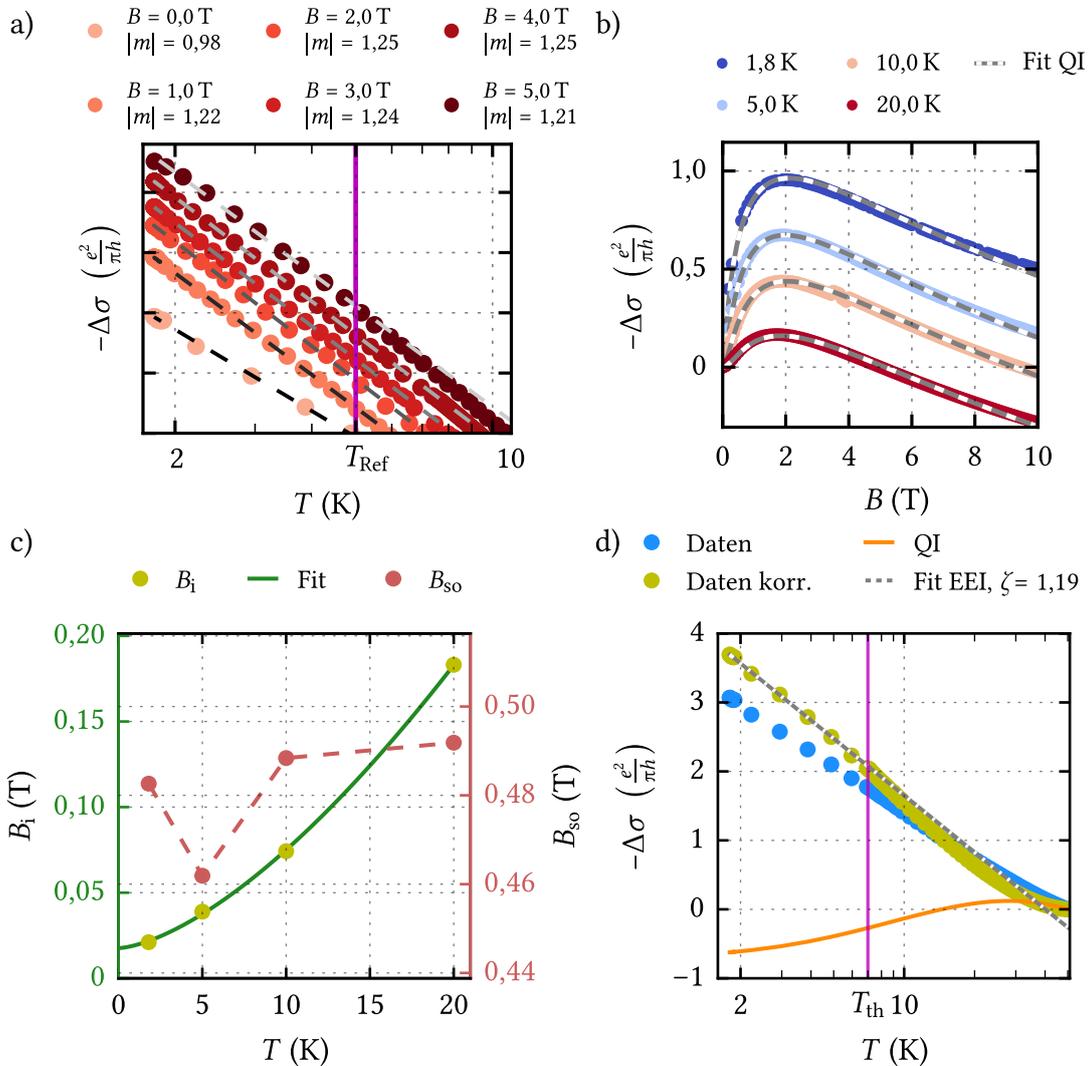


Abbildung A.15: Ergebnis der selbstkonsistenten Beschreibung des elektrischen Transports einer 12,2-nm-dicken BaPbO₃-Monolage, gewachsen auf MgO. Für eine ausführlichere Beschreibung wird auf die Bildunterschrift von Abbildung A.13 und A.12 verwiesen. Extrahierte Werte der selbstkonsistenten Auswertung sind in Tabelle 6.6 aufgelistet.

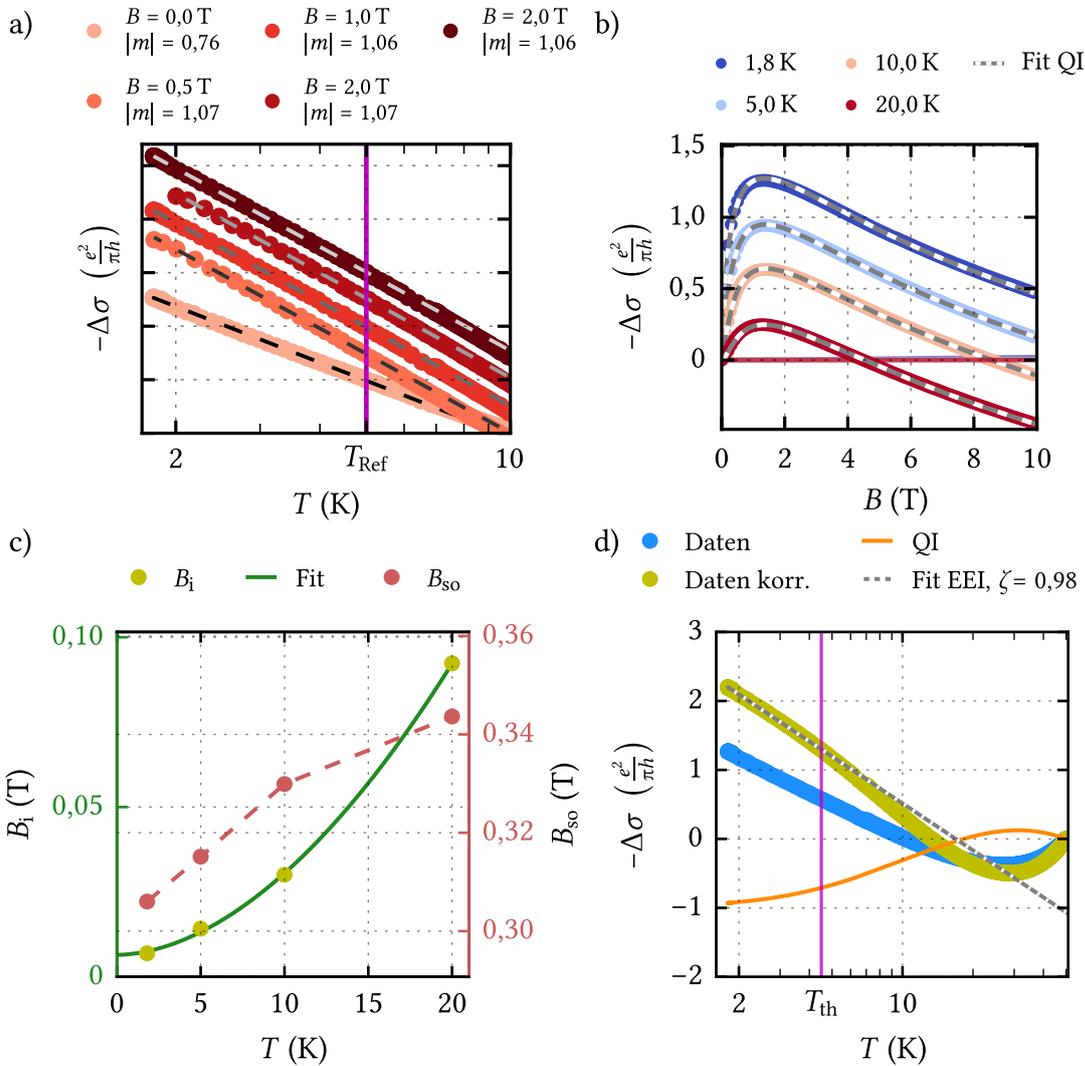


Abbildung A.16: Ergebnis der selbstkonsistenten Beschreibung des elektrischen Transports einer 21,1-nm-dicken BaPbO₃-Monolage, gewachsen auf MgO. Für eine ausführlichere Beschreibung wird auf die Bildunterschrift von Abbildung A.13 und A.12 verwiesen. Extrahierte Werte der selbstkonsistenten Auswertung sind in Tabelle 6.6 aufgelistet.

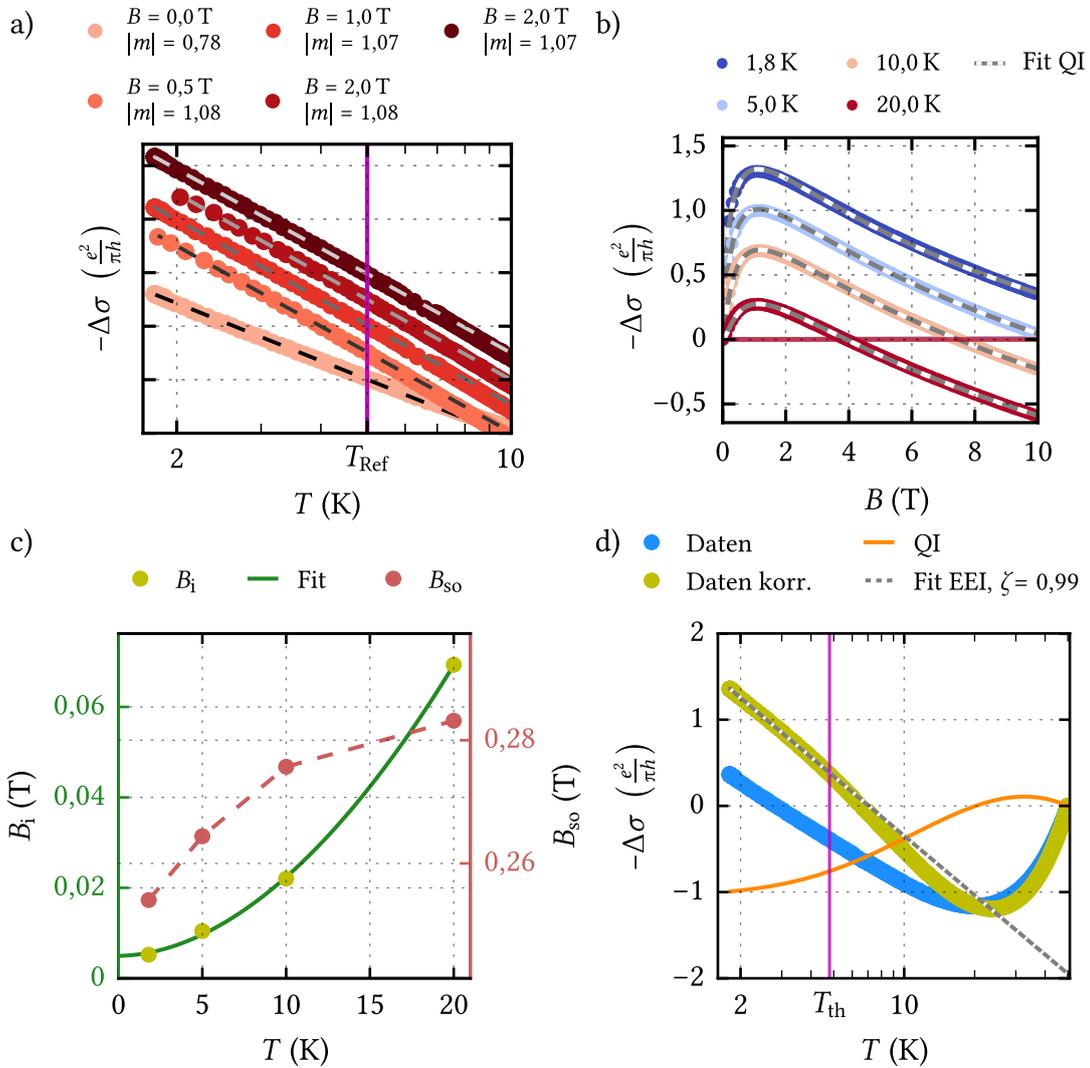


Abbildung A.17: Ergebnis der selbstkonsistenten Beschreibung des elektrischen Transports einer 29,2-nm-dicken BaPbO₃-Monolage, gewachsen auf MgO. Für eine ausführlichere Beschreibung wird auf die Bildunterschrift von Abbildung A.13 und A.12 verwiesen. Extrahierte Werte der selbstkonsistenten Auswertung sind in Tabelle 6.6 aufgelistet.

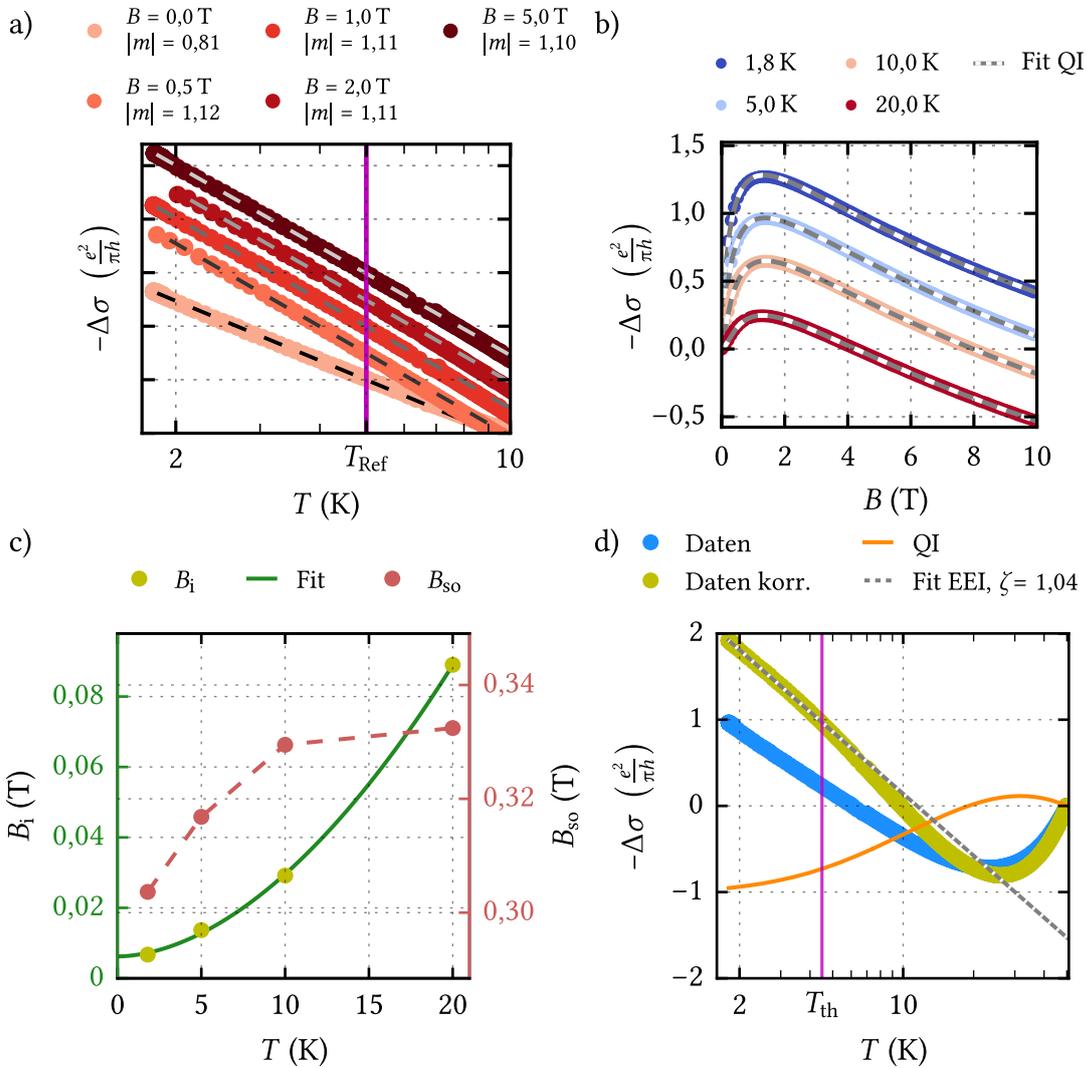


Abbildung A.18: Ergebnis der selbstkonsistenten Beschreibung des elektrischen Transports einer 32,9-nm-dicken BaPbO₃-Monolage, gewachsen auf MgO. Für eine ausführlichere Beschreibung wird auf die Bildunterschrift von Abbildung A.13 und A.12 verwiesen. Extrahierte Werte der selbstkonsistenten Auswertung sind in Tabelle 6.6 aufgelistet.

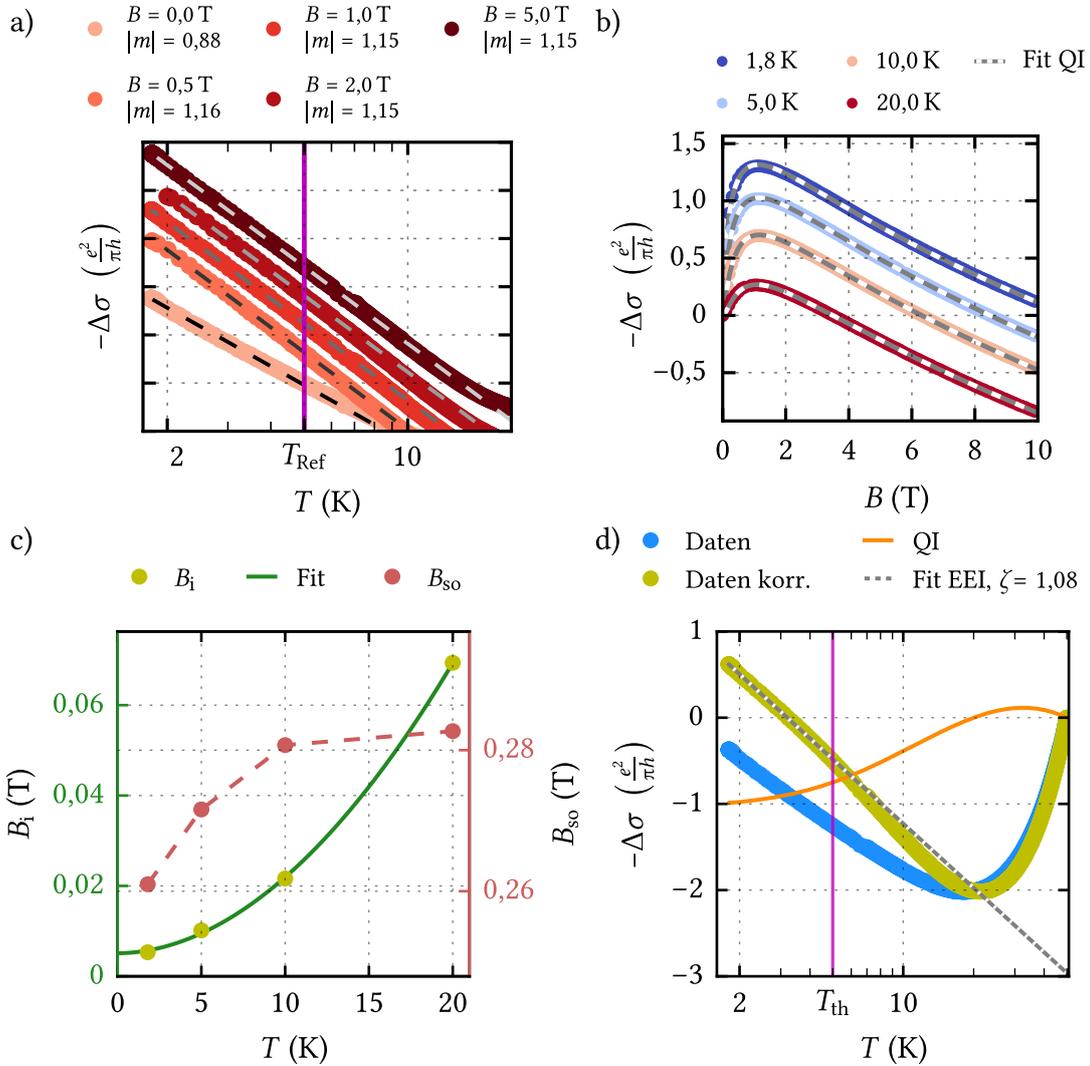


Abbildung A.19: Ergebnis der selbstkonsistenten Beschreibung des elektrischen Transports einer 54-nm-dicken BaPbO_3 -Monolage, gewachsen auf MgO . Für eine ausführlichere Beschreibung wird auf die Bildunterschrift von Abbildung A.13 und A.12 verwiesen. Extrahierte Werte der selbstkonsistenten Auswertung sind in Tabelle 6.6 aufgelistet.

Dreidimensionale Beschreibung der EEI

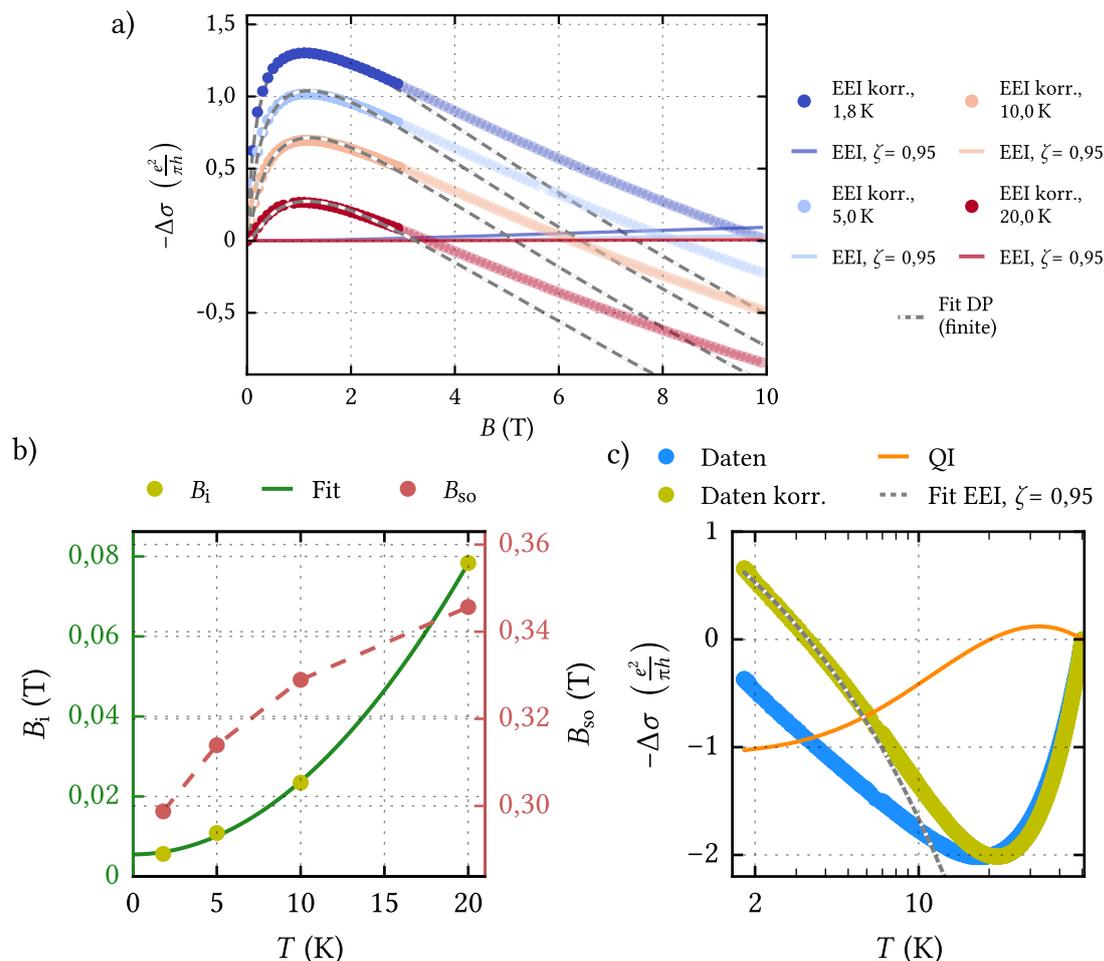


Abbildung A.20: Ergebnis der selbstkonsistenten Beschreibung des elektrischen Transports unter Annahme eines 3D-EEI-Beitrags bei einer 54-nm-dicken BaPbO₃-Monolage, gewachsen auf MgO. Anstelle der 2D-Theorien der EEI für $\Delta\sigma(T)$ und $\Delta\sigma(B)$ wird hier deren 3D-Pendant verwendet (Gl. 5.73/5.70). Dabei wird mit $\Delta\sigma_{2D} = t\Delta\sigma_{3D}$ der 3D-Beitrag durch Bezug auf die Schichtdicke t in einen 2D-Beitrag übersetzt und von den Daten abgezogen wird. Die Anpassungen werden auf 3 T begrenzt um das Maximum möglichst präzise zu beschreiben. **b)** Temperaturabhängigkeit der aus a) extrahierten Werte von B_{so} und B_I , letztere Abhängigkeit kann algebraisch angepasst werden. **c)** Abzug des aus b) bestimmbareren QI-Beitrags auf $\Delta\sigma(T)$ und Interpretation des verbleibenden Verlaufs als 3D-EEI-Beitrag. Als Anpassungsparameter ist dabei die Abschirmkonstante ζ und die Diffusionskonstante D freigegeben. Da die Parameter in Gleichung 5.73 korrelieren, werden beide über die letzten Iterationen gemittelt, um Oszillationen in der Fitroutine zu vermeiden. Mit $D = 0,67 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$ ist der resultierende Wert der Diffusionskonstante vergleichsweise klein. Die Fixierung der Diffusionskonstante auf den klassisch bestimmten Wert von $D = 1,63 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$ führt zu ähnlichen Ergebnissen. Die Werte der Anpassungen konvergieren nicht. Gezeigt ist das Ergebnis nach 100 Iterationen. Die Daten können mit 3D-Theorien der EEI nicht besser beschrieben werden.

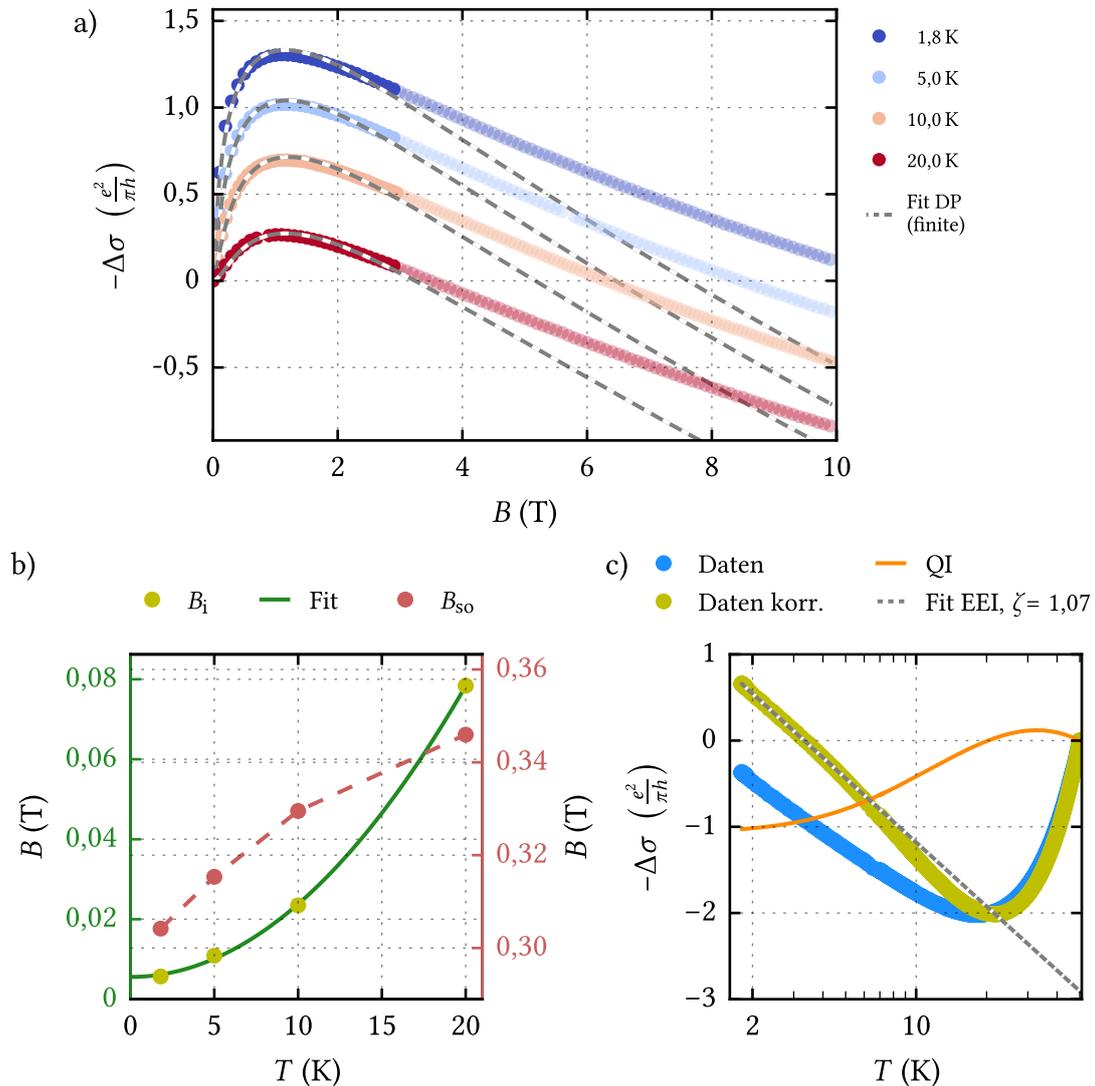
Beschreibung unter fixierter Schichtdicke


Abbildung A.21: Ergebnis der selbstkonsistenten Beschreibung des elektrischen Transports einer bei einer 54-nm-dicken BaPbO₃-Monolage, gewachsen auf MgO, mit fixierter Schichtdicke. a) Ergebnis der Fitroutine nach dem in Abbildung 6.14 beschriebenen Verfahren. Im Gegensatz zu den Analysen in den Abbildungen A.12 bis A.19 ist die Schichtdicke in der HLN-Theorie (Gl. 5.57) fixiert, wodurch die Verläufe bei hohen Magnetfeldern stärker vom Magnetfeld abhängen und die Messdaten nicht beschreiben können. Um das Maximum möglichst präzise zu erfassen wird daher der Anpassungsbereich auf 3 T reduziert. Oberhalb davon weichen die Extrapolationen der Anpassung zunehmend von den Messdaten ab. b) Temperaturabhängigkeit der aus a) extrahierten Werte von B_{so} und B_i , letztere Abhängigkeit kann algebraisch angepasst werden. c) Abzug des aus b) bestimmbaren QI-Beitrags auf $\Delta\sigma(T)$ und Bestimmung der Abschirmkonstante zu $\zeta = 1,07$ aus dem resultierenden Verlauf, nach dem in Abbildung 6.15 beschriebenen Verfahren. Aufgrund der Abweichungen der Extrapolationen der Anpassung in a) sowie aufgrund $\ln(T)$ -Abhängigkeit der korrigierten $\Delta\sigma(T)$ -Daten in c) wird eine kleinere elektrisch aktive Schichtdicke vermutet. Die Anpassungen können damit erheblich verbessert werden (vgl. Abb. A.19).

Beschreibung nicht-supraleitenden BaPbO₃-BaBiO₃-Bilage

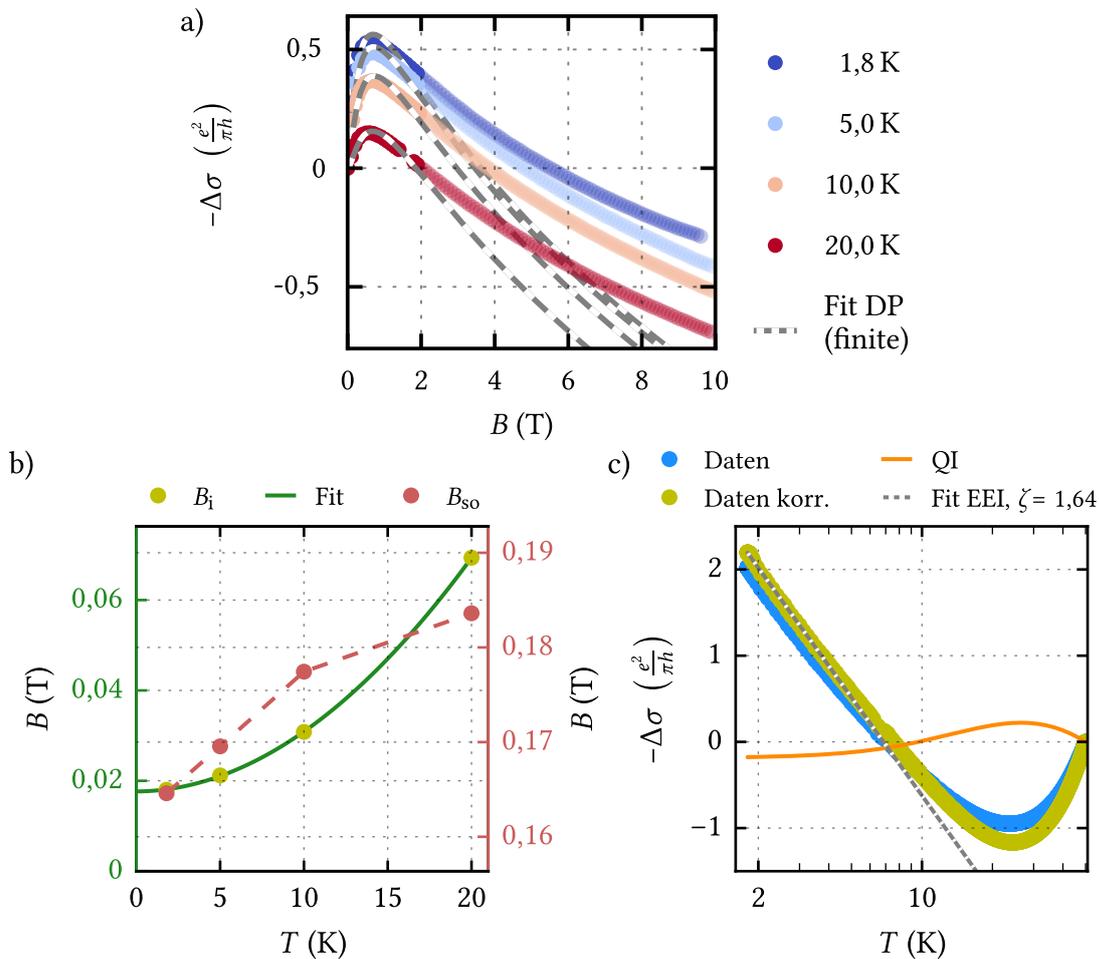


Abbildung A.22: Ergebnis der selbstkonsistenten Beschreibung des elektrischen Transports einer nicht-supraleitenden BaPbO₃-BaBiO₃-Bilage, gewachsen auf chemisch-mechanisch gereinigtem SrTiO₃. Es wurden 60 LP BaPbO₃ auf 200 LP BaBiO₃ aufgewachsen, wobei die BaBiO₃-Grundsicht für fünf Minuten auf 900 °C bei 1,1 mbar O₂-Hintergrunddruck thermisch behandelt wurde, wodurch die supraleitende Phase vollständig unterdrückt wird. Hier gezeigt ist das Analyseverfahren, dass in Abbildung A.7 beschrieben wird. Dementsprechend fließt die Schichtdicke als fixer Parameter mit ein. Die Freigabe dessen, analog zu den BaPbO₃-Monolagen auf MgO-Substraten, führt nicht zu einer verbesserten Beschreibung der Daten. Auch mit dreidimensionalen Theorien der EEI können die Daten nicht beschrieben werden. Es sei noch auf folgende Aspekte verwiesen: **a)** Die $\Delta\sigma(B)$ -Verläufe bei verschiedenen Temperaturen sind in vergleichbarer Größenordnung, wodurch ein Beitrag durch supraleitende Fluktuationen auszuschließen ist. Die Verläufe ähneln denen aus BaPbO₃-Monolagen, können aber auch durch unterschiedliche Strategien und mit unterschiedlichen Regimen nicht mit einer Kombination aus QI und EEI beschrieben werden. Um das Maximum möglichst präzise zu beschreiben, wird der Anpassungsbereich auf 2 T begrenzt. **b)** Aus a) extrahierte Werte für B_{so} und B_i . **c)** Der (korrigierte) $\Delta\sigma(T)$ -Verlauf zeigt eine $\ln(T)$ -Abhängigkeit und indiziert damit einen 2D-EEI-Beitrag. Es ergibt sich $\zeta > 1$. Möglicherweise trägt die zusätzliche Grenzfläche komplex bei, beispielsweise könnten zwei Bereiche unterschiedlicher physikalischer Eigenschaften vorliegen, die gleichermaßen den elektrischen Transport beeinflussen.

Thermisch aktivierbare Sauerstofffehlstellen

Der Effekt thermisch aktivierbarer Sauerstofffehlstellen wird in [286] anhand des Materialsystems $\text{LaAlO}_3\text{-SrTiO}_3$ diskutiert. Hier sollen die wichtigsten Aspekte kurz zusammengefasst werden.

Thermisch aktivierbare Sauerstofffehlstellen können einen temperaturabhängigen Beitrag zum spezifischen elektrischen Widerstand liefern. Zur Modellierung wird angenommen, dass bei $T \rightarrow 0\text{ K}$ alle im Material eingebauten Fehlstellen N_0 auf den elektrischen Widerstand einwirken. Rund um und oberhalb der Aktivierungstemperatur T_A werden diese thermisch aktiviert und verringern damit den Beitrag auf R_{imp} . Die Anzahl an einwirkenden Fehlstellen kann durch

$$N_i(T) = N_0 \left[1 - \exp\left(\frac{-T_A}{T}\right) \right] \quad (\text{A.29})$$

beschrieben werden. Diesem Effekt wirkt bei SrTiO_3 eine reduzierte Abschirmung der Störstreupotentiale ($V \propto \varepsilon^{-1}$) aufgrund der mit der Temperatur abnehmenden dielektrischen Permittivität $\varepsilon(T)$ von SrTiO_3 [286] entgegen. Unterhalb von 38 K kann diese mit der Barrett-Formel beschrieben werden:

$$\varepsilon(T) = C \left[\frac{T_1}{2} \coth\left(\frac{T_1}{2T}\right) - T_0 \right]^{-1}. \quad (\text{A.30})$$

Dabei beschreibt C die Curie-Konstante, T_1 die Temperatur, unterhalb derer Quanteneffekte bedeutend werden, und T_0 die klassische Molekülfeldtemperatur. Mit Hilfe Fermi's goldener Regel ($R_{\text{imp}} \propto N_i V^2 \propto N_i \varepsilon^{-2}$) und der Matthiessen'schen Regel kann der Schichtwiderstand in diesem Modell beschrieben werden durch

$$R_s = A \left[1 - \exp\left(\frac{-T_A}{T}\right) \right] \left[\frac{T_1}{2} \coth\left(\frac{T_1}{2T}\right) - T_0 \right]^2 + BT^2, \quad (\text{A.31})$$

wobei A die Curie-Konstante C sowie N_0 vereint.

[286]

A.4 Einfluss der Messfrequenzen auf den elektrischen Transport

Die verwendete ETO-Einheit des PPMS ermöglicht Messungen mit einer AC-Wechselspannung im Frequenzbereich von etwa 0,4 Hz bis 190 Hz (s. Kap. 5.1). In diesem Kapitel soll der Einfluss der Messfrequenz auf die verschiedenen Untersuchungen kurz diskutiert werden.

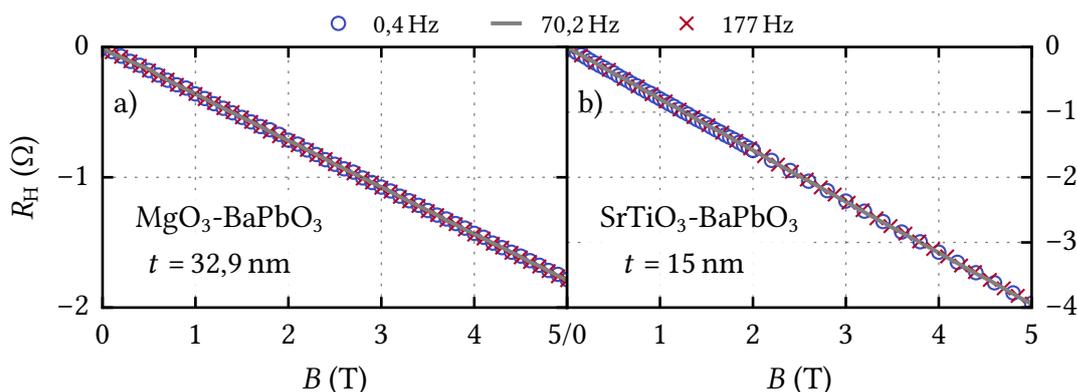


Abbildung A.23: Einfluss der Messfrequenz auf Hall-Messungen. Eine a) 32,9-nm-dicke BaPbO₃-Monolage auf MgO-Substrat sowie eine b) 15-nm-dicke auf SrTiO₃-Substrat zeigen keine Abhängigkeit des Hall-Widerstands von der angelegten Messfrequenz. Aus den verschiedenen Messungen ergibt sich eine Flächenladungsträgerdichten, die um maximal 0,3 % vom jeweiligen Mittelwert variiert.

Hall-Widerstände an Dünnschichtproben unterschiedlicher Schichtdicke zeigen im gesamten zur Verfügung stehenden Messspektrum keine Abhängigkeit von der Frequenz der angelegten Wechselspannung (vgl. exemplarisch gezeigte Daten in Abb. A.23). Die aus Untersuchung bei unterschiedlichen Messfrequenzen extrahierte Ladungsträgerdichte schwankt dabei maximal um etwa 0,3 % deren Mittelwerts.

Für den Magnetotransport ergibt sich ein ähnliches Bild (vgl. exemplarisch gezeigte Daten in Abb. A.24). Die gemessenen elektrischen Widerstände und damit der daraus berechnete MR sowie $\Delta\sigma(B)$ sind von der Messfrequenz unabhängig.

Der temperaturabhängige elektrische Widerstand zeigt dagegen teilweise eine Anfälligkeit gegenüber der angelegten Messfrequenz (vgl. exemplarisch gezeigte Daten in Abb. A.25). Dabei treten teilweise Unterschiede im absoluten Verlauf bei tiefen Temperaturen, aber auch in der Änderung der spezifischen Leitfähigkeit $\Delta\sigma(T)$ auf, die damit das Ergebnis der selbstkonsistenten Fitroutine beeinflussen können. Der Einfluss der Messfrequenz wurde bereits im Rahmen eines mitbetreuten Fachpraktikums am Lehrstuhl untersucht, allerdings ohne die Ursache final klären zu können [M4].

Prinzipiell führt die Messfrequenz eine weitere charakteristische Zeit hinzu, die, wenn sie in vergleichbarer Größenordnung wie andere charakteristische Zeiten des Systems (z. B. Transportstreuzeit τ_{tr}) gelangen, den elektrischen Transport beeinflussen können. Mit einer maximalen Messfrequenz von etwa 190 Hz ist die damit verbundene Zeitskala wesentlich größer als die Transportstreuzeit (im Femtosekunden-Bereich) oder der inelastischen- bzw. Spin-Bahn-Streuzeit (Picosekunden-Bereich). Somit sollte sowohl der klassische Transport, als auch die QI (für $\tau_i > \omega^{-1}$ wird die QI von der Frequenz getrieben [318]) von den angelegten Messfrequenzen nicht beeinträchtigt werden.

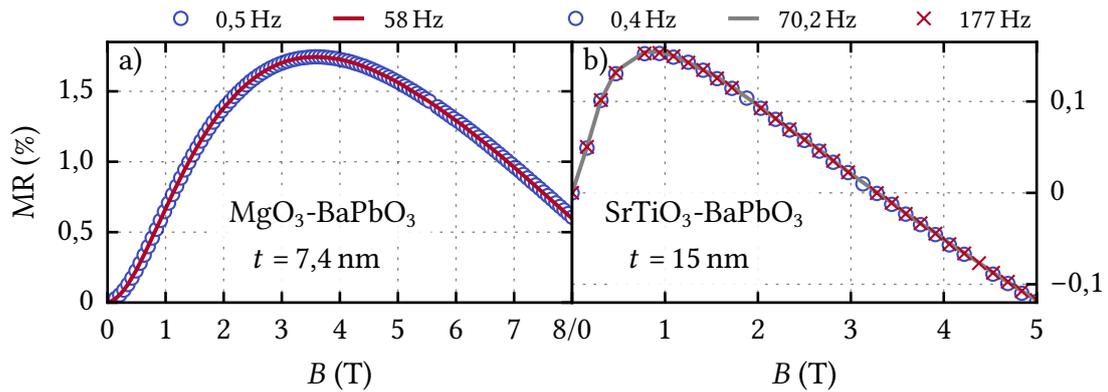


Abbildung A.24: Einfluss der Messfrequenz auf den Magnetotransport. Eine a) 7,4-nm-dicke BaPbO₃-Dünnschichtprobe auf MgO-Substrat sowie eine b) 15-nm-dicke auf SrTiO₃-Substrat zeigen keine Abhängigkeit des MR (bzw. des $R_s(B)$ oder $\Delta\sigma(B)$) von der angelegten Messfrequenz. Diese Beobachtung zeigt sich bei allen durchgeführten Proben. Gezeigte Messungen wurden im senkrechten Magnetfeld bei 10 K aufgenommen.

Da bei der in Abbildung A.25 gezeigten 6-nm-dicken Probe bei hohen Messfrequenzen ein Abknicken zu sehen ist, das sich auch in Sekundärdaten des PPMS wie beispielsweise dem Phasenwinkel zeigt, scheint zumindest bei dieser Probe ein Problem mit der Phasenverschiebung vorzuliegen. Möglicherweise liegt bei dieser Probe auch frequenzabhängig ein Problem mit der Ankontaktierung oder Ähnlichem vor. Der Einfluss der Messfrequenz auf den temperaturabhängigen elektrischen Widerstand kann auch in dieser Arbeit nicht final geklärt werden. Zur Auswertung wurde jeweils darauf geachtet, dass die Sekundärdaten des PPMS bei der entsprechenden Messung auf eine saubere Messung schließen lassen (dies war nicht immer die Messung mit einer geringeren Messfrequenz).

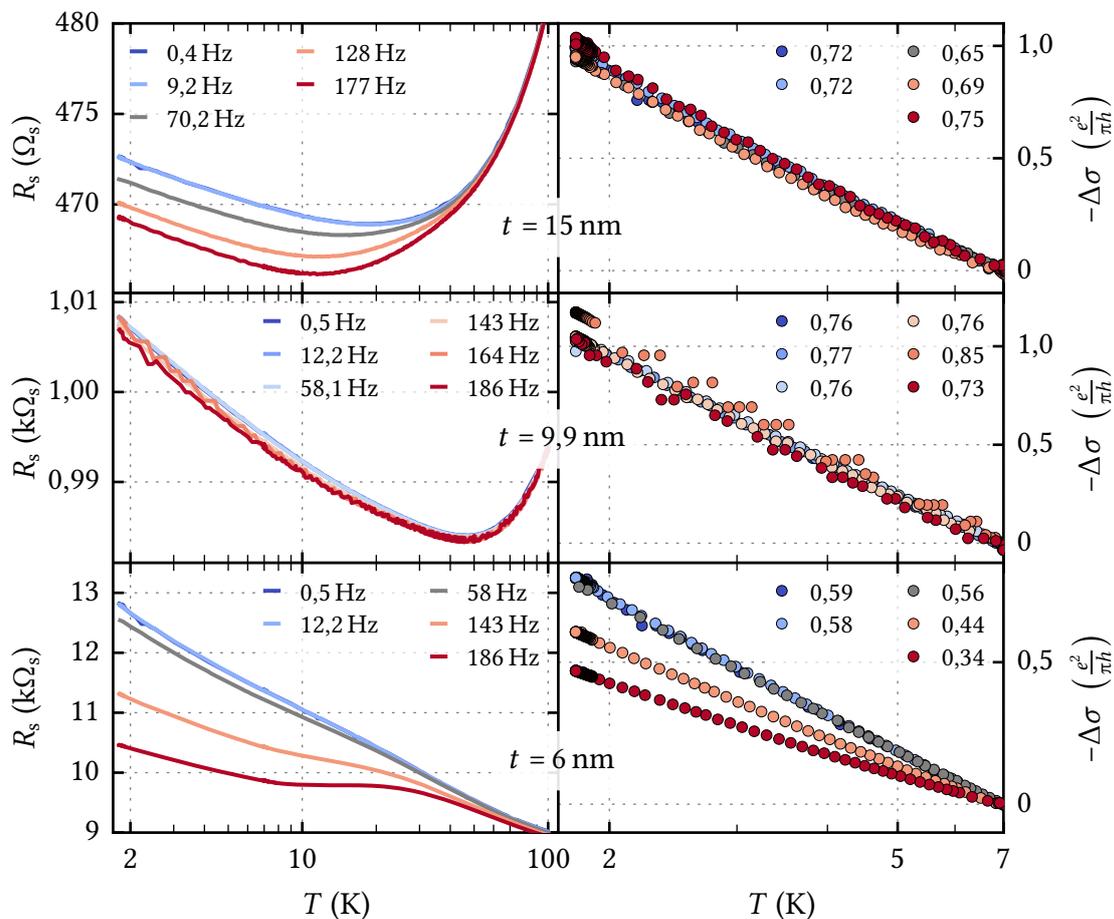


Abbildung A.25: Einfluss der Messfrequenz auf den temperaturabhängigen elektrischen Widerstand verschieden dicker BaPbO₃-Monolagen. Es ist jeweils der Schichtwiderstand auf der linken Seite und die Änderung der (zweidimensionalen) spezifischen Leitfähigkeit auf der rechten Seite gegen die Temperatur aufgetragen. Die Legende auf der rechten Seite gibt für die Messdaten der entsprechenden Frequenz die Steigung $|m|$ der Änderung der spezifischen Leitfähigkeit (bei entsprechender Skalierung) an. In Abhängigkeit der Messfrequenz zeigt sich teilweise eine Beeinflussung des Schichtwiderstands, aber auch eine Beeinflussung der Steigung der $\ln(T)$ -Abhängigkeit der Änderung der spezifischen Leitfähigkeit. Letzteres kann das Ergebnis der selbstkonsistenten Fitroutine beeinflussen und wirkt sich auf den extrahierten Wert der Abschirmkonstante ζ aus. Bei der 15-nm-dicken und bei der 9,9-nm-dicken BaPbO₃-Dünnschichtprobe (auf SrTiO₃) ist der Einfluss der Messfrequenz auf die Steigung der $\ln(T)$ -Abhängigkeit (rechte Seite) vergleichsweise gering, bei der 6-nm-dicken Probe zeigen sich allerdings deutliche Abweichungen. Hier kann auch ein Abknicken im Schichtwiderstand beobachtet werden, der sich auch am aufgezeichneten Phasenwinkel abzeichnet. Die Ursache des Einflusses kann nicht geklärt werden, zur Auswertung wird darauf geachtet, dass die Sekundärdaten des PPMS auf eine saubere Messung hindeuten.

A.5 Einfluss der Feldorientierung auf den elektrischen Transport

Standardmäßig wird die Probe derart auf den Messpuk aufgebracht, dass die elektrische Stromrichtung j in einem parallel zur Filmoberfläche angelegten Magnetfeld ebenfalls parallel dazu verläuft (vgl. Abb. 5.2). In diesem Kapitel soll die Ausrichtung des elektrischen Stroms im parallelen Magnetfeld kurz diskutiert werden.

Zur Untersuchung eines möglichen Einflusses werden zwei Proben nacheinander in den beiden Anordnungsmöglichkeiten vermessen (Abb. A.26, 0° entspricht einer senkrechten Orientierung des Magnetfelds in Bezug auf die Filmoberfläche, 90° einer parallelen). Die Abweichungen der Magnetwiderstands-Verläufe sind relativ gering und zeigen sich bereits am Absolutwert der Schichtwiderstände (nicht gezeigt). Dies deutet auf eine Alterungserscheinung der Proben hin, die zwischen den beiden Messungen auch mit Aceton und Isopropanol gereinigt werden musste. Der Schichtwiderstand der dünneren Probe steigt dabei verhältnismäßig stärker an, was möglicherweise auf eine leichte Degradierung der Oberfläche und ein schlechteres Oberflächen-zu-Volumen-Verhältnis bei dünneren Proben zurückzuführen ist

Eine weitere Ursache für leicht unterschiedlichen Verläufe der gezeigten Magneto-transportdaten könnte auf einen unterschiedlichen *Offset*-Winkel des Rotators zurückzuführen sein. Vor allem bei dünnen Proben ist der Magnetwiderstand stark anisotrop und damit von der exakten Ausrichtung der Probe im Magnetfeld abhängig. Die genaue Ausrichtung des Rotators wird in Kapitel A.6 diskutiert.

Sowohl die Degradierung der Probe, als auch die unterschiedliche Justage des Rotators erklären auch die leichten Abweichungen im senkrechten Magnetfeld, bei der die Stromrichtung irrelevant sein sollte. Der Einfluss der Stromrichtung ist damit gering bzw. möglicherweise sogar irrelevant – wie man es für QI und EEI erwarten würde.

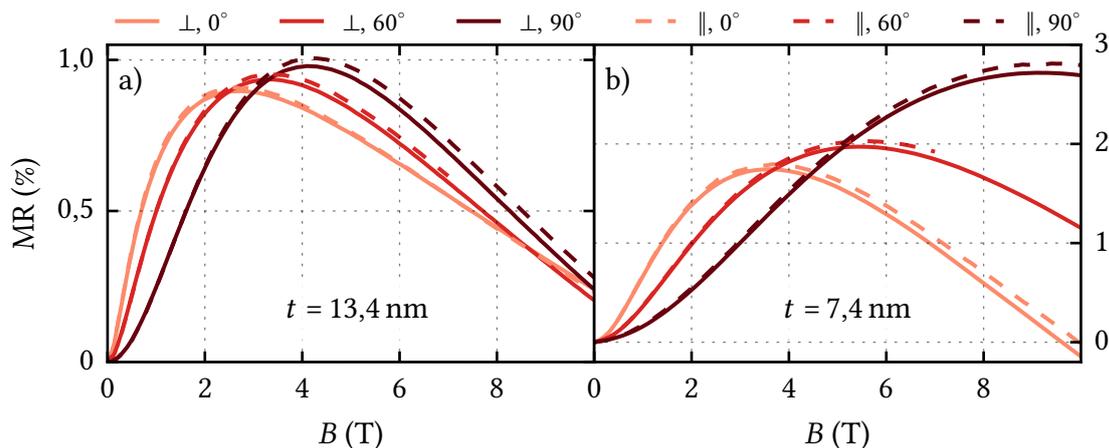


Abbildung A.26: Einfluss der Stromrichtung im senkrechten und parallelen Magnetfeld. Im parallel zur Filmoberfläche ausgerichteten Magnetfeld (90°) kann die Stromrichtung sowohl senkrecht (\perp , durchgezogene Linien), als auch parallel (\parallel , Standard, gestrichelte Linien) dazu ausgerichtet sein. Anhand einer a) 13,4-nm- und b) einer 7,4-nm-dicken BaPbO₃-Monolage auf MgO-Substraten zeigt sich kein signifikanter Unterschied im Magnetotransport. Da auch bei einer senkrechten Ausrichtung (0°) des Magnetfelds in Bezug auf die Probenoberfläche leicht unterschiedliche Verläufe beobachtet werden, sind die leichten Differenzen im Magnetotransport auf eine Alterung der Probe (beim Umkontaktieren sind diese mit Aceton in Kontakt getreten) oder eine Fehljustage des Winkels zurückzuführen.

A.6 Positionierungsgenauigkeit zum Magnetfeld

Am PPMS kann die Probe über einen Rotator im Magnetfeld gedreht werden. Der Magnetwiderstand meiner Dünnschichtproben ist anisotrop, sodass bei einer Drehung im angelegtem Magnetfeld um 360° jeweils zwei Minima und Maxima beobachtet werden können (vgl. Abb. 6.27 a)), die einer senkrechten bzw. parallelen Orientierung im Bezug zur Filmoberfläche entsprechen. Über Gauß-Fits kann deren genaue Lage bestimmt werden, wodurch bei jeder Messung vier *Offset*-Winkel in Relation zu den erwarteten Positionen der Extremwerte bestimmt werden können. Aus allen durchgeführten Messungen ergibt sich ein mittlerer systematischer Fehlwinkel von $\theta_{F, \text{sys}} = (8,0 \pm 2,8)^\circ$, wobei vor allem dickere Proben von einem großen Fehlwinkel betroffen sind (vgl. Abb. A.27). Da die Isotropie mit zunehmender Schichtdicke ansteigt (vgl. Abb. 6.25), wirkt sich dort ein Fehlwinkel weniger stark auf die Messung aus, als bei dünneren Filmen.

Es gibt einige Ursachen, die eine genaue Ausrichtung der Probe im Magnetfeld erschweren. Kleine Fehlwinkel können sich beispielsweise durch ein schiefes Aufkleben der Proben, einer schiefen Substratoberfläche oder einem Neigungswinkel zwischen Substrat und Film ergeben. Der damit einhergehende Fehler kann durch den Vergleich der Fehlwinkel jeweils zweier gleichzeitig aufgeklebter und vermessener Dünnschichtproben zu etwa $(0,52 \pm 0,26)^\circ$ abgeschätzt werden. Des Weiteren übergibt der Rotator seine

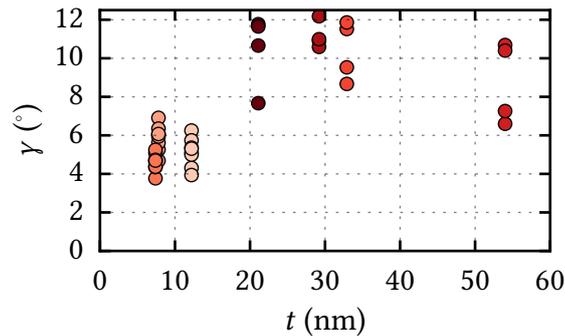


Abbildung A.27: *Offset-Winkel der Rotator-Messungen.* Aus anisotropen Magnetwiderständen kann die Lage der vier Extrema über Gauß-Fits bestimmt werden (vgl. Abb. 6.27). Diese sind gegen die Schichtdicke der untersuchten Dünnschichtprobe aufgetragen. Es zeigt sich ein systematischer Fehler von $(8,0 \pm 2,8)^\circ$, sowie eine statistische Streuung innerhalb der vier bestimmten Fehlwinkel einer Messung. Der systematische Fehler ist bei den Dünnschichtproben unterhalb von 20 nm – die zuerst untersucht wurden – mit $(5,2 \pm 0,6)^\circ$ deutlich kleiner, was auf eine zwischenzeitliche Beschädigung des Rotators hindeutet.

Drehbewegung über mehrere Zahnräder an die Probe, wobei jedes Zahnrad einen gewissen Spielraum hat. So kann sich durch Andrehen einer bestimmten Position aus der einen, bzw. anderen Richtung die Endposition unterscheiden. Dieser Fehlwinkel lässt sich durch mehrfaches Andrehen einer Probe auf etwa $(0,14 \pm 0,08)^\circ$ abschätzen. Die Winkel der vier Extrema der Messungen haben im Mittel eine Standardabweichung von $\pm 1,16^\circ$, was ebenfalls auf die Präzision der Drehbewegung zurückzuführen ist. Zuletzt hat der Rotator eine Anzeige des aktuellen Winkels, die jedes Mal neu kalibriert wird. Hier wird der Fehler auf etwa 1° bis 2° abgeschätzt.

All diese Fehlerquellen sollten jedoch statistisch beitragen und sich dadurch im Mittel nivellieren. Zudem sind diese insgesamt kleiner als der systematische Fehlwinkel, der sich aus meinen späteren Analysen ergibt. Somit unterlag der Rotator zum Zeitpunkt der Nutzung offensichtlich einem Defekt, sodass der angezeigte Winkel nicht mit dem tatsächlichen übereinstimmte.

Der Fehlwinkel wirkt sich vor allem bei dünnen Proben im Parallelfeld aus. Hier können bei einem zu großen Fehlwinkel endliche Beiträge der senkrechten Komponente des Magnetfelds auf die Probe einwirken. Im senkrechten Magnetfeld ist der Einfluss des Fehlwinkels auf den elektrischen Transport gering.

Liste der Symbole und Akronyme

1D, 2D, 3D	Ein-, zwei- bzw. dreidimensional
A	Amplitude
AA	Altshuler Aronov
AFM	Rasterkraftmikroskop (<i>Atomic Force Microscope</i>)
a, a_c, a_{pc}	Laterale, kubische, pseudokubische Gitterkonstante
B	Magnetisches Feld (magnetische Flussdichte)
B_{c2}	Oberes kritisches Magnetfeld
B_{in}	Intrinsisches Magnetfeld
B_e	Das die elastische Streuung beschreibende charak. Magnetfeld
B_i	Das die inelastischen Streuung beschreibende charak. Magnetfeld
B_m	Das die magnetische Wechselwirkung beschreibende charak. Magnetfeld
B_{mag}	Charakteristisches Magnetfeld zur magnetischen Länge l_{mag}
B_φ	Das die dephasierende Streuung beschreibende charak. Magnetfeld
B_{so}	Das die Spin-Bahn-Streuung beschreibende charak. Magnetfeld
BKT	Berezinskiĭ-Kosterlitz-Thouless
$\beta_L, \beta_{LdS,A}$	Wechselwirkungsstärke nach Larkin bzw. Lopes dos Santos und Abrahams
c	Mediale Gitterkonstante oder Lichtgeschwindigkeit (kontextbedingt)
CDW	Ladungsdichtewelle, <i>Charge Density Wave</i>
cps	Zählungen pro Sekunde, <i>Counts per Second</i>
C_{WAL}, C_{WL}	Konstante zur WAL bzw. WL
d	Raumdimension
DCR	<i>Diffusion Coefficient Renormalization</i>
DFT	Dichtefunktionaltheorie, <i>Density-Functionale Theory</i>
DOS	Zustandsdichte, <i>Density of States</i>
D	Diffusionskonstante
δ_{MT}	Maki-Thompson Paarbrechungs-Parameter
$\delta\sigma$	Quantenkorrektur der spezifischen Leitfähigkeit
$\Delta\sigma(B)$	Magnetfeldabhängige Änderung der spez. Leitfähigkeit: $\delta\sigma(B) - \delta\sigma(0)$
$\Delta\sigma(T)$	Temperaturabhängige Änderung der spez. Leitfähigkeit: $\delta\sigma(T) - \delta\sigma(T_{ref})$
DK	Dugaev-Khmelnitskii
DP	D'yakonov-Perel'
ETO	PPMS-Einheit zum Messen des elektr. Transports, <i>Electrical Transport Option</i>

A Anhang

E_{el}	Elektrisches Feld
EY	Elliott-Yafet
$\epsilon(T)$	Reduzierte Temperatur
f	Gitterfehlpassung, <i>Misfit Parameter</i>
f_{geo}	Geometriefaktor $f_{geo} = w/l$
g	Landé-Faktor
\mathbf{G}_{hkl}	Reziproker Gittervektor
GL	Ginzburg-Landau
γ	Lorentzfaktor
$\gamma_s, \gamma_{f(n)}, \gamma_{i(n)}$	Grenzflächenenergie Substrat-Vakuum, Film-Vakuum, Substrat-Film
\hbar, h	(reduziertes) Plank'sches Wirkungsquantum
HLN	Theorie von Hikami, Larkin und Nagaoka
I	Elektrischer Strom
ILP	Theorie von Iordanskii, Lyanda-Geller und Pikus
j	Elektrische Stromdichte
k_B	Boltzmann-Konstante
k_F	Fermi-Wellenzahlvektor
\mathbf{k}, \mathbf{k}_0	Wellenzahlvektor (des gestreuten bzw. einstrahlenden Lichts)
l	Probenlänge bzw. Länge des Messstegs
ξ_{GL}	Ginzburg-Landau Kohärenzlänge
LP	Laserpulse
l_{mag}	Magnetische Länge $l_{mag} = \sqrt{\hbar/4eB}$
l_{mfp}	Mittlere freie Weglänge
l_i	Charakteristische Länge der inelastischen Streuung, Thouless-Länge
l_φ	Charakteristische Länge der dephasierenden Streuung
l_{so}	Charakteristische Länge der Spin-Bahn-Streuung
l_{th}	thermische Diffusionslänge
LASER	<i>Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation</i>
λ	Wellenlänge
MF	Theorie nach Maekawa-Fukuyama
MR	Magnetoresistiver Effekt, <i>Magnetoresistance</i> , $(R(B) - R(0))/R(0)$
MT	Maki-Thompson
μ	Mobilität der Ladungsträger: $\mu = v/E$
μ_B	Bohr'sches Magneton
m, m^*, m_e	Masse, effektive Masse, Masse eines Elektrons
n_{2D}, n_{3D}	Flächen-, bzw. Volumenladungsträgerdichte
ω, ω_c	Frequenz, Zyklotron Frequenz
Ω_L	Larmorfrequenz
φ	Phase einer Wellenfunktion
Φ_0	Magnetischer Flussquant

p	Spekularität oder Impuls (kontextbedingt)
PLD	Gepulste Laserablation, <i>Pulsed Laser Deposition</i>
PPMS	Messgerät, <i>Physical Property Measurement System</i>
$\psi(x)$	Digamma-Funktion
$\Psi(x)$	$\psi(1/2 + 1/x) + \ln(x)$
q	Elektrische Ladung
Q, Q_x, Q_z	Streuvektor, sowie dessen laterale bzw. mediale Projektion
QI	Quanteninterferenz
R	Elektrischer Widerstand
R_H	Hall-Widerstand, <i>Hall Resistance</i> , $R_H = R_{xy} = 1/nel$
R_s	Schichtwiderstand, <i>Sheet Resistance</i> , $R_s = R_{xx} = R_w/l$
RMSR	Quadratmittel-Rauigkeit, <i>Root-Mean-Square-Roughness</i>
RT	Raumtemperatur
ρ	Spezifischer Widerstand (σ^{-1})
ρ_{el-d}	Spezifischer Widerstand aufgrund von Streuungen an Defekten
ρ_{el-ph}	Spezifischer Widerstand aufgrund von Streuungen an Phononen
ρ_b	Spezifischer Widerstand einer Bulk-Probe
ρ_s	Spezifischer Widerstand aufgrund von Oberflächenbeiträgen
ρ_f	Spezifischer Widerstand einer Dünnschichtprobe
RSM	Reziproke Raumkarten, <i>Reciprocal Space Mapping</i>
SL	Supraleitung
SLF	Supraleitende Fluktuationen
σ	Spezifische Leitfähigkeit (ρ^{-1})
t, t_{el}, t_{SL}	Filmschichtdicke, elektrisch aktive bzw. supraleitende Schichtdicke
t_G	Goldschmidt'sche Toleranzfaktor
T, T_{ref}, T_c	Temperatur, Referenztemperatur, kritische Temperatur
T_{th}, T_i	Temperatur des erwarteten dimensional Übergangs der EEI bzw. QI
T_{BKT}	Temperatur des BKT-Phasenübergangs
τ	Streuzeit
τ_{el-d}	Charakteristische Streuzeit aufgrund von Streuungen an Defekten
τ_{el-ph}	Charakteristische Streuzeit aufgrund von Streuungen an Phononen
τ_{el-fl}	Dephasierende Streuzeit an supraleitenden Fluktuationen
τ_{tr}	Transportzeit
τ_e	Charakteristische Streuzeit der elastischen Streuung
τ_i	Charakteristische Streuzeit der inelastischen Streuung, Thouless-Länge
τ_m	Charakteristische Streuzeit der magnetischen Wechselwirkung
τ_ϕ	Charakteristische Streuzeit der dephasierenden Streuung
τ_{so}	Charakteristische Streuzeit der Spin-Bahn-Streuung
θ_D	Debye-Temperatur
θ_{cr}	Kritischer Winkel, unterhalb dessen Totalreflexion vorkommt

A Anhang

θ_m	m -tes Intensitätsmaximum im XRR
θ_F	Fehlwinkel bei der Orientierung des Rotators im Magnetfeld
V	Elektrische Spannung
v_{drift}	Driftgeschwindigkeit
v_F	Fermigeschwindigkeit
w	Probenbreite bzw. Breite des Messstegs
WAL, WL	schwache Antilokalisierung bzw. Lokalisierung, <i>Weak (Anti-)Localization</i>
WP	Wendepunkt
XRD	Röntgenbeugung, <i>X-Ray Diffraction</i>
XRR	Röntgenreflektometrie, <i>X-Ray Reflectometry</i>
Z	Kernladungszahl
ZA	Zwischenzeitlicher Ausheizprozess, <i>Zwischenannealing</i>
ζ	Abschirmkonstante der EEI

Literatur

Beteiligte Publikationen und eigene Arbeiten

- [A1] P. Seiler, R. Bartel, T. Kopp und G. Hammerl, „Electronic transport in thin films of BaPbO₃: unraveling two-dimensional quantum effects“, Phys. Rev. B **100**, 165402 (2019).
- [A2] R. Bartel, E. Lettl, P. Seiler, T. Kopp und G. Hammerl, „Magnetotransport of functional oxide heterostructures affected by spin–orbit coupling: a tale of two-dimensional systems“, Phys. Status Solidi B , 2100154 (2021).
- [A3] R. Bartel, „Herstellung und Charakterisierung von epitaktischen Heterostrukturen aus BaBiO₃ und BaPbO₃“, Masterarbeit (Universität Augsburg, Augsburg, 28. Nov. 2017), 93 S.

Mitbetreute Arbeiten

- [M1] M. Strößer, „Charakterisierung von mittels gepulster Laserablation hergestellter BaPbO₃-Dünnschichten zur Untersuchung des Metall-Isolator-Übergangs“, Masterarbeit (Universität Augsburg, Augsburg, 2018).
- [M2] M. X. A. Albrecht, „Charakterisierung des Magnetwiderstands mittels Laserablation hergestellter BaPbO₃-Dünnschichten“, Masterarbeit (Universität Augsburg, Augsburg, 2020), 86 S.
- [M3] L. Winkler, „Herstellung und Charakterisierung der elektronischen Transporteigenschaften vakuumgetmpeter BaPbO₃-Dünnschichten“, Masterarbeit (Universität Augsburg, Augsburg, 4. Feb. 2022).
- [M4] L. Winkler, „Untersuchung schwacher Lokalisierungseffekte in BaPbO₃ Dünnschichten“, Projektarbeit (Universität Augsburg, Augsburg, 2021).

Im Kontext stehende Doktorarbeiten

- [D1] B. Meir, „BaBiO₃-BaPbO₃-Bilagen: Herstellung und Untersuchung elektronischer Grenzflächeneffekte“, Diss. (Universität Augsburg, Augsburg, 2019).
- [D2] P. Seiler, „Anti-Localization in Oxide Heterostructures“, Diss. (Universität Augsburg, Augsburg, 2018).

Weitere Referenzen

- [1] H. Koinuma, „Chemistry and electronics of oxides from carbon dioxide to perovskite“, *Thin Solid Films* **486**, 2–10 (2005).
- [2] H. Y. Hwang, Y. Iwasa, M. Kawasaki, B. Keimer, N. Nagaosa und Y. Tokura, „Emergent phenomena at oxide interfaces“, *Nat. Mater.* **11**, 103–113 (2012).
- [3] S. Altieri, L. H. Tjeng und G. A. Sawatzky, „Ultrathin oxide films on metals: new physics and new chemistry?“, *Thin Solid Films* **400**, 9–15 (2001).
- [4] S. Okamoto und A. J. Millis, „Electronic reconstruction at an interface between a mott insulator and a band insulator“, *Nature* **428**, 630–633 (2004).
- [5] P. Zubko, S. Gariglio, M. Gabay, P. Ghosez und J.-M. Triscone, „Interface Physics in Complex Oxide Heterostructures“, *Annu. Rev. Condens. Matter Phys.* **2**, 141–165 (2011).
- [6] A. Ohtomo und H. Y. Hwang, „A high-mobility electron gas at the LaAlO₃/SrTiO₃ heterointerface“, *Nature* **427**, 423–426 (2004).
- [7] N. Reyren, S. Thiel, A. D. Caviglia, L. F. Kourkoutis, G. Hammerl, C. Richter, C. W. Schneider, T. Kopp, A.-S. Rüetschi, D. Jaccard, M. Gabay, D. A. Muller, J.-M. Triscone und J. Mannhart, „Superconducting interfaces between insulating oxides“, *Science* **317**, 1196–1199 (2007).
- [8] Z. Iqbal, G. H. Kwei, B. L. Ramakrishna und E. W. Ong, „Structure and bulk superconductivity of BaPb_{0.5}Bi_{0.25}Tl_{0.25}O_{3-δ}“, *Physica C Supercond.* **167**, 369–374 (1990).
- [9] T. Nakamura, S. Kose und T. Sata, „Paramagnetism and Semiconductivity in a Triclinic Perovskite BaBiO₃“, *J. Phys. Soc. Jpn.* **31**, 1284–1284 (1971).
- [10] H. Ikushima und S. Hayakawa, „Electrical properties of BaPbO₃ ceramics“, *Solid State Electron.* **9**, 921–925 (1966).

- [11] T. Nitta, K. Nagase, S. Hayakawa und Y. Iida, „Formation and properties of barium metaplumbate“, *J. Am. Ceram. Soc.* **48**, 642–644 (1965).
- [12] B. Meir, S. Gorol, T. Kopp und G. Hammerl, „Observation of two-dimensional superconductivity in bilayers of BaBiO₃ and BaPbO₃“, *Phys. Rev. B* **96**, 100507 (2017).
- [13] G. Li, B. Yan, R. Thomale und W. Hanke, „Topological nature and the multiple dirac cones hidden in bismuth high- T_c superconductors“, *Sci. Rep.* **5**, 10435 (2015).
- [14] A. W. Sleight, J. L. Gillson und P. E. Bierstedt, „High-temperature superconductivity in the BaPb_{1-x}Bi_xO₃ systems“, *Solid State Commun.* **17**, 27–28 (1975).
- [15] A. W. Sleight, „Superconductive barium-lead-bismuth oxides“, US-Pat. 3932315A (EI Du Pont de Nemours and Co, 13. Jan. 1976).
- [16] D. E. Cox und A. W. Sleight, „Structural studies of the BaPb_{1-x}Bi_xO₃ system“, United States: N. p. , 1–10 (1976).
- [17] B. Yan, M. Jansen und C. Felser, „A large-energy-gap oxide topological insulator based on the superconductor BaBiO₃“, *Nat. Phys.* **9**, 709–711 (2013).
- [18] M. Johnsson und P. Lemmens, „Perovskites and thin films – crystallography and chemistry“, *J. Phys. Condens. Matter* **20**, 264001 (2008).
- [19] Y.-Y. Pai, A. Tylan-Tyler, P. Irvin und J. Levy, „Physics of SrTiO₃ based heterostructures and nanostructures: a review“, *Rep. Prog. Phys.* **81**, 036503 (2018).
- [20] K. Momma und F. Izumi, „VESTA 3 for three-dimensional visualization of crystal, volumetric and morphology data“, *J. Appl. Cryst.* **44**, 1272–1276 (2011).
- [21] N. B. Mahmood und E. K. Al-Shakarchi, „Three techniques used to produce BaTiO₃ fine powder“, *J. Mod. Phys.* **2011**, 1420–1428 (2011).
- [22] M. Binnewies, M. Jäckel, H. Willner und G. Rayner-Canham, *Allgemeine und Anorganische Chemie*, 2. Auflage (Spektrum Akademischer Verlag, Heidelberg, 2011), 854 S.
- [23] M. Barsoum und M. W. Barsoum, *Fundamentals of ceramics* (CRC Press, 27. Nov. 2002), 642 S.
- [24] H. A. Jahn und E. Teller, „Stability of Polyatomic Molecules in Degenerate Electronic States. I. Orbital Degeneracy“, *Proc. Math. Phys. Eng. Sci.* **161**, 220–235 (1937).

- [25] J. Kanamori, „Crystal distortion in magnetic compounds“, J. Appl. Phys. **31**, 14–23 (1960).
- [26] V. M. Goldschmidt, „Die Gesetze der Krystallochemie“, Sci. Nat. **14**, 477–485 (1926).
- [27] Y. Tokura und Y. Tomioka, „Colossal magnetoresistive manganites“, J. Magn. Magn. Mater. **200**, 1–23 (1999).
- [28] H. Y. Hwang, S.-W. Cheong, P. G. Radaelli, M. Marezio und B. Batlogg, „Lattice effects on the magnetoresistance in doped LaMnO_3 “, Phys. Rev. Lett. **75**, 914–917 (1995).
- [29] R. Uvic, „Revised method for the prediction of lattice constants in cubic and pseudocubic perovskites“, J. Am. Ceram. Soc. **90**, 3326–3330 (2007).
- [30] S. Esser, „Verspannungsinduzierte Änderung der elektrischen Eigenschaften von $\text{Sr}_2\text{CoIrO}_6$ Dünnschichten“, Diss. (Universität Augsburg, Augsburg, 2017).
- [31] D. G. Schlom, L.-Q. Chen, X. Pan, A. Schmehl und M. A. Zurbuchen, „A thin film approach to engineering functionality into oxides“, J. Am. Ceram. Soc. **91**, 2429–2454 (2008).
- [32] W. Luo, W. Duan, S. G. Louie und M. L. Cohen, „Structural and electronic properties of n -doped and p -doped SrTiO_3 “, Phys. Rev. B **70**, 214109 (2004).
- [33] M. Kawasaki, K. Takahashi, T. Maeda, R. Tsuchiya, M. Shinohara, O. Ishiyama, T. Yonezawa, M. Yoshimoto und H. Koinuma, „Atomic control of the SrTiO_3 crystal surface“, Science **266**, 1540–1542 (1994).
- [34] G. Koster, B. L. Kropman, G. J. H. M. Rijnders, D. H. A. Blank und H. Rogalla, „Quasi-ideal strontium titanate crystal surfaces through formation of strontium hydroxide“, Appl. Phys. Lett. **73**, 2920–2922 (1998).
- [35] E. J. Tarsa, E. A. Hachfeld, F. T. Quinlan, J. S. Speck und M. Eddy, „Growth-related stress and surface morphology in homoepitaxial SrTiO_3 films“, Appl. Phys. Lett. **68**, 490–492 (1996).
- [36] M. Moreau, A. Marthinsen, S. M. Selbach und T. Tybell, „Strain-phonon coupling in (111)-oriented perovskite oxides“, Phys. Rev. B **96**, 094109 (2017).
- [37] M. Schmidbauer, A. Kwasniewski und J. Schwarzkopf, „High-precision absolute lattice parameter determination of SrTiO_3 , DyScO_3 and NdGaO_3 single crystals“, Acta Crystallogr. B **68**, 8–14 (2012).
- [38] L. Rimai und G. A. deMars, „Electron Paramagnetic Resonance of Trivalent Gadolinium Ions in Strontium and Barium Titanates“, Phys. Rev. **127**, 702–710 (1962).

- [39] P. A. Fleury, J. F. Scott und J. M. Worlock, „Soft Phonon Modes and the 110 K Phase Transition in SrTiO₃“, Phys. Rev. Lett. **21**, 16–19 (1968).
- [40] F. W. Lytle, „X-Ray Diffractometry of Low-Temperature Phase Transformations in Strontium Titanate“, J. Appl. Phys. **35**, 2212–2215 (1964).
- [41] H. Unoki und T. Sakudo, „New ESR evidence for the 65 K anomaly in SrTiO₃“, Phys. Lett. A **32**, 368–369 (1970).
- [42] C. Bhandari und W. R. L. Lambrecht, „Instability of the layered orthorhombic post-perovskite phase of SrTiO₃ and other candidate orthorhombic phases under pressure“, Solid State Commun. **274**, 27–30 (2018).
- [43] V. E. Henrich, G. Dresselhaus und H. J. Zeiger, „Surface defects and the electronic structure of SrTiO₃ surfaces“, Phys. Rev. B **17**, 4908–4921 (1978).
- [44] K. van Benthem, C. Elsässer und R. H. French, „Bulk electronic structure of SrTiO₃: experiment and theory“, J. Appl. Phys. **90**, 6156–6164 (2001).
- [45] B. Reihl, J. G. Bednorz, K. A. Müller, Y. Jugnet, G. Landgren und J. F. Morar, „Electronic structure of strontium titanate“, Phys. Rev. B **30**, 803–806 (1984).
- [46] Y. Aiura, H. Bando, I. Hase, Y. Nishihara, Y. Haruyama und H. Suzuki, „Effects of doping on the electronic structure of La_xSr_{1-x}TiO₃“, Superlattices Microstruct. **21**, 321–325 (1997).
- [47] N. Shanthi und D. D. Sarma, „Electronic structure of electron doped SrTiO₃: SrTiO_{3-δ} and Sr_{1-x}La_xTiO₃“, Phys. Rev. B **57**, 2153–2158 (1998).
- [48] T. Jarlborg, „Tuning of the electronic screening and electron-phonon coupling in doped SrTiO₃ and WO₃“, Phys. Rev. B **61**, 9887–9890 (2000).
- [49] R. Astala und P. D. Bristowe, „A computational study of twist boundary structures in strontium titanate“, J. Phys. Condens. Matter **14**, 13635–13641 (2002).
- [50] T. Higuchi, T. Tsukamoto, N. Sata, M. Ishigame, Y. Tezuka und S. Shin, „Electronic structure of *p*-type SrTiO₃ by photoemission spectroscopy“, Phys. Rev. B **57**, 6978–6983 (1998).
- [51] H. Tanaka, T. Matsumoto, T. Kawai und S. Kawai, „Interaction of oxygen vacancies with O₂ on a reduced SrTiO₃ (100) $\sqrt{5} \times \sqrt{5}$ - R26.6° surface observed by STM“, Surf. Sci. **318**, 29–38 (1994).
- [52] E. Sawaguchi, A. Kikuchi und Y. Kodera, „Dielectric Constant of Strontium Titanate at Low Temperatures“, J. Phys. Soc. Jpn. **17**, 1666–1667 (1962).

- [53] J. F. Schooley, W. R. Hosler und M. L. Cohen, „Superconductivity in semiconducting SrTiO₃“, Phys. Rev. Lett. **12**, 474–475 (1964).
- [54] J. F. Schooley, W. R. Hosler, E. Ambler, J. H. Becker, M. L. Cohen und C. S. Koonce, „Dependence of the superconducting transition temperature on carrier concentration in semiconducting SrTiO₃“, Phys. Rev. Lett. **14**, 305–307 (1965).
- [55] J. Bouchet, F. Bottin, V. Recoules, F. Remus, G. Morard, R. M. Bolis und A. Benuzzi-Mounaix, „*Ab initio* calculations of the B1-B2 phase transition in MgO“, Phys. Rev. B **99**, 094113 (2019).
- [56] W. N. Unertl, *Physical structure*, 1. Auflage (Elsevier, Amsterdam, 6. Dez. 1996), 901 S.
- [57] D. Fritsch, H. Schmidt und M. Grundmann, „Pseudopotential band structure of rocksalt MgO, ZnO, Mg_{1-x}Zn_xO“, Appl. Phys. Lett. **88**, 134104 (2006).
- [58] X. Lingling und D. Min, „Dolomite used as raw material to produce MgO-based expansive agent“, Cem. Concr. Res. **35**, 1480–1485 (2005).
- [59] S. Adachi, *Handbook on physical properties of semiconductors* (Springer Science & Business Media, 30. Apr. 2004), 516 S.
- [60] D. M. Roessler und W. C. Walker, „Electronic spectrum and ultraviolet optical properties of crystalline MgO“, Phys. Rev. **159**, 733–738 (1967).
- [61] N. Daude, C. Jouanin und C. Gout, „Electronic band structure of magnesium and calcium oxides“, Phys. Rev. B **15**, 2399–2405 (1977).
- [62] V. E. Henrich und P. A. Cox, *The surface science of metal oxides* (Cambridge University Press, 14. März 1996), 484 S.
- [63] D. Aswal, K. Muthe, S. Tawde, S. Chodhury, N. Bagkar, A. Singh, S. Gupta und J. Yakhmi, „XPS and AFM investigations of annealing induced surface modifications of MgO single crystals“, J. Cryst. Growth **236**, 661–666 (2002).
- [64] J. L. Schroeder, A. S. Ingason, J. Rosén und J. Birch, „Beware of poor-quality MgO substrates: A study of MgO substrate quality and its effect on thin film quality“, J. Cryst. Growth **420**, 22–31 (2015).
- [65] R. Scholder, K.-W. Ganter, H. Gläser und G. Merz, „Über Alkali- und Erdalkalioxobismutate(V)“, Z. anorg. allg. Chem. **319**, 375–386 (1963).
- [66] A. W. Sleight, „Bismuthates: BaBiO₃ and related superconducting phases“, Physica C Supercond. **514**, 152–165 (2015).

- [67] D. E. Cox und A. W. Sleight, „Crystal structure of $\text{Ba}_2\text{Bi}^{3+}\text{Bi}^{5+}\text{O}_6$ “, *Solid State Commun.* **19**, 969–973 (1976).
- [68] W. T. Fua, M. J. Polderman und F. M. Mulder, „Structural and transport properties of the $\text{BaBi}_{1-x}\text{In}_x\text{O}_3$ system“, *Mater. Res. Bull.* **35**, 1205–1211 (2000).
- [69] D. E. Cox und A. W. Sleight, „Mixed-valent $\text{Ba}_2\text{Bi}^{3+}\text{Bi}^{5+}\text{O}_6$: structure and properties vs temperature“, *Acta Crystallogr. B* **35**, 1–10 (1979).
- [70] G. Thornton und A. J. Jacobson, „A neutron diffraction determination of the structures of $\text{Ba}_2\text{Sb}^{\text{V}}\text{Bi}^{\text{III}}\text{O}_6$ and $\text{Ba}_2\text{Bi}^{\text{V}}\text{Bi}^{\text{III}}\text{O}_6$ “, *Acta Crystallogr. B* **34**, 351–354 (1978).
- [71] S. Pei, J. D. Jorgensen, B. Dabrowski, D. G. Hinks, D. R. Richards, A. W. Mitchell, J. M. Newsam, S. K. Sinha, D. Vaknin und A. J. Jacobson, „Structural phase diagram of the $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{BiO}_3$ system“, *Phys. Rev. B* **41**, 4126–4141 (1990).
- [72] B. J. Kennedy, C. J. Howard, K. S. Knight, Z. Zhang und Q. Zhou, „Structures and phase transitions in the ordered double perovskites $\text{Ba}_2\text{Bi}^{\text{III}}\text{Bi}^{\text{V}}\text{O}_6$ and $\text{Ba}_2\text{Bi}^{\text{III}}\text{Sb}^{\text{V}}\text{O}_6$ “, *Acta Crystallogr. B* **62**, 537–546 (2006).
- [73] L. F. Mattheiss und D. R. Hamann, „Electronic structure of $\text{BaPb}_{1-x}\text{Bi}_x\text{O}_3$ “, *Phys. Rev. B* **28**, 4227–4241 (1983).
- [74] D. T. Marx, P. G. Radaelli, J. D. Jorgensen, R. L. Hitterman, D. G. Hinks, S. Pei und B. Dabrowski, „Metastable behavior of the superconducting phase in the $\text{BaBi}_{1-x}\text{Pb}_x\text{O}_3$ system“, *Phys. Rev. B* **46**, 1144–1156 (1992).
- [75] H. Sakuma, H. Hashizume und A. Yamanaka, „Bi ordering in high-temperature structures of BaBiO_{3-x} “, *Acta Crystallogr. B* **46**, 693–698 (1990).
- [76] L. Jiang, S. V. Levchenko und A. M. Rappe, „Rigorous definition of oxidation states of ions in solids“, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 166403 (2012).
- [77] G. U. Sumanasekera, B. D. Williams, D. V. Baxter und J. P. Carini, „Effects of weak localization and superconducting fluctuations on the frequency dependence of the conductivity in copper-semiconductor sandwiches“, *Phys. Rev. B* **50**, 2606–2621 (1994).
- [78] B. A. Baumert, „Barium potassium bismuth oxide: a review“, *J. Supercond.* **8**, 175–181 (1995).
- [79] M. Braden, W. Reichardt, E. Elkaim, J. P. Lauriat, S. Shiryaev und S. N. Barilo, „Structural distortion in superconducting $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{BiO}_3$ “, *Phys. Rev. B* **62**, 6708–6715 (2000).

- [80] S. M. Heald, D. DiMarzio, M. Croft, M. S. Hegde, S. Li und M. Greenblatt, „X-ray-absorption study of charge-density ordering in $(\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x)\text{BiO}_3$ “, *Phys. Rev. B* **40**, 8828–8833 (1989).
- [81] C. W. Chu, S. Huang und A. W. Sleight, „Hydrostatic pressure effect on T_c of $\text{Ba}_{0.9}\text{K}_{0.1}\text{Pb}_{0.75}\text{Bi}_{0.25}\text{O}_3$ “, *Solid State Commun.* **18**, 977–979 (1976).
- [82] R. J. Cava, B. Batlogg, J. J. Krajewski, R. Farrow, L. W. Rupp, A. E. White, K. Short, W. F. Peck und T. Kometani, „Superconductivity near 30 K without copper: the $\text{Ba}_{0.6}\text{K}_{0.4}\text{BiO}_3$ perovskite“, *Nature* **332**, 814–816 (1988).
- [83] Y.-R. Luo und J.-M. Wu, „BaPbO₃ perovskite electrode for lead zirconate titanate ferroelectric thin films“, *Appl. Phys. Lett.* **79**, 3669–3671 (2001).
- [84] C.-S. Liang, J.-M. Wu und M.-C. Chang, „Ferroelectric BaPbO₃/PbZr_{0.53}Ti_{0.47}/BaPbO₃ heterostructures“, *Appl. Phys. Lett.* **81**, 3624–3626 (2002).
- [85] V. R. R. Medicherla, T. Shripathi und N. P. Lalla, „Electronic structure of BaPbO₃ and Ba₂PbO₄“, *J. Phys. Condens. Matter* **20**, 035219 (2008).
- [86] W. T. Fu, D. Visser und D. J. W. IJdo, „High-resolution neutron powder diffraction study on the structure of BaPbO₃“, *Solid State Commun.* **134**, 647–652 (2005).
- [87] R. D. Shannon und P. E. Bierstedt, „Single-crystal growth and electrical properties of BaPbO₃“, *J. Am. Ceram. Soc.* **53**, 635–636 (1970).
- [88] G. Thornton und A. J. Jacobson, „A powder neutron diffraction determination of the structure of BaPbO₃ at 4.2 K“, *Mater. Res. Bull.* **11**, 837–841 (1976).
- [89] H. Ritter, J. Ihringer, J. K. Maichle, W. Prandl, A. Hoser und A. W. Hewat, „The crystal structure of the prototypic ceramic superconductor BaPbO₃: an X-ray and neutron diffraction study“, *Z. Physik B - Cond. Matter* **75**, 297–302 (1989).
- [90] S. M. Moussa, B. J. Kennedy und T. Vogt, „Structural variants in ABO₃ type perovskite oxides. on the structure of BaPbO₃“, *Solid State Commun.* **119**, 549–552 (2001).
- [91] W. T. Fu, D. Visser, K. S. Knight und D. J. W. IJdo, „High-resolution neutron powder diffraction study on the phase transitions in BaPbO₃“, *J. Solid State Chem.* **180**, 1559–1565 (2007).
- [92] J. R. Hester, C. J. Howard, B. J. Kennedy und R. Macquart, „High-temperature structural studies of SrPbO₃ and BaPbO₃“, *Aust. J. Chem.* **55**, 543–545 (2002).

- [93] P. Goudochnikov und A. J. Bell, „Correlations between transition temperature, tolerance factor and cohesive energy in 2+:4+ perovskites“, *J. Phys. Condens. Matter* **19**, 176201 (2007).
- [94] A. Kumar, A. S. Verma und S. R. Bhardwaj, „Prediction of formability in perovskite-type oxides“, *Open Appl. Phys. J.* **1**, 11–19 (2008).
- [95] D. A. Papaconstantopoulos, A. Pasturel, J. P. Julien und F. Cyrot-Lackmann, „Calculations of the electronic structure and superconducting properties of the Ba(K)Pb(Bi)O₃ system“, *Phys. Rev. B* **40**, 8844–8851 (1989).
- [96] P. B. Allen und W. W. Schulz, „Bloch-Boltzmann analysis of electrical transport in intermetallic compounds: ReO₃, BaPbO₃, CoSi₂, and Pd₂Si“, *Phys. Rev. B* **47**, 14434–14439 (1993).
- [97] V. V. Bogatko und Y. N. Venevtsev, „Superconductivity of BaPbO₃“, *Sov. Phys. - Solide State* **22:4** (1980).
- [98] A. A. Verheijen, W. T. Fu, J. M. van Ruitenbeek, A. Smits, Q. Xu und L. J. de Jongh, „Absence of superconductivity in BaPbO₃“, *Solid State Commun.* **71**, 573–574 (1989).
- [99] T. D. Thanh, A. Koma und S. Tanaka, „Superconductivity in the BaPb_{1-x}Bi_xO₃ system“, *Appl. Phys.* **22**, 205–212 (1980).
- [100] B. Batlogg, „Superconductivity in Ba(Pb,Bi)O₃“, *Physica* **126B**, 275–279 (1984).
- [101] E. Climent-Pascual, N. Ni, S. Jia, Q. Huang und R. J. Cava, „Polymorphism in BaPb_{1-x}Bi_xO₃ at the superconducting composition“, *Phys. Rev. B* **83**, 174512 (2011).
- [102] B. Batlogg, R. J. Cava, L. W. Rupp, A. M. Muzsca, J. J. Krajewski, J. P. Remeika, W. F. Peck, A. S. Cooper und G. P. Espinosa, „Density of states and isotope effect in BiO superconductors: evidence for nonphonon mechanism“, *Phys. Rev. Lett.* **61**, 1670–1673 (1988).
- [103] A. W. Sleight und D. E. Cox, „Symmetry of superconducting compositions in the BaPb_{1-x}Bi_xO₃ system“, *Solid State Commun.* **58**, 347–350 (1986).
- [104] K. Fueki, Y. Idemoto und T. Yamauchi, „Defect chemistry of BaPb_{1-x}Bi_xO₃“, *Physica C Supercond.* **190**, 6–8 (1991).
- [105] J. B. Boyce, F. G. Bridges, T. Claeson, T. H. Geballe, G. G. Li und A. W. Sleight, „Local structure of BaBi_xPb_{1-x}O₃ determined by x-ray-absorption spectroscopy“, *Phys. Rev. B* **44**, 6961–6972 (1991).

- [106] W. R. Flavell, M. Mian, A. J. Roberts, J. F. Howlett, M. M. Sarker, P. L. Wincott, R. L. Bilsborrow und G. van Dorssen, „EXAFS studies of $\text{SrSn}_{1-x}\text{Sb}_x\text{O}_3$ and $\text{BaPb}_{1-x}\text{Bi}_x\text{O}_3$ “, *J. Mater. Chem.* **7**, 357–364 (1997).
- [107] P. Giraldo-Gallo, Y. Zhang, C. Parra, H. C. Manoharan, M. R. Beasley, T. H. Geballe, M. J. Kramer und I. R. Fisher, „Stripe-like nanoscale structural phase separation in superconducting $\text{BaPb}_{1-x}\text{Bi}_x\text{O}_3$ “, *Nat. Commun.* **6**, 1–9 (2015).
- [108] Y. Khan, K. Nahm, M. Rosenberg und H. Willner, „Superconductivity and semiconductor-metal phase transition in the system $\text{BaPb}_{1-x}\text{Bi}_x\text{O}_3$ “, *Phys. Status Solidi A* **39**, 79–88 (1977).
- [109] K. Kitazawa, S. Uchida und S. Tanaka, „A new density of states model of $\text{BaPb}_{1-x}\text{Bi}_x\text{O}_3$ “, *Physica B+C* **135**, 505–510 (1985).
- [110] K. Kitazawa, M. Naito, T. Itoh und S. Tanaka, „Electron-phonon coupling constant of $\text{BaPb}_{1-x}\text{Bi}_x\text{O}_3$ as estimated from the McMillan equation“, *J. Phys. Soc. Jpn.* **54**, 2682–2689 (1985).
- [111] O. Navarro, „Thermodynamic properties of the superconductors $\text{BaPb}_{0.7}\text{Bi}_{0.3}\text{O}_3$ and $\text{Ba}_{0.7}\text{K}_{0.3}\text{BiO}_3$ using Eliashberg theory“, *J. Low Temp. Phys.* **105**, 855–860 (1996).
- [112] R. J. Cava, „Oxide superconductors“, *J. Am. Ceram. Soc.* **83**, 5–28 (2000).
- [113] K. Wandelt, *Surface and interface science*, 4. Auflage (Wiley-VCH, Berlin, 2013).
- [114] K. Inumaru, H. Miyata und S. Yamanaka, „Partial suppression of structural distortion in epitaxially grown BaBiO_3 thin films“, *Phys. Rev. B* **78**, 132507 (2008).
- [115] L. R. Gilbert, R. Messier und R. Roy, „Superconducting $\text{BaPb}_{1-x}\text{Bi}_x\text{O}_3$ ceramic films prepared by R.F. sputtering“, *Thin Solid Films* **54**, 129–136 (1978).
- [116] M. Suzuki, T. Murakami und T. Inamura, „Preparation of superconducting $\text{BaPb}_{1-x}\text{Bi}_x\text{O}_3$ thin films by RF sputtering“, *Jpn. J. Appl. Phys.* **19**, 231–234 (1980).
- [117] Y. Hidaka, M. Suzuki, T. Murakami und T. Inamura, „Effects of a lead oxide annealing atmosphere on the superconducting properties of $\text{BaPb}_{0.7}\text{Bi}_{0.3}\text{O}_3$ sputtered films“, *Thin Solid Films* **106**, 311–319 (1983).
- [118] M. Suzuki, „Properties of $\text{BaPb}_{1-x}\text{Bi}_x\text{O}_3$ as observed in single-crystal thin films“, *Jpn. J. Appl. Phys.* **32**, 2640–2647 (1993).
- [119] K. H. Kim, C. U. Jung, T. W. Noh und S. C. Kim, „Optical indirect transitions of semiconducting $\text{BaPb}_{1-x}\text{Bi}_x\text{O}_3$ “, *Phys. Rev. B* **55**, 15393–15396 (1997).

- [120] H. Kawasoko, „Two-dimensional Superconductivity in BaBiO₃/BaPbO₃ Heterostructure“, Diss. (University of Tokyo, Tokyo, 2016).
- [121] J. Kim, J. Mun, B. Kim, H. G. Lee, D. Lee, T. H. Kim, S. Lee, M. Kim, S. H. Chang und T. W. Noh, „Coherent-strained superconducting BaPb_{1-x}Bi_xO₃ thin films by interface engineering“, *Phys. Rev. Mater.* **3**, 113606 (2019).
- [122] S. Di Napoli, C. Helman, A. M. Llois und V. Vildosola, „Two-dimensional superconductivity driven by interfacial electron-phonon coupling in a BaPbO₃/BaBiO₃ bilayer“, *Phys. Rev. B* **103**, 174509 (2021).
- [123] V. L. Berezinskii, „Destruction of long-range order in one-dimensional and two-dimensional systems possessing a continuous symmetry group I. quantum systems“, *Sov. Phys. JETP* **32**, 493–500 (1971).
- [124] V. L. Berezinskii, „Destruction of long-range order in one-dimensional and two-dimensional systems possessing a continuous symmetry group II. quantum systems“, *Sov. Phys. JETP* **34**, 610–616 (1972).
- [125] J. M. Kosterlitz und D. J. Thouless, „Ordering, metastability and phase transitions in two-dimensional systems“, *J. Phys. C Solid State Phys.* **6**, 1181–1203 (1973).
- [126] J. M. Kosterlitz, „The critical properties of the two-dimensional xy model“, *J. Phys. C Solid State Phys.* **7**, 1046–1060 (1974).
- [127] H. Kroemer, „Quasi-electric fields and band offsets: Teaching electrons new tricks“, Nobel Lecture, 8. Dez. 2000.
- [128] J. Mannhar und A. Herringer, „The interface is still the device“, *Nat. Mater.* **11**, 91 (2012).
- [129] K. L. Choy, „Chemical vapour deposition of coatings“, *Prog. Mater. Sci.* **48**, 57–170 (2003).
- [130] T. Y. Hsieh, K. H. Jung, D. L. Kwong und S. K. Lee, „Silicon homoepitaxy by rapid thermal processing chemical vapor deposition (RTPCVD)—a review“, *J. Electrochem. Soc.* **138**, 1188–1207 (1991).
- [131] S. Rafique, M. R. Karim, J. M. Johnson, J. Hwang und H. Zhao, „LPCVD homoepitaxy of Si doped β-Ga₂O₃ thin films on (010) and (001) substrates“, *Appl. Phys. Lett.* **112**, 052104 (2018).
- [132] J. Narayan und B. C. Larson, „Domain epitaxy: a unified paradigm for thin film growth“, *J. Appl. Phys.* **93**, 278–285 (2003).

- [133] S. Kaneko, T. Nagano, T. Ito, M. Yasui, T. Ozawa, M. Soga, Y. Motoizumi, H. Funakubo und M. Yoshimoto, „Effect of point defects on lattice constant in MgO thin film deposited on silicon (001) substrate: ab initio method approach using ABINIT code“, *Eur. Phys. J. Appl. Phys.* **58**, 10302 (2012).
- [134] J. Narayan, P. Tiwari, X. Chen, J. Singh, R. Chowdhury und T. Zheleva, „Epitaxial growth of TiN films on (100) silicon substrates by laser physical vapor deposition“, *Appl. Phys. Lett.* **61**, 1290–1292 (1992).
- [135] F. C. Frank und J. H. Van der Merw, „One-dimensional dislocations - III. influence of the second harmonic term in the potential representation, on the properties of the model“, *Proc. R. Soc. Lond. A* **200**, 125–134 (1949).
- [136] S. Metev und K. Meteva, „Nucleation and growth of laser-plasma deposited thin films“, *Appl. Surf. Sci.* **43**, 402–408 (1989).
- [137] W. D. Callister, D. G. Rethwisch und D. G. Jr. Rethwisch, *Fundamentals of materials science and engineering*, 3. Auflage (John Wiley & Sons, Hoboken, NJ, 2008), 882 S.
- [138] M. Copel, M. C. Reuter, E. Kaxiras und R. M. Tromp, „Surfactants in epitaxial growth“, *Phys. Rev. Lett.* **63**, 632–635 (1989).
- [139] M. Volmer und A. Weber, „Keimbildung in übersättigten Gebilden“, *Z. Phys. Chem.* **119U**, 277–301 (1926).
- [140] F. C. Frank, J. H. van der Merwe und N. F. Mott, „One-dimensional dislocations. I. static theory“, *Proc. R. Soc. Lond. A Math. Phys. Sci.* **198**, 205–216 (1949).
- [141] F. C. Frank, J. H. Van Der Merwe und N. F. Mott, „One-dimensional dislocations. II. misfitting monolayers and oriented overgrowth“, *Proc. R. Soc. Lond. A Math. Phys. Sci.* **198**, 216–225 (1949).
- [142] I. N. Stranski und L. Krastanow, „Zur Theorie der orientierten Ausscheidung von Ionenkristallen aufeinander“, *Monatsh. Chem.* **71**, 351–364 (1937).
- [143] I. Markov und S. Stoyanov, „Mechanisms of epitaxial growth“, *Contemp. Phys.* **28**, 267–320 (1987).
- [144] M. Ohring, *Materials science of thin films*, 2. Auflage (Academic Press, San Diego, 2002), 794 S.
- [145] D. L. Smith, *Thin film deposition*, Internat. ed. (McGraw-Hill, New York u.a., 1995), 616 S.
- [146] T. H. Maiman, „Stimulated optical radiation in ruby“, *Nature* **187**, 493–494 (1960).

- [147] X. D. Wu, D. Dijkkamp, S. B. Ogale, A. Inam, E. W. Chase, P. F. Miceli, C. C. Chang, J. M. Tarascon und T. Venkatesan, „Epitaxial ordering of oxide superconductor thin films on (100)SrTiO₃ prepared by pulsed laser evaporation“, *Appl. Phys. Lett.* **51**, 861–863 (1987).
- [148] R. Ramesh, K. Luther, B. Wilkens, D. L. Hart, E. Wang, J. M. Tarascon, A. Inam, X. D. Wu und T. Venkatesan, „Epitaxial growth of ferroelectric bismuth titanate thin films by pulsed laser deposition“, *Appl. Phys. Lett.* **57**, 1505–1507 (1990).
- [149] D. K. Fork, D. B. Fenner und T. H. Geballe, „Growth of epitaxial PrO₂ thin films on hydrogen terminated Si (111) by pulsed laser deposition“, *J. Appl. Phys.* **68**, 4316–4318 (1990).
- [150] O. Auciello und A. Kingon, „A critical review of physical vapor deposition techniques for the synthesis of ferroelectric thin films“, *IEEE*, 320–331 (1992).
- [151] R. K. Singh und J. Narayan, „Pulsed-laser evaporation technique for deposition of thin films: physics and theoretical model“, *Phys. Rev. B* **41**, 8843–8859 (1990).
- [152] H. M. Christen und G. Eres, „Recent advances in pulsed-laser deposition of complex oxides“, *J. Phys. Condens. Matter* **20**, 264005 (2008).
- [153] R. Eason, *Pulsed laser deposition of thin films: applications-led growth of functional materials* (John Wiley & Sons, 14. Dez. 2007), 708 S.
- [154] D. P. Norton, „Synthesis and properties of epitaxial electronic oxide thin-film materials“, *Mater. Sci. Eng. R Rep.* **43**, 139–247 (2004).
- [155] K. Boldyreva, „Wachstum und Struktur-Eigenschaften-Beziehungen von epitaktischen antiferroelektrisch/ferroelektrischen oxidischen Multilagen“, Diss. (Martin-Luther-Universität Halle-Wittenberg, Halle an der Saale, 2007).
- [156] W. Demtröder, *Experimentalphysik 3*, Springer-Lehrbuch (Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 2010).
- [157] A. Leitner, D. Olaya, C. T. Rogers und J. C. Price, „Upper critical field and fluctuation conductivity in Nb-doped strontium titanate thin films“, *Phys. Rev. B* **62**, 1408–1413 (2000).
- [158] M. Birkenholz, *Thin film analysis by x-ray scattering* (Wiley-VCH, Weinheim, 2006).
- [159] M. von Ardenne, „Das Elektronen-Rastermikroskop“, *Z. Physik* **109**, 553–572 (1938).

- [160] G. Binnig, C. F. Quate und C. Gerber, „Atomic Force Microscope“, *Phys. Rev. Lett.* **56**, 930–933 (1986).
- [161] F. J. D. Giessibl, „Vorrichtung zum berührungslosen Abtasten einer Oberfläche und Verfahren dazu“, dt. Pat. 19633546A1 (Franz J Dr Giesibl, 26. Feb. 1998).
- [162] F. J. Giessibl, „The qPlus sensor, a powerful core for the atomic force microscope“, *Rev. Sci. Instrum.* **90**, 011101 (2019).
- [163] M.-H. Whangbo und S. N. Magonov, *Surface analysis with STM and AFM: experimental and theoretical aspects of image analysis* (John Wiley & Sons, 26. Sep. 2008), 339 S.
- [164] R. Wiesendanger und W. Roland, *Scanning probe microscopy and spectroscopy: methods and applications* (Cambridge University Press, Cambridge, 29. Sep. 1994), 664 S.
- [165] D. Nečas, P. Klapetek, C. Anderson, M. Siler, J. Bilek, N. Ocelic, R. Zitko, L. Chvátal, S. Neumann, J. Hořák, A. Kovalev, O. Davies, R. Würdemann, D. Kähler, M. Valtr, M. Hasoň, P. Rahe, M. Caldwell, A. Gruzdev, D. Bratashov, F. Bianco, L. Somers, V. Salajka, A. Campbellova, L. Fricke, J. Veselý, G. Gallizia, S. Grover, N. Levy, V. Barboza, J. Schwart, C. Bühler, E. Ryabov, P. Grolich, S. Ziberna, A. Kikaxa, F. Kling und R. Pukkoek, *Gwyddion*, Version 2.55, (2019).
- [166] P. Willmott, *An introduction to synchrotron radiation*, 1. Auflage (John Wiley & Sons, Singapore, 2011).
- [167] S. Hunklinger, *Festkörperphysik* (De Gruyter, 16. Dez. 2009).
- [168] N. Ashcroft und D. Mermin, *Solid state physics* (Holt, Rinehart und Winston, United States of America, 1976).
- [169] R. J. Kennedy und P. A. Stampe, „Reciprocal space mapping of epitaxial MgO films on SrTiO₃“, *J. Cryst. Growth* **207**, 200–205 (1999).
- [170] U. Pietsch, V. Holy und T. Baumbach, *High-resolution X-ray scattering: from thin films to lateral nanostructures* (Springer Science & Business Media, 27. Aug. 2004), 432 S.
- [171] M. Krumrey, M. Hoffmann und M. Kolbe, „Schichtdickenbestimmung mit Röntgenreflektometrie“, *PTB Mitteilungen* **115**, 38–40 (2005).
- [172] H. Kiessig, „Interferenz von Röntgenstrahlen an dünnen Schichten“, *Ann. Phys.* **402**, 769–788 (1931).
- [173] L. G. Parratt, „Surface studies of solids by total reflection of X-rays“, *Phys. Rev.* **95**, 359–369 (1954).

- [174] L. G. Parratt und C. F. Hempstead, „Anomalous dispersion and scattering of X-rays“, *Phys. Rev.* **94**, 1593–1600 (1954).
- [175] J. Als-Nielsen und D. McMorrow, *Elements of modern X-ray physics*, 1. Auflage (Wiley, 18. März 2011).
- [176] PANalytical, *X'Pert Reflectivity*, Version 1.3a, Almelo, (2011).
- [177] N. Yi, S. Wang, Z. Duan, K. Wang, Q. Song und S. Xiao, „Tailoring the performances of lead halide perovskite devices with electron-beam irradiation“, *Adv. Mater.* **29**, 1701636 (2017).
- [178] L. F. Thompson, C. G. Willson und M. J. Bowden, Hrsg., *Introduction to microlithography: theory, materials, and processing*, Bd. 219, ACS Symposium Series (American Chemical Society, Washington, DC, 3. Mai 1983).
- [179] Delta Mask, *CleWin*, Version 2.82, Delta Mask / WieWeb software, (1996).
- [180] S. Swann, „Magnetron sputtering“, *Phys. Technol.* **19**, 67–75 (1988).
- [181] Ion Tech Inc, *Ion source manual*, (1991).
- [182] Quantum Design, *Physical property measurement system, hardware manual, part number 1070-150, rev. B6*, Seventh edition (PPMS Hardware Manual, San Diego, 2011).
- [183] Quantum Design, *Electrical transport option (ETO) user's manual, part number 1084-700, B0*, Third edition (PPMS Hardware Manual, San Diego, 2013).
- [184] J. S. Dugdale, *The Electrical Properties of Disordered Metals*, 1. Auflage (Cambridge University Press, 1995), 240 S.
- [185] P. Drude, „Zur Elektronentheorie der Metalle; II. Teil. Galvanomagnetische und thermomagnetische Effecte“, *Ann. Phys.* **308**, 369–402 (1900).
- [186] I. Lifshits, *Quantum theory of solids*, Advances in Science and Technology in the USSR (Mir, Moscow, 1982).
- [187] N. Mott und W. Twose, „The theory of impurity conduction“, *Adv. Phys.* **10**, 107–163 (1961).
- [188] A. Sommerfeld, „Zur Elektronentheorie der Metalle auf Grund der Fermischen Statistik“, *Z. Physik* **47**, 1–32 (1928).
- [189] A. Bid, A. Bora und A. K. Raychaudhuri, „Temperature dependence of the resistance of metallic nanowires of diameter ≥ 15 nm: applicability of Bloch-Grüneisen theorem“, *Phys. Rev. B* **74**, 035426 (2006).
- [190] R. A. Matula, „Electrical Resistivity of Copper, Gold, Palladium, and Silver“, *J. Phys. Chem. Ref. Data* **8**, 1147–1298 (1979).

- [191] S. Kasap und P. Capper, Hrsg., *Electronic and photonic materials* (Springer International Publishing, Cham, 2017).
- [192] M. Razeghi, *Fundamentals of solid state engineering*, 4. Auflage (Springer International Publishing AG, 2019).
- [193] N. P. Breznay, H. Volker, A. Palevski, R. Mazzarello, A. Kapitulnik und M. Wuttig, „Weak antilocalization and disorder-enhanced electron interactions in annealed films of the phase-change compound GeSb_2Te_4 “, *Phys. Rev. B* **86**, 205302 (2012).
- [194] S. Jana, T. Senapati und D. Samal, „Evidence for spin-orbit and $e-e$ Coulomb interaction from a magnetotransport study on $\text{CaCu}_3\text{Ru}_4\text{O}_{12}$ thin films“, *Phys. Rev. B* **103**, 245109 (2021).
- [195] J. Hu und T. F. Rosenbaum, „Classical and quantum routes to linear magnetoresistance“, *Nat. Mater.* **7**, 697–700 (2008).
- [196] H. Marom und M. Eizenberg, „The temperature dependence of resistivity in thin metal films“, *J. Appl. Phys.* **96**, 3319–3323 (2004).
- [197] E. H. Sondheimer, „The mean free path of electrons in metals“, *Adv. Phys.* **50**, 499–537 (2001).
- [198] K. Fuchs, „The conductivity of thin metallic films according to the electron theory of metals“, *Math. Proc. Cambridge Philos. Soc.* **34**, 100–108 (1938).
- [199] H. J. Juretschke, „Mean free path and boundary influences in the metallic field effect“, *Surf. Sci.* **2**, 40–47 (1964).
- [200] H. J. Juretschke, „Electrical conductivity of thin metallic films with unlike surfaces“, *J. Appl. Phys.* **37**, 435–435 (1966).
- [201] H. Hoffmann und J. Vancea, „Critical assessment of thickness-dependent conductivity of thin metal films“, *Thin Solid Films* **85**, 147–167 (1981).
- [202] Y. Namba, „Resistivity and temperature coefficient of thin metal films with rough surface“, *Jpn. J. Appl. Phys.* **9**, 1326–1329 (1970).
- [203] D. J. Thouless, „Maximum metallic resistance in thin wires“, *Phys. Rev. Lett.* **39**, 1167–1169 (1977).
- [204] P. W. Anderson, „Absence of diffusion in certain random lattices“, *Phys. Rev.* **109**, 1492–1505 (1958).
- [205] E. Abrahams, *50 years of Anderson localization* (World Scientific, 2010), 610 S.

- [206] D. Vollhardt, „Der Metall-Isolator Übergang in ungeordneten Systemen“, in *16. Ferienkurs Unordnungsphänomene in Festkörpern: vom 4. bis 15. März 1985 in der Kernforschungsanlage Jülich*, hrsg. von W. Kinzel und H. Maletta (Kernforschungsanlage Jülich GmbH, Institut für Festkörperforschung, Jülich, 1985), S. 261–275.
- [207] P. A. Lee und T. V. Ramakrishnan, „Disordered electronic systems“, *Rev. Mod. Phys.* **57**, 287–337 (1985).
- [208] G. Bergmann, „Laufzeitexperimente mit Leitungselektronen – eine Anwendung der schwachen Lokalisierung“, *Phys. J.* **38**, 340–344 (1982).
- [209] G. Bergmann, „Weak localization in thin films: a time-of-flight experiment with conduction electrons“, *Phys. Rep.* **107**, 1–58 (1984).
- [210] J. J. Lin und J. P. Bird, „Recent experimental studies of electron dephasing in metal and semiconductor mesoscopic structures“, *J. Phys. Condens. Matter* **14**, R501–R596 (2002).
- [211] R. Rosenbaum, „Superconducting fluctuations and magnetoconductance measurements of thin films in parallel magnetic fields“, *Phys. Rev. B* **32**, 2190–2199 (1985).
- [212] M. W. Wu, J. H. Jiang und M. Q. Weng, „Spin dynamics in semiconductors“, *Phys. Rep.* **493**, 61–236 (2010).
- [213] L. Petersen und P. Hedegård, „A simple tight-binding model of spin-orbit splitting of sp-derived surface states“, *Surf. Sci.* **459**, 49–56 (2000).
- [214] J. Fabian, A. Matos-Abiague, C. Ertler, P. Stano und I. Zutic, „Semiconductor Spintronics“, *Acta Phys. Slovaca* **57**, 1–343 (2007).
- [215] P. D. Dresselhaus, C. M. A. Papavassiliou, R. G. Wheeler und R. N. Sacks, „Observation of spin precession in GaAs inversion layers using antilocalization“, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 106–109 (1992).
- [216] G. Dresselhaus, „Spin-orbit coupling effects in zinc blende structures“, *Phys. Rev.* **100**, 580–586 (1955).
- [217] Y. A. Bychkov und E. I. Rashba, „Oscillatory effects and the magnetic susceptibility of carriers in inversion layers“, *J. Phys. C Solid State Phys.* **17**, 6039–6045 (1984).
- [218] L. Zhu, T. Zhang, G. Chen und H. Chen, „Huge Rashba-type spin-orbit coupling in binary hexagonal PX nanosheets (X = As, Sb, and Bi)“, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **20**, 30133–30139 (2018).

- [219] I. Žutić, J. Fabian und S. Das Sarma, „Spintronics: Fundamentals and applications“, *Rev. Mod. Phys.* **76**, 323–410 (2004).
- [220] G. L. Bir, G. Aronov und G. E. Pikus, „Spin relaxation of electrons due to scattering by holes“, *Sov. Phys. JETP* **42**, 705–712 (1975).
- [221] M. I. D'yakonov und V. I. Perel', „Optical orientation in a system of electrons and lattice nuclei in semiconductors. Theory“, *Sov. Phys. JETP* **38**, 177–183 (1974).
- [222] R. J. Elliott, „Theory of the effect of spin-orbit coupling on magnetic resonance in some semiconductors“, *Phys. Rev.* **96**, 266–279 (1954).
- [223] Y. Yafet, „G factors and spin-lattice relaxation of conduction electrons“, in *Solid state physics*, Bd. 14, hrsg. von F. Seitz und D. Turnbull (Academic Press, 1. Jan. 1963), S. 1–98.
- [224] Y. Yafet, „Conduction electron spin relaxation in the superconducting state“, *Phys. Lett. A* **98**, 287–290 (1983).
- [225] A. Kiss, L. Szolnoki und F. Simon, „The Elliott-Yafet theory of spin relaxation generalized for large spin-orbit coupling“, *Sci. Rep.* **6**, 22706 (2016).
- [226] M. I. D'yakonov, „Spin orientation of electrons associated with the interband absorption of light in semiconductors“, *Sov. Phys. JETP* **33**, 1053–1059 (1971).
- [227] S. Geier und G. Bergmann, „Residual atomic behavior of (sp)-impurities in a Mg host“, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 2520–2523 (1992).
- [228] P. Boross, B. Dóra, A. Kiss und F. Simon, „A unified theory of spin-relaxation due to spin-orbit coupling in metals and semiconductors“, *Sci. Rep.* **3**, 3233 (2013).
- [229] J. Ryu, M. Kohda und J. Nitta, „Observation of the D'yakonov-Perel' spin relaxation in single-crystalline Pt thin films“, *Phys. Rev. Lett.* **116**, 256802 (2016).
- [230] R. Freeman, A. Zholud, Z. Dun, H. Zhou und S. Urazhdin, „Evidence for Dyakonov-Perel-like Spin Relaxation in Pt“, *Phys. Rev. Lett.* **120**, 067204 (2018).
- [231] L. Zhang, X. Jiang, X. Xu und X. Hong, „Abrupt enhancement of spin-orbit scattering time in ultrathin semimetallic SrIrO₃ close to the metal-insulator transition“, *APL Mater.* **8**, 051108 (2020).
- [232] S. Hikami, A. I. Larkin und Y. Nagaoka, „Spin-orbit interaction and magnetoresistance in the two dimensional random system“, *Prog. Theor. Phys.* **63**, 707–710 (1980).

- [233] S. V. Iordanskii, Y. B. Lyanda-Geller und G. E. Pikus, „Weak localization in quantum wells with spin-orbit interaction“, JETP Lett. **60**, 199–203 (1994).
- [234] R. Kubo, „Statistical-mechanical theory of irreversible processes. I. General theory and simple applications to magnetic and conduction problems“, J. Phys. Soc. Jpn. **12**, 570–586 (1957).
- [235] Wolfram Alpha, *Puiseux Serie, digamma(1/2+x) series - Wolfram Alpha*, <https://www.wolframalpha.com/input?i=digamma%281%2F2%2Bx%29> (besucht am 20. 04. 2022).
- [236] G. Bergmann, „Quantum corrections to the resistance in two-dimensional disordered superconductors above T_c : Al, Sn and amorphous $\text{Bi}_{0.9}\text{Tl}_{0.1}$ “, Phys. Rev. B **29**, 6114–6128 (1984).
- [237] C. J. Lin, X. Y. He, J. Liao, X. X. Wang, V. S. IV, W. M. Yang, T. Guan, Q. M. Zhang, L. Gu, G. Y. Zhang, C. G. Zeng, X. Dai, K. H. Wu und Y. Q. Li, „Parallel field magnetoresistance in topological insulator thin films“, Phys. Rev. B **88**, 041307 (2013).
- [238] Y. Aharonov und D. Bohm, „Significance of electromagnetic potentials in the quantum theory“, Phys. Rev. **115**, 485–491 (1959).
- [239] B. L. Altshuler und A. G. Aronov, „Magnetoresistance of thin films and of wires in a longitudinal magnetic field“, JETP Lett. **33**, 499–501 (1981).
- [240] M. E. Gershenson, B. N. Gubankov und Y. E. Zhuravlev, „Effects of "weak" localization and of electron-electron interaction in thin copper and silver films“, JETP Lett. **56**, 1362–1369 (1982).
- [241] S. Chatterjee, S. Khalid, H. S. Inbar, A. Goswami, F. C. de Lima, A. Sharan, F. P. Sabino, T. L. Brown-Heft, Y.-H. Chang, A. V. Fedorov, D. Read, A. Janotti und C. J. Palmström, „Weak antilocalization in quasi-two-dimensional electronic states of epitaxial LuSb thin films“, Phys. Rev. B **99**, 125134 (2019).
- [242] V. K. Dugaev und D. Khmel'nitzkii, „Magnetoresistance of metal films with low impurity concentrations in a parallel magnetic field“, Sov. Phys. JETP **59**, 1038–1041 (1984).
- [243] C. W. J. Beenakker und H. van Houten, „Boundary scattering and weak localization of electrons in a magnetic field“, Phys. Rev. B **38**, 3232–3240 (1988).

- [244] S. Maekawa und H. Fukuyama, „Magnetoresistance in two-dimensional disordered systems: effects of zeeman splitting and spin-orbit scattering“, *J. Phys. Soc. Jpn.* **50**, 2516–2524 (1981).
- [245] W. C. McGinnis und P. M. Chaikin, „Electron localization and interaction effects in palladium and palladium-gold films“, *Phys. Rev. B* **32**, 6319–6330 (1985).
- [246] S. I. Dorozhkin, A. A. Kapustin und S. S. Murzin, „Observation of crossover from weak localization to antilocalization in the temperature dependence of the resistance of a two-dimensional system with spin-orbit interaction“, *JETP Lett.* **97**, 149–154 (2013).
- [247] A. Carl, G. Dumpich und D. Hallfarth, „Antilocalization and electron-electron interaction in thin granular palladium-carbon mixture films“, *Phys. Rev. B* **39**, 3015–3020 (1989).
- [248] S.-P. Chiu, J. G. Lu und J.-J. Lin, „Quantum-interference transport through surface layers of indium-doped ZnO nanowires“, *Nanotechnology* **24**, 245203 (2013).
- [249] L. Al'tshuler, A. G. Aronov, A. I. Larkin und D. Khmel'nitskii, „Anomalous magnetoresistance in semiconductors“, *Sov. Phys. JETP* **54**, 411–419 (1981).
- [250] P. A. Lee und T. V. Ramakrishnan, „Magnetoresistance of weakly disordered electrons“, *Phys. Rev. B* **26**, 4009–4012 (1982).
- [251] D. V. Baxter, R. Richter, M. L. Trudeau, R. Cochrane und J. Strom-Olsen, „Fitting to magnetoresistance under weak localization in three dimensions“, *J. Phys. France* **50**, 1673–1688 (1989).
- [252] D. Neumaier, M. Schlapps, U. Wurstbauer, J. Sadowski, M. Reinwald, W. Wegscheider und D. Weiss, „Electron-electron interaction in one- and two-dimensional ferromagnetic (Ga,Mn)As“, *Phys. Rev. B* **77**, 041306 (2008).
- [253] J. J. Lin und N. Giordano, „Localization and electron-electron interaction effects in thin Au-Pd films and wires“, *Phys. Rev. B* **35**, 545–556 (1987).
- [254] D. Neumaier, M. Turek, U. Wurstbauer, A. Vogl, M. Utz, W. Wegscheider und D. Weiss, „All-electrical measurement of the density of states in (Ga,Mn)As“, *Phys. Rev. Lett.* **103**, 087203 (2009).
- [255] D. S. McLachlan, „Weak-localization, spin-orbit, and electron-electron interaction effects in two- and three-dimensional bismuth films“, *Phys. Rev. B* **28**, 6821–6832 (1983).

- [256] J. J. Lin und C. Y. Wu, „Electron-electron interaction and weak-localization effects in Ti-Al alloys“, *Phys. Rev. B* **48**, 5021–5024 (1993).
- [257] G. Bergmann, „Inelastic life-time of the conduction electrons in some noble metal films“, *Z. Physik B Cond. Matter* **48**, 5–16 (1982).
- [258] V. M. Galitski und A. I. Larkin, „Superconducting fluctuations at low temperature“, *Phys. Rev. B* **63**, 174506 (2001).
- [259] J. Bardeen, L. N. Cooper und J. R. Schrieffer, „Theory of Superconductivity“, *Phys. Rev.* **108**, 1175–1204 (1957).
- [260] A. Sidorenko, Hrsg., *Fundamentals of superconducting nanoelectronics*, NanoScience and Technology (Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 2011).
- [261] L. G. Aslamazov und A. I. Larkin, „The influence of fluctuation pairing of electrons on the conductivity of normal metal“, *Phys. Lett. A* **26**, 238–239 (1968).
- [262] K. Maki, „Critical fluctuation of the order parameter in a superconductor. I“, *Prog. Theor. Phys.* **40**, 193–200 (1968).
- [263] R. S. Thompson, „Microwave, flux flow, and fluctuation resistance of dirty type-II superconductors“, *Phys. Rev. B* **1**, 327–333 (1970).
- [264] V. V. Dorin, R. A. Klemm, A. A. Varlamov, A. I. Buzdin und D. V. Livanov, „Fluctuation conductivity of layered superconductors in a perpendicular magnetic field“, *Phys. Rev. B* **48**, 12951–12965 (1993).
- [265] A. Glatz, A. A. Varlamov und V. M. Vinokur, „Fluctuation spectroscopy of disordered two-dimensional superconductors“, *Phys. Rev. B* **84**, 104510 (2011).
- [266] A. Glatz, A. A. Varlamov und V. M. Vinokur, „Quantum fluctuations and dynamic clustering of fluctuating Cooper pairs“, *EPL* **94**, 47005 (2011).
- [267] T. I. Baturina, S. V. Postolova, A. Y. Mironov, A. Glatz, M. R. Baklanov und V. M. Vinokur, „Superconducting phase transitions in ultrathin TiN films“, *EPL* **97**, 17012 (2012).
- [268] X. Zhang, A. E. Lita, M. Sidorova, V. B. Verma, Q. Wang, S. W. Nam, A. Semenov und A. Schilling, „Superconducting fluctuations and characteristic time scales in amorphous WSi“, *Phys. Rev. B* **97**, 174502 (2018).
- [269] W. Buckel und R. Kleiner, *Superconductivity: Fundamentals and Applications*, 2. Auflage (Wiley-VCH, Weinheim, 2004).

- [270] E. Zaken und R. Rosenbaum, „Superconducting fluctuation conductivity in granular Al-Ge films above the metal-insulator transition“, *J. Phys. Condens. Matter* **6**, 9981–10000 (1994).
- [271] M. Tinkham, „Effect of fluxoid quantization on transitions of superconducting films“, *Phys. Rev.* **129**, 2413–2422 (1963).
- [272] F. E. Harper und M. Tinkham, „The mixed state in superconducting thin films“, *Phys. Rev.* **172**, 441–450 (1968).
- [273] A. F. Hebard und M. A. Paalanen, „Pair-breaking model for disorder in two-dimensional superconductors“, *Phys. Rev. B* **30**, 4063–4066 (1984).
- [274] D. T. Harris, N. Campbell, R. Uecker, M. Brützsch, D. G. Schlom, A. Levchenko, M. S. Rzechowski und C.-B. Eom, „Superconductivity-localization interplay and fluctuation magnetoresistance in epitaxial BaPb_{1-x}Bi_xO₃ thin films“, *Phys. Rev. Mater.* **2**, 041801 (2018).
- [275] R. Rosenbaum, S.-Y. Hsu, J.-Y. Chen, Y.-H. Lin und J.-J. Lin, „Superconducting fluctuation magnetoconductance in a tungsten carbide film“, *J. Phys. Condens. Matter* **13**, 10041–10056 (2001).
- [276] K. Char und A. Kapitulnik, „Fluctuation conductivity in inhomogeneous superconductors“, *Z. Physik B Cond. Matter* **72**, 253–259 (1988).
- [277] E. Abrahams, R. E. Prange und M. J. Stephen, „Effect of a magnetic field on fluctuations above T_c “, *Physica* **55**, 230–233 (1971).
- [278] M. H. Redi, „Two-dimensional fluctuation-induced conductivity above the critical temperature“, *Phys. Rev. B* **16**, 2027–2031 (1977).
- [279] M. Truccato, A. Agostino, G. Rinaudo, S. Cagliero und M. Panetta, „Possible dominance of the Maki-Thompson process in the fluctuation conductivity of Bi-2212 superconducting whiskers“, *J. Phys. Condens. Matter* **18**, 8295–8312 (2006).
- [280] A. Levchenko, „Magnetoconductivity of low-dimensional disordered conductors at the onset of the superconducting transition“, *Phys. Rev. B* **79**, 212511 (2009).
- [281] A. I. Larkin, „Reluctance of two-dimensional systems“, *JETP Lett.* **31**, 219–223 (1980).
- [282] H. Ebisawa, S. Maekawa und H. Fukuyama, „Pair breaking parameter of two-dimensional dirty superconductors“, *Solid State Commun.* **45**, 75–78 (1983).

- [283] J. M. B. Lopes dos Santos und E. Abrahams, „Superconducting fluctuation conductivity in a magnetic field in two dimensions“, *Phys. Rev. B* **31**, 172–176 (1985).
- [284] K. Meiners-Hagen, „Maki-Thompson correction to magnetoresistance in three-dimensional disordered alloys“, *Phys. Rev. B* **63**, 052507 (2001).
- [285] Y.-R. Luo und J.-M. Wu, „RF-magnetron sputtered conductive perovskite BaPbO₃ films“, *Jpn. J. Appl. Phys.* **42**, 242–246 (2003).
- [286] D. Fuchs, A. Sleem, R. Schäfer, A. G. Zaitsev, M. Meffert, D. Gerthsen, R. Schneider und H. v. Löhneysen, „Incipient localization of charge carriers in the two-dimensional electron system in LaAlO₃/SrTiO₃ under hydrostatic pressure“, *Phys. Rev. B* **92**, 155313 (2015).
- [287] W. N. Lawless und A. J. Morrow, „Specific heat and electrocaloric properties of a SrTiO₃ ceramic at low temperatures“, *Ferroelectrics* **15**, 159–165 (1977).
- [288] Z. Q. Li und J. J. Lin, „Electrical resistivities and thermopowers of transparent Sn-doped indium oxide films“, *J. Appl. Phys.* **96**, 5918–5920 (2004).
- [289] B.-T. Lin, Y.-F. Chen, J.-J. Lin und C.-Y. Wu, „Temperature dependence of resistance and thermopower of thin indium tin oxide films“, *Thin Solid Films* **518**, 6997–7001 (2010).
- [290] S. V. Postolova, A. Y. Mironov, M. R. Baklanov, V. M. Vinokur und T. I. Baturina, „Reentrant resistive behavior and dimensional crossover in disordered superconducting tin films“, *Sci. Rep.* **7**, 1718 (2017).
- [291] N. E. Hussey, K. Takenaka und H. Takagi, „Universality of the Mott-Ioffe-Regel limit in metals“, *Philosophical Magazine* **84**, 2847–2864 (2004).
- [292] V. K. Guduru, A. McCollam, A. Jost, S. Wenderich, H. Hilgenkamp, J. C. Maan, A. Brinkman und U. Zeitler, „Thermally excited multiband conduction in LaAlO₃/SrTiO₃ heterostructures exhibiting magnetic scattering“, *Phys. Rev. B* **88**, 241301 (2013).
- [293] A. Brinkman, M. Huijben, M. van Zalk, J. Huijben, U. Zeitler, J. C. Maan, W. G. van der Wiel, G. Rijnders, D. H. A. Blank und H. Hilgenkamp, „Magnetic effects at the interface between non-magnetic oxides“, *Nat. Mater.* **6**, 493–496 (2007).
- [294] J. Kondo, „Resistance Minimum in Dilute Magnetic Alloys“, *Prog. Theor. Phys.* **32**, 37–49 (1964).
- [295] K. S. Kim und M. B. Maple, „Kondo effect in La_{1-x}Ce_x alloys under pressure“, *Phys. Rev. B* **2**, 4696–4699 (1970).

- [296] R. Pietri, B. Andraka, D. Kaczorowski, A. Leithe-Jasper und P. Rogl, „Magnetoresistance and low-temperature specific heat of the Yb compounds YbRhSn, YbPdBi, and YbPtSn“, *Phys. Rev. B* **61**, 12169–12173 (2000).
- [297] S. Jana, S. G. Bhat, B. C. Behera, L. Patra, P. S. A. Kumar, B. R. K. Nanda und D. Samal, „Evidence for weak-antilocalization–weak-localization crossover and metal-insulator transition in $\text{CaCu}_3\text{Ru}_4\text{O}_{12}$ thin films“, *EPL* **133**, 17005 (2021).
- [298] M. Jenderka, J. Barzola-Quiquia, Z. Zhang, H. Frenzel, M. Grundmann und M. Lorenz, „Mott variable-range hopping and weak antilocalization effect in heteroepitaxial Na_2IrO_3 thin films“, *Phys. Rev. B* **88**, 045111 (2013).
- [299] H. Kobori, N. Hatta, M. Kawaguchi und T. Ohyama, „Magnetic-field-induced two- to three-dimensional transition in weak localization and weak anti-localization regimes for $\text{In}_2\text{O}_{3-x}$ thin films“, *Physica E* **12**, 641–645 (2002).
- [300] W. Poirier, D. Mailly und M. Sanquer, „Electron-electron interaction in doped GaAs at high magnetic field“, *Phys. Rev. B* **57**, 3710–3713 (1998).
- [301] G. van Rossum und F. L. Drake, *Python 3 Reference Manual*, Version 3.9.1, Scotts Valley, CA: CreateSpace, (2009).
- [302] Y. Takagaki, B. Jenichen, U. Jahn, M. Ramsteiner und K.-J. Friedland, „Weak antilocalization and electron-electron interaction effects in Cu-doped Bi_2Se_3 films“, *Phys. Rev. B* **85**, 115314 (2012).
- [303] A. Sahnoune, J. O. Ström-Olsen und H. E. Fischer, „Influence of spin-orbit scattering on the magnetoresistance due to enhanced electron-electron interactions“, *Phys. Rev. B* **46**, 10035–10040 (1992).
- [304] C. Y. Wu, W. B. Jian und J. J. Lin, „Phonon-induced electron-electron interaction in disordered superconductors“, *Phys. Rev. B* **52**, 15479–15484 (1995).
- [305] S.-P. Chiu und J.-J. Lin, „Weak antilocalization in topological insulator Bi_2Te_3 microflakes“, *Phys. Rev. B* **87**, 035122 (2013).
- [306] T. McGuire und R. Potter, „Anisotropic magnetoresistance in ferromagnetic 3d alloys“, *IEEE Trans. Magn.* **11**, 1018–1038 (1975).
- [307] X. Wang, X. He, T. Guan, J. Liao, C. Lin, K. Wu, Y. Li und C. Zeng, „Transport properties of topological insulator Bi_2Se_3 thin films in tilted magnetic fields“, *Physica E* **46**, 236–240 (2012).

- [308] M. Yamada, T. Hirahara und S. Hasegawa, „Magnetoresistance measurements of a superconducting surface state of In-induced and Pb-induced structures on Si(111)“, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 237001 (2013).
- [309] W. Brenig, M.-c. Chang, E. Abrahams und P. Wölfle, „Inelastic scattering time above the superconductivity transition in two dimensions: dependence on disorder and magnetic field“, *Phys. Rev. B* **31**, 7001–7005 (1985).
- [310] W. Brenig, M. A. Paalanen, A. F. Hebard und P. Wölfle, „Magnetococonductance of thin-film superconductors near critical disorder“, *Phys. Rev. B* **33**, 1691–1699 (1986).
- [311] K. S. Tikhonov, G. Schwiete und A. M. Finkel'stein, „Fluctuation conductivity in disordered superconducting films“, *Phys. Rev. B* **85**, 174527 (2012).
- [312] P. Santhanam, S. Wind und D. E. Prober, „Localization, superconducting fluctuations, and superconductivity in thin films and narrow wires of aluminum“, *Phys. Rev. B* **35**, 3188–3206 (1987).
- [313] A. Kawabata, „Theory of negative magnetoresistance in three-dimensional systems“, *Solid State Commun.* **34**, 431–432 (1980).
- [314] Y. Chen, „Electronic localization in 3D silicon and platinum metalattices and magnetoelectrical transport properties of Dirac Nodal line semimetal ZrSiS“, *Diss. (Pennsylvania State University, Pennsylvania, 2020)*, 128 S.
- [315] H. Fukuyama und K. Hoshino, „Effect of spin-orbit interaction on magnetoresistance in the weakly localized regime of three-dimensional disordered systems“, *J. Phys. Soc. Jpn.* **50**, 2131–2132 (1981).
- [316] P. Seiler, J. Zabaleta, R. Wanke, J. Mannhart, T. Kopp und D. Braak, „Antilocalization at an oxide interface“, *Phys. Rev. B* **97**, 075136 (2018).
- [317] A. Punnoose, „Magnetococonductivity in the presence of Bychkov-Rashba spin-orbit interaction“, *Appl. Phys. Lett.* **88**, 252113 (2006).
- [318] E. Abrahams, P. W. Anderson und T. V. Ramakrishnan, „Non-ohmic effects of anderson localization“, *Philos. Mag. B* **42**, 827–833 (1980).

Danksagung

Besonders möchte ich mich bei PD Dr. German Hammerl für die intensive persönliche Betreuung und die immer währende Hilfsbereitschaft in allen Bereichen bedanken. Die Zusammenarbeit mit dir war sowohl fachlich als auch persönlich sehr bereichernd!

Prof. Dr. Helmut Karl danke ich für die bereitwillige Übernahme des Zweitgutachtens meiner Doktorarbeit.

Prof. Dr. Thilo Kopp, Dr. Patrick Seiler sowie Elias Lettl möchte ich für die geduldige Beantwortung meiner vielzähligen Fragen im Bereich der theoretischen Physik sowie für die Zusammenarbeit während der Publikationen danken.

Bei Klaus Wiedenmann und Alexander Herrnberger bedanke ich mich für die ständige Hilfsbereitschaft und Unterstützung bei Reparatur- und Wartungsarbeiten an der PLD.

Für die tolle Zusammenarbeit und gegenseitige Unterstützung im Labor möchte ich mich bei Dr. Betina Meir, Miriam Strößer, Marcus Albrecht und Luca Winkler bedanken.

PD Dr. Hans-Albrecht Krug von Nidda und Prof. Dr. Liviu Chioncel danke ich für die schnelle Zusage zur Teilhabe an meinem Prüfungskomitee.

Für die schöne Zeit am Lehrstuhl und auch in der gemeinsam verbrachten Freizeit möchte ich mich bei allen am Lehrstuhl tätigen Leuten bedanken. Ein besonderer Dank geht dabei an meine (zwischenzeitlichen) Bürokolleginnen Dr. Tanita Johanna Ballé, Johanna Oefele und Vera Bader.

Für die organisatorische Unterstützung möchte ich mich bei Christine Schäfer, Brigitta Eisenschmid und Chenh Dung Lai bedanken.

Für die Möglichkeit, als Doktorand am Lehrstuhl für Experimentalphysik VI zu arbeiten, möchte ich mich bei Prof. Dr. Philipp Gegenwart bedanken. Zudem bedanke ich mich bei der DFG für die Förderung dieser Arbeit im Rahmen des TRR80.

Zuletzt möchte ich mich herzlich bei Julia, meiner Familie und meinen Freunden bedanken, die mich auf jegliche Weise abseits der Universität unterstützt haben!

