

Herstellung und Charakterisierung
epitaktischer Ni_2MnIn
Heusler/Halbleiter-Hybridsysteme

Dissertation
zur Erlangung des Doktorgrades
des Department Physik
der Universität Hamburg

vorgelegt von
Andreas Volland
aus Wiesbaden

Hamburg
2009

Bibliografische Information der Deutschen Nationalbibliothek

Die Deutsche Nationalbibliothek verzeichnet diese Publikation in der Deutschen Nationalbibliografie; detaillierte bibliografische Daten sind im Internet über <http://dnb.d-nb.de> abrufbar.

ISBN 978-3-86853-341-5

Gutachter der Dissertation:	Prof. Dr. W. Hansen Prof. Dr. U. Merkt
Gutachter der Disputation:	Prof. Dr. W. Hansen Prof. Dr. D. Heitmann
Datum der Disputation:	30.11.2009
Vorsitzender des Prüfungsausschusses:	Dr. A. Chudnovskiy
Vorsitzender des Promotionsausschusses:	Prof. Dr. Robert Klanner
Dekan der Fakultät für Mathematik, Informatik und Naturwissenschaften:	Prof. Dr. Heinrich Graener

© Verlag Dr. Hut, München 2010
Sternstr. 18, 80538 München
Tel.: 089/66060798
www.dr.hut-verlag.de

Die Informationen in diesem Buch wurden mit großer Sorgfalt erarbeitet. Dennoch können Fehler nicht vollständig ausgeschlossen werden. Verlag, Autoren und ggf. Übersetzer übernehmen keine juristische Verantwortung oder irgendeine Haftung für eventuell verbliebene fehlerhafte Angaben und deren Folgen.

Alle Rechte, auch die des auszugsweisen Nachdrucks, der Vervielfältigung und Verbreitung in besonderen Verfahren wie fotomechanischer Nachdruck, Fotokopie, Mikrokopie, elektronische Datenaufzeichnung einschließlich Speicherung und Übertragung auf weitere Datenträger sowie Übersetzung in andere Sprachen, behält sich der Autor vor.

1. Auflage 2010

Inhaltsangabe

Die Heuslerlegierung Ni_2MnIn ist ein idealer Kandidat für spininjizierende, ferromagnetische Elektroden bei zukünftigen spintronischen Bauelementen auf Basis von $\text{InAs}(001)$. In dieser Dissertation wurde untersucht, wie sich die Wachstumsparameter Substrattemperatur und Schichtdicke auf morphologische, strukturelle, magnetische und elektrische Eigenschaften von Ni_2MnIn -Heusler/Halbleiter-Hybridsystemen auswirken. Die Heuslerdeposition erfolgte mittels Molekularstrahlepitaxie (MBE) auf kontaminationsfreie Halbleiteroberflächen in einer hierfür aufgebauten Metall-Wachstumskammer. Diese ist über einen in-vacuo Transfer mit einer kommerziellen III/V-Halbleiter-MBE verbunden. Das Konzept einer neuen, optimierten Metall-MBE wurde später mittels 3D-CAD konstruktiv umgesetzt. Die Untersuchung der hergestellten $\text{Ni}_2\text{MnIn}/\text{InAs}(001)$ -Proben ergab, dass Zwischengitter-Diffusion von Arsen aus dem Substrat in die Heuslerschicht bei einer Wachstumstemperatur oberhalb von 80°C zur Ausbildung einer Reaktionszone führt, deren Dicke mit zunehmender Substrattemperatur weiter ansteigt. Für die optimale Wachstumstemperatur von Ni_2MnIn auf $\text{InAs}(001)$ in der L_{21} -Phase wurde ein Fenster zwischen 250°C und 300°C bestimmt. Unterhalb 250°C liegt die Heuslerschicht in der B2-Phase vor, oberhalb 300°C setzt eine starke Zunahme der Grenzflächenreaktion ein. Sowohl Substrattemperatur als auch Schichtdicke zeigten in Messungen einen Einfluss auf die Spinpolarisation, die Curietemperatur und die kristallographische Phase der durchweg ferromagnetischen Ni_2MnIn -Heuslerschichten. Die höchste Curietemperatur von $T_C = 315\text{ K}$ wurde an einer 100 nm dicken, bei 300°C gewachsenen Ni_2MnIn -Schicht gemessen. Heuslerschichten auf $\text{InAs}(001)$ mit optimaler Wachstumstemperatur und mit 100 nm Dicke weisen die höchsten Werte der mittels Magneto-Optischer Ellipsometrie bestimmten Spinpolarisation auf. Während bei 250°C hergestellte Proben ein klassisches pseudomorphes Wachstum unter Spannungsabbau durch tetragonale Verzerrung auftritt, wurde für Probenwachstum oberhalb 300°C eine $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Orientierung der Ni_2MnIn -Elementarzelle relativ zur $\text{InAs}(001)$ -Substratoberfläche beobachtet. Beim Wachstum von Ni_2MnIn auf einer modulationsdotierten $\text{InGaAs}/\text{InAs}/\text{InGaAs}$ -Heterostruktur mit metamorphem $\text{In}_{75}\text{Al}_{25}\text{As}$ -Puffer auf $\text{GaAs}(001)$ wurde in Röntgenbeugungsexperimenten eine Verbeitung des InAs -Signals vom pseudomorph verspannten und unrelaxierten InAs -Kanal beobachtet. Bei den Reflexen des metamorphen Puffers war im Vergleich zu einer Referenzprobe ohne Heuslerschicht keine Veränderung erkennbar, abgesehen von einer Abnahme der Signalintensität. Die Verwendung solcher Heusler/ InAs -HEMT-Hybridstrukturen ist für die zukünftige Realisierung eines Spin-FET vielversprechend.

Abstract

The Heusler alloy Ni_2MnIn is an ideal candidate material for spin injecting ferromagnetic electrodes of future spintronic devices based on $\text{InAs}(001)$ semiconductors. This thesis reports on the influence of growth parameters such as substrate temperature and layer thickness on morphological, structural, magnetic and electronic properties of Ni_2MnIn Heusler/Semiconductor hybrid systems, grown with molecular beam epitaxy (MBE). For Heusler alloy deposition on fresh and clean semiconductor surfaces a custom made, home built metal growth chamber was used, that connects to a commercial III/V semiconductor MBE via an in-vacuo transfer system. Improved concepts of a new and optimized metal MBE system have been embodied in a 3D-CAD construction during later work. Investigations on the grown $\text{Ni}_2\text{MnIn}/\text{InAs}(001)$ samples revealed, that during growth beyond 80°C an intermixing layer arises at the Heusler/substrate interface which is formed by diffusion of arsenic from the substrate to the deposit. The intermixing process is found to take place via interstitial sites and becomes increasingly severe with rising growth temperature. The optimum growth temperature for deposition of Ni_2MnIn on $\text{InAs}(001)$ in the desired L2_1 phase was found to be between 250°C and 300°C . Below 250°C the Heusler film is crystallized in the B2 phase, above 300°C the onset of increasingly strong interfacial reactions is observed. All Ni_2MnIn films on InAs are ferromagnetic, with substrate temperature as well as layer thickness having an influence on resulting spin polarization, Curie temperature and crystallographic phase. The highest Curie temperature of $T_C = 315\text{ K}$ was measured on a 100 nm thick Ni_2MnIn film, grown at 300°C on $\text{InAs}(001)$. Heusler layers with 100 nm thickness and grown within the optimum temperature range were found to possess the highest spin polarization in magneto-optical ellipsometry investigations. While samples grown at 250°C undergo classical pseudomorphic strain relaxation via tetragonal distortion of the deposited layer, a $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ orientation of the Ni_2MnIn unit cell in relation to the $\text{InAs}(001)$ substrate surface was observed for sample growth beyond 300°C . The growth of Ni_2MnIn on modulation doped $\text{InGaAs}/\text{InAs}/\text{InGaAs}$ heterostructures with metamorphic $\text{In}_{75}\text{Al}_{25}\text{As}$ buffer on $\text{GaAs}(001)$ substrate did not result in relaxation phenomena of the pseudomorphic strained InAs channel. Investigations using x-ray diffraction revealed only a peak broadening of the InAs maximum. The diffraction signal signature of the metamorphic buffer did not change in comparison to a reference sample without Heusler layer. Only a decrease in signal intensity was observed. The application of such Heusler/ InAs -HEMT hybrid structures is promising for the future implementation of a Spin-FET.

Inhaltsverzeichnis

Inhaltsangabe / Abstract	i
Einleitung	1
1 Grundlagen	5
1.1 Das Materialsystem Ni ₂ MnIn	5
1.1.1 Heuslerlegierungen	5
1.1.2 Kristallstruktur und Phasen	5
1.1.3 Kontakte für Spininjektion	7
1.2 Epitaktisches Wachstum	11
1.2.1 Molekularstrahlepitaxie	11
1.2.2 Wachstumsmodi	12
1.2.3 Gitterfehlpassung und Schichtdicke	13
1.3 Prinzipien der Analysemethoden	15
1.3.1 Augerelektronen-Spektroskopie	15
1.3.2 Rasterkraftmikroskopie	17
1.3.3 Röntgendiffraktometrie	18
1.3.4 Röntgenreflektometrie	19
1.3.5 Transmissions-Elektronenmikroskopie	21
1.3.6 SQUID-Magnetometrie	23
1.3.7 Punktkontakt-Andreev-Spektroskopie	27
1.3.8 Magneto-Optische Ellipsometrie	29
2 Probenpräparation	31
2.1 Metallkammer	31
2.1.1 Design der Metallkammer	31
2.1.2 Technische Anforderungen	33
2.1.3 In-vacuo Analytik	36
2.2 Herstellungsprozess	38
2.2.1 Vorbereitung der Metallkammer	38
2.2.2 Präparationsvorbereitung	39
2.2.3 Aufdampftraten	39
2.2.4 Schichtwachstum	40
2.2.5 Probendokumentation	41

2.2.6	Brechen der Wafer	41
2.3	Voruntersuchungen	42
2.3.1	Flusskalibrierung	42
2.3.2	Prozessstabilität	44
2.3.3	Probenhomogenität	45
2.3.4	Probenstabilität	46
2.4	Probenserien	47
2.4.1	Freistehende Ni ₂ MnIn-Heuslerfilme	47
2.4.2	Ni ₂ MnIn-Heuslerschichten auf Au/Si-Substraten	48
2.4.3	Ni ₂ MnIn-Heuslerschichten auf InAs(001)-Substraten	48
2.4.4	Ni ₂ MnIn-Heuslerschichten auf virtuellen Substraten	49
3	Probencharakterisierung	53
3.1	Strukturelle Eigenschaften	53
3.1.1	Rasterkraftmikroskopie	53
3.1.2	Röntgenreflektometrie	53
3.1.3	Transmissions-Elektronenmikroskopie	54
3.1.4	Röntgendiffraktometrie	55
3.1.5	Optische Reflexions-Spektroskopie	56
3.2	Magnetische Eigenschaften	56
3.2.1	SQUID-Magnetometrie	56
3.3	Elektronische Eigenschaften	57
3.3.1	Punktkontakt-Andreev-Spektroskopie	57
3.3.2	Magneto-Optische Ellipsometrie	58
4	Ergebnisse	61
4.1	Freistehende Ni ₂ MnIn-Heuslerfilme	61
4.1.1	Probenmorphologie	61
4.1.2	Phasenanalyse	63
4.2	Ni ₂ MnIn auf Au/Si(001)-Substraten	64
4.2.1	Probenmorphologie	64
4.2.2	Strukturelle Eigenschaften	65
4.2.3	Elektronische Eigenschaften	66
4.3	Ni ₂ MnIn auf InAs(001)-Substraten	72
4.3.1	Probenmorphologie	72
4.3.2	Strukturelle Eigenschaften	75
4.3.3	Magnetische Eigenschaften	86
4.3.4	Elektronische Eigenschaften	89
4.4	Ni ₂ MnIn auf virtuellen Substraten	94
4.4.1	Probenmorphologie	94
4.4.2	Strukturelle Eigenschaften	97

5	Schlussfolgerungen	103
5.1	Polykristalline Heuslerschichten	103
5.2	Epitaktische Heuslerschichten	104
6	Technische Weiterentwicklung	111
6.1	Metall-MBE	111
6.1.1	Motivation und Anforderungen	111
6.1.2	CAD-Konstruktion	112
6.1.3	Fertigung und Aufbau	117
6.2	MBE-Manipulator	119
6.2.1	CAD-Konstruktion	119
7	Zusammenfassung und Ausblick	125
7.1	Zusammenfassung	125
7.2	Ausblick	127
	Veröffentlichungen	129
A	Probendaten	131
A.1	PCAR-Messungen	131
A.2	Probenübersicht	133
	Abbildungsverzeichnis	135
	Tabellenverzeichnis	137
	Literaturverzeichnis	139
	Danksagung	149

Einleitung

In dem jungen Gebiet der Spintronik soll die Orientierung des Spins eines Elektrons neben seiner Ladung als Informationsträger Verwendung finden. Während die klassische Halbleiterelektronik auf die Bewegung von Ladung innerhalb seiner Bauelemente setzt, erfolgt in spintronischen Bauelementen die Verarbeitung von Informationen über die Manipulation der Spinausrichtung von Elektronen [Wol01, Aws02]. Sowohl die benötigte Schaltzeit, als auch der Energiebedarf für die Reorientierung eines Spins sind im Vergleich zum Transport und der Manipulation von Ladungsträgern geringer, weshalb eine schnellere Datenverarbeitung bei gleichzeitig geringer Wärmeentwicklung in spintronische Bauelementen erwartet wird. Vor allem in der Magnetfeldsensorik hat der Einsatz spintronischer Bauelemente in der letzten Dekade bereits zu einer rasanten Entwicklung bei Lesekopf-, Positions- und Speichersystemen geführt. So sind von der Entdeckung des GMR¹ durch Grünberg und Fert im Jahre 1988 (hierfür Nobelpreis 2007) bis zur Markteinführung von Festplatten, in denen Leseköpfe nach dem Prinzip des GMR-Effektes arbeiten, lediglich 10 Jahre vergangen [Bai88, Bin89, Par98]. Die Entwicklung aktiver Bauelemente der Spintronik ist hingegen noch nicht so weit fortgeschritten und befindet sich derzeit in einem frühen Entwicklungsstadium. Das grundlegende Konzept des Spin-Feldeffekttransistor (Spin-FET), ein spintronisches Bauteil zur Informationsverarbeitung, wurde bereits im Jahr 1990 von S. Datta und B. Das vorgeschlagen [Dat90]. Dieser Spin-FET ist aufgebaut aus drei Kernkomponenten: einem ferromagnetischen Spininjektor zur Erzeugung der spinpolarisierten Elektronen, einem leitenden Kanal mit der Möglichkeit zur gezielten Einflussnahme auf die spin-kodierte Information durch Spinmanipulation sowie einem Detektor zum Auslesen der resultierenden Information durch Bestimmung der Spinorientierung. Bis heute ist ein vollständiger Spin-FET noch nicht realisiert worden.

Spininjektion polarisierter Ladungsträger in einen Halbleiter gelang zuerst Fiederling *et al.* unter Verwendung des magnetischen Halbleiters $\text{Be}_{0,07}\text{Mn}_{0,03}\text{Zn}_{0,90}\text{Se}$ als Spin-Filter. Die Detektion der spinpolarisierten Elektronen erfolgte optisch mittels einer GaAs/AlGaAs-Leuchtdiode durch Auswertung der zirkularen Polarisation des emittierten Lichtes [Fie99]. Bereits zwei Jahre später gelang Zhu *et al.* mit metallischen Kontakten aus Eisen die direkte Spininjektion bei Raumtemperatur in einer GaAs/(In,Ga)As LED-Struktur [Zhu01]. Zur gleichen Zeit offenbarten Rechnungen von Schmidt *et al.*, dass aufgrund des so genannten „conductivity-mismatch“ zwi-

¹engl.: Giant Magneto Resistance

schen Metallen und Halbleitern eine effektive Spinpolarisation im diffusiven Transportregime nur bei einer Spinpolarisation des ferromagnetischen Kontaktes von nahezu 100% möglich ist [Sch00]. Die Verwendung von Tunnelbarrieren zwischen ferromagnetischer Elektrode und Halbleiter wurde wenig später von Rashba als Lösung für das Problem des „conductivity-mismatches“ vorgeschlagen [Ras00]. Zudem legen Rechnungen von Hu und Matsuyama nahe, dass im ballistischen Transportregime eine höhere Effizienz der Spininjektion erreicht werden kann [Hu01]. Die Manipulation der Spins im leitenden Kanal eines Halbleiters kann durch Nutzung des Rashba-Effektes erfolgen. Die durch den Rashba-Effekt hervorgerufene Präzession der Spins beruht auf der Spin-Bahnkopplung, welche extern mittels eines elektrischen Gates gesteuert werden kann. Besonders geeignet erscheint hierfür InAs, das sowohl eine geringe effektive Masse, resultierend in einer hohen Beweglichkeit, als auch eine hohe Spin-Bahnkopplung bei asymmetrischen Einschlusspotentialen aufweist [Lon90, Mat00]. Von Vorteil für die Anwendung ist auch, dass InAs keine Schottky-Barriere gegenüber metallischen Kontakten ausbildet [Mea63]. Erfolgte die Detektion der Spinorientierung anfangs oft auf optischem Wege, so wurden vor kurzem Fortschritte in der rein elektrischen Bestimmung von Spintransport in lateralen Spinbauelementen durch die Bestimmung von Spinakkumulation unter Verwendung von nicht-lokalen, spinsensitiven Schottky-Tunnelkontakten erzielt [Lou07, Tra09].

Speziell die Klasse der Heuslerlegierungen hat im Hinblick auf eine Verwendung als ferromagnetische Elektrode zuletzt ein wachsendes Interesse in der Forschung erfahren, da einige dieser intermetallischen Verbindungen eine Kombination interessanter Eigenschaften aufweisen [Fel07]. So wurde für viele Heuslerlegierungen ein halbmetallischer Ferromagnetismus vorhergesagt, welcher eine Spinpolarisation dieser intermetallischen Verbindungen von bis zu 100% bewirkt, bei Curietemperaturen oberhalb der Raumtemperatur [Gro83, Gal06, Hem07]. Gleichzeitig haben viele Heusler- oder Halbheuslerlegierungen ähnliche Gitterkonstanten wie populäre III/V-Verbindungshalbleiter. Dies ermöglicht unter anderem epitaktisches Wachstum von Fe_3Si , $\text{Co}_2(\text{Cr,Fe})\text{Al}$ und Co_2MnSi auf GaAs(001)-Substraten [Her03, Hir05, Bra07] oder der Halbheuslerlegierung NiMnSb auf InP [Woj02, Bac03, Kov05]. Die Heuslerlegierung Ni_2MnIn eignet sich aufgrund der geringen Gitterfehlpassung von 0,2% für epitaktisches, gitterangepasstes Wachstum auf InAs(001)-Oberflächen. Berechnungen von Kilian und Viktoria zeigten, dass Ni_2MnIn ein halbmetallischer Ferromagnet ist, welcher eine Spinpolarisation von $\sim 100\%$ aufweist [Kil00]. Bei einer theoretischen Untersuchung des Übergangs von Ni_2MnIn zu InAs wurde kein signifikanter Einfluss auf den Magnetismus an der Grenzfläche beobachtet, vielmehr lassen eine hohe Spinpolarisation und die geringe Streuung an lokalisierten Zuständen eine effiziente Spininjektion erwarten [Kil00, Kil01].

Eine ideale Heuslerelektrode besteht aus einer defektfreien Heuslerschicht, welche in der $L2_1$ -Phase kristallisiert ist und eine hohe Curietemperatur sowie eine hohe Spinpolarisation aufweist. Sie soll eine abrupte und kontaminationsfreie Grenzfläche zu InAs besitzen, wofür epitaktisches Wachstum auf frischen InAs-Oberflächen notwendig ist und die Verwendung der Molekularstrahlepitaxie als Präparationsmethode optimal erscheint. Aus bisherigen Untersuchungen ist bekannt,

dass die erzielten strukturellen und magnetischen Eigenschaften der Heuslerschichten stark von den jeweiligen Prozessparametern beim Ni_2MnIn -Probenwachstum abhängen [Hua04, Kur05b, Xie05]. Hierbei wird insbesondere die Bildung von zwei verschiedenen kubischen Ni_2MnIn -Kristallstrukturen beobachtet (L_{21} - und B_2 -Phase), welche stark unterschiedliche magnetische Eigenschaften aufweisen. Weiterhin ist bekannt, dass beim Wachstum von Heuslerlegierungen an der Grenzfläche zwischen deponierter Schicht und III-V-Halbleiter Reaktionszonen in Form von durchmischten Zwischenschichten auftreten können [Yan97]. Dies wurde beispielsweise bei der Präparation der Hybridsysteme $\text{NiMnSb}/\text{GaAs}$ und $\text{Ni}_2\text{MnIn}/\text{InAs}$ beobachtet [VR01, Xie05]. In Wachstumsuntersuchungen gelang es Xie *et al.*, die Heuslerlegierung Ni_2MnIn epitaktisch auf $\text{InAs}(001)$ abzuscheiden, wenn auch nur in in der weniger geordneten B_2 -Struktur [Xie01]. Die Curietemperatur dieser Heuslerschichten lag bei $T_C = 170\text{ K}$, was unterhalb des Literaturwertes von $T_C = 314 - 330\text{ K}$ liegt und eine Verwendung zur Spininjektion bei Raumtemperatur ausschließt [Web69, Hua04, Kur05a]. Mittels eines thermischen Ausheilprozesses nach Abschluss des Probenwachstums konnte die Curietemperatur dieser Heuslerschichten auf $T_C = 330\text{ K}$ gesteigert werden, wonach aber Teile der untersuchten Probe immer noch in der ungeordneten B_2 -Struktur vorlagen [Xie05].

In der hier vorliegenden Arbeit wird der Einfluss der Wachstumsbedingungen auf die strukturellen, magnetischen und elektrischen Eigenschaften von $\text{Ni}_2\text{MnIn}/\text{Halbleiter-Hybridsystemen}$ untersucht. Ziel ist hierbei, mit optimierten Prozessparametern ein direktes epitaktisches Wachstum von Ni_2MnIn auf $\text{InAs}(001)$ in der magnetisch günstigeren L_{21} -Phase zu ermöglichen. Dies soll durch eine Variation der Wachstumstemperatur und der Schichtdicke erreicht werden. Eine Untersuchung der zu erwartenden durchmischten Reaktionszone ist für die Bewertung der morphologischen Beschaffenheit der Heusler/Halbleiter-Hybridgrenzfläche unerlässlich. Eine ausführliche Charakterisierung der hergestellten Heuslerproben gibt zum Beispiel Aufschluss über den zugrunde liegenden Diffusionsprozess. Im Rahmen der hier dargelegten systematischen Untersuchung wird zunächst mit dem Wachstum polykristalliner Schichten begonnen, um dann unmittelbar zu der Präparation epitaktischer Ni_2MnIn -Heuslerschichten auf $\text{InAs}(001)$ überzugehen. Abschließend werden erste Ergebnisse für pseudomorph verspanntes Ni_2MnIn -Wachstum auf modulationsdotierten Heterostrukturen auf InAs -Basis präsentiert. Die hier als virtuelles Substrat verwendete Heterostruktur besteht aus einem verspannten, elektronisch aktivem InAs -Kanal, welcher asymmetrisch in einen $\text{In}_{75}\text{Al}_{25}\text{As}$ -Quantentopf eingefügt ist [Hey03]. Der plastische Spannungsabbau zum $\text{GaAs}(001)$ -Substrat erfolgt über einen mehrlagigen metamorphen $\text{In}_x\text{Al}_{1-x}\text{As}$ -Puffer. Die Verwendung solcher $\text{InAs}/\text{InAlAs}/\text{GaAs}$ -Heterostrukturen für die zukünftige Realisierung eines Spin-FET liegt aufgrund der erzielten hohen Beweglichkeiten und der individuell einstellbaren Tunnelbarriere zum Heuslerkontakt nahe. Strukturelle Untersuchungen sollen klären, ob der Ni_2MnIn -Aufdampfprozess zu einer Relaxation des tieferliegenden pseudomorph verspannten InAs -Kanals führt.

Die Arbeit ist in insgesamt sieben Kapitel gegliedert. Im ersten Kapitel werden die Grundlagen des Materialsystems, des epitaktischen Wachstums und der einge-

setzten Analysemethoden erläutert. Dieses Wissen dient dem allgemeinen Verständnis und soll beim weiteren Studium der Arbeit nützlich sein. Im folgenden zweiten Kapitel wird detailliert auf die Probenpräparation eingegangen. Hierbei wird der apparative Aufbau der an ein Transfermodul adaptierten Metallwachstumschamber und deren Betrieb beschrieben. Desweiteren werden der allgemeine Probenherstellungsprozess und Details von vier präparierten und untersuchten Probenserien vorgestellt. Kapitel 3 informiert über die strukturellen, magnetischen und elektrischen Untersuchungen sowie die jeweiligen Messbereiche und die Messparameter der zur Probencharakterisierung verwendeten Analytik. Die Ergebnisse dieser Untersuchungen werden für alle vier Probenserien ausführlich im vierten Kapitel präsentiert. Den wachstumsabhängigen Veränderungen der morphologischen und strukturellen Eigenschaften von Ni_2MnIn -Schichten auf InAs galt hierbei die besondere Aufmerksamkeit. Die Schlussfolgerungen für polykristalline und epitaktische Heuslerschichten werden in Kapitel 5 dargelegt. Kapitel 6 befasst sich kurz mit der Konstruktion einer neuen Metall-MBE, welche eine technische Weiterentwicklung der bisherigen Metallwachstumschamber darstellt. Die Planung hierzu entstand im Verlauf des Disserationsprojektes als Antwort auf neue Anforderungen hinsichtlich der Integration von *in-situ* Analytik und dem Wunsch einer optimierten Umsetzung und Erweiterung des bisherigen Konzeptes. Kapitel 7 gibt eine Zusammenfassung der vorgestellten Resultate.

Kapitel 1

Grundlagen

1.1 Das Materialsystem Ni₂MnIn

1.1.1 Heuslerlegierungen

Im Jahr 1901 entdeckte Friedrich Heusler bei Legierungsexperimenten mit Kupfer, Mangan und Aluminium, dass deren Verbindungen ein ferromagnetisches Verhalten zeigen, obwohl keine Legierungskomponente als Element selber magnetisch ist [Heu03]. Heute ist bekannt, dass die beobachteten magnetische Eigenschaften im engen Zusammenhang mit der hohen strukturellen Ordnung dieser ternären intermetallischen Verbindungen stehen. Solche Legierungen mit der stöchiometrischen Zusammensetzung X₂YZ bilden eine kubisch flächenzentrierte (kfz) Kristallstruktur der Raumgruppe Fm $\bar{3}$ m und werden nach ihrem Entdecker als HEUSLER-Legierungen bezeichnet. Eine Übersicht bekannter Heuslerlegierungen findet sich in [Web69, LB88, Bus83]. Viele dieser Legierungen weisen ähnliche Gitterkonstanten wie die von III/V-Verbindungshalbleitern bzw. deren ternäre Mischkristalle auf, weshalb für geeignete Materialkompositionen ein epitaktisches Wachstum ferromagnetischer Heuslerschichten auf Halbleiteroberflächen erwartet wird.

1.1.2 Kristallstruktur und Phasen

Die intermetallische Verbindung Ni₂MnIn weist die stöchiometrische Zusammensetzung vom Typ X₂YZ auf und gehört zur Klasse der *vollständigen*¹ Heuslerlegierungen. Alle 16 Gitterplätze der Einheitszelle sind entsprechend der Symmetrieelemente der Raumgruppe Fm $\bar{3}$ m (Gruppennummer 225) besetzt und bilden die in Abbildung 1.1(a) dargestellte L2₁-Struktur. Diese Ni₂MnIn-Struktur ist aufgebaut aus vier gegeneinander versetzten kfz-Untergittern der Mangan und Indium Legierungsatome sowie der beiden Nickelatome. Die asymmetrische Einheit des Kristallgitters ist in Abbildung 1.1(b) dargestellt und besteht aus Mangan, Nickel und Indium.

¹intermetallische Verbindungen der Stöchiometrie XYZ mit der Raumgruppe F $\bar{4}$ 3m (#216) und C1_b Struktur werden als *Halb*-Heuslerlegierungen bezeichnet.

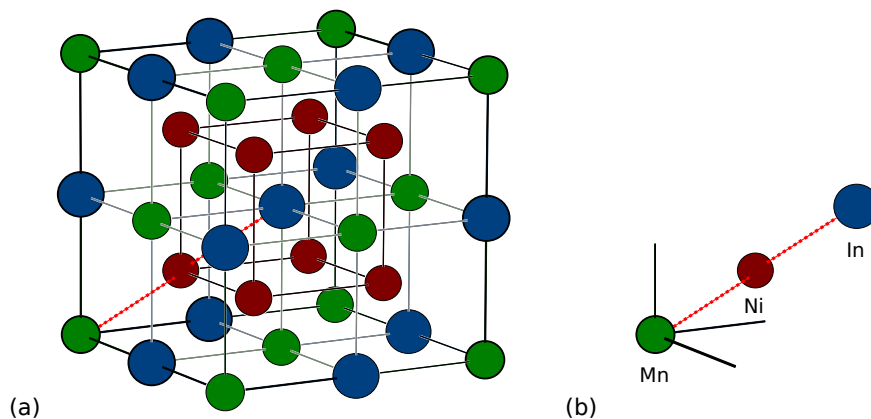


Abbildung 1.1: L₂₁-Kristallstruktur der Heuslerlegierung Ni₂MnIn: (a) kubisch flächenzentrierte Kristallstruktur der Raumgruppe Fm $\bar{3}m$, (b) asymmetrische Einheit mit Mangan, Nickel und Indium. Aus dieser wird durch Anwendung aller Symmetrieoperationen der Raumgruppe mit Kenntnis der Gitterkonstante a das Kristallgitter erzeugt. Die Legierungsatome bilden in diesem jeweils ein kubisch flächenzentriertes Untergitter aus.

Bei ungünstigen Wachstumsparametern neigt Ni₂MnIn zu der Ausbildung einer Kristallstruktur mit statistisch auf ihren Plätzen verteilten Mangan- und Indiumatomen. Diese kristallographische Phase wird als B2-Struktur bezeichnet und weist im Vergleich zur L₂₁-Struktur aufgrund der zufälligen Besetzung von zuvor nicht gleichwertigen Positionen eine andere Symmetrie auf. Die Elementarzelle der B2-Struktur entspricht einer kubisch raumzentrierten CsCl-Struktur mit der halben Gitterkonstante des perfekt geordneten Heuslerkristalls.

Unabhängig von der strukturellen Ordnung ist die Gitterkonstante von Ni₂MnIn vergleichbar mit der des Halbleiters InAs. In der Literatur existieren zwei unterschiedliche Angaben für die Ni₂MnIn-Gitterkonstante, dies sind zum einen $a = 0,6069$ nm in [Web69, Web84] sowie zum anderen $a = 0,6024$ nm bzw. $0,6022$ nm in [JCP94, Kur03]. Hierbei sind die beiden letztgenannten publizierten Werte im Rahmen der Fehlergrenzen identisch. Der Wert $a = 0,6024$ für die kleinere der beiden Gitterkonstanten wurde von *Kurfiß* und *Anton* unter Verwendung von MgO als Standard mit Elektronenbeugung bestätigt, die Details hierzu sind in [Kur03] veröffentlicht. Beide Gitterkonstanten erlauben das epitaktische Wachstum von Ni₂MnIn auf InAs(001) mit einer Gitterfehlpassung von weniger als 0,2%. In dieser Arbeit wird im Folgenden der an diesem Institut bestimmte, dokumentierte Wert von $a = 0,6024$ nm als Gitterkonstante für Ni₂MnIn verwendet. Die geringe Gitterfehlpassung macht Ni₂MnIn zu einem geeigneten Kandidaten für die epitaktische Deposition von ferromagnetischen Kontakten auf InAs mit dem Ziel einer möglichen Spininjektion von polarisierten Ladungsträgern.

1.1.3 Kontakte für Spininjektion

Halbmetallischer Ferromagnetismus

Die Klasse der halbmetallischen Ferromagnete zeichnet sich durch metallisches Verhalten der Elektronen einer Spinrichtung aus, während gleichzeitig Elektronen mit entgegengesetzter Spinrichtung aufgrund einer Bandlücke im Bereich des Fermi-niveaus beim Ladungstransport nicht in Erscheinung treten [Gro83]. In Abbildung 1.2 sind die Bandstrukturen eines unmagnetischen Metalls, eines klassischen Ferromagneten sowie eines halbmetallischen Ferromagneten dargestellt. Während bei unmagnetischen Metallen wie Aluminium für beide Spinrichtungen \uparrow und \downarrow die Zustände gleichmäßig besetzt sind, ist bei einem Ferromagneten wie Eisen die Entartung der beiden Spinzustände aufgrund der Austauschwechselwirkung aufgehoben. Bei einem halbmetallischen Ferromagneten liegen zusätzlich alle Zustände eines der beiden spinpolarisierten Bänder vollständig unterhalb der Fermienergie. Dieses vollständig gefüllte Valenzband der Majoritätselektronen trägt somit nicht zum Ladungstransport bei und wird per Definition den \downarrow -Elektronen zugeordnet. Das nur teilweise gefüllte Band der Minoritätselektronen weist ausschließlich Elektronen der \uparrow -Spinrichtung auf. Da nur im \uparrow -Band die Zustandsdichte an der Fermienergie nicht verschwindet, wird ein vollständig spinpolarisierter metallischer Ladungstransport ermöglicht. Halbmetallische Ferromagnete sind in der Gruppe der Heusler- und Halbheuslerverbindungen häufig vertreten.

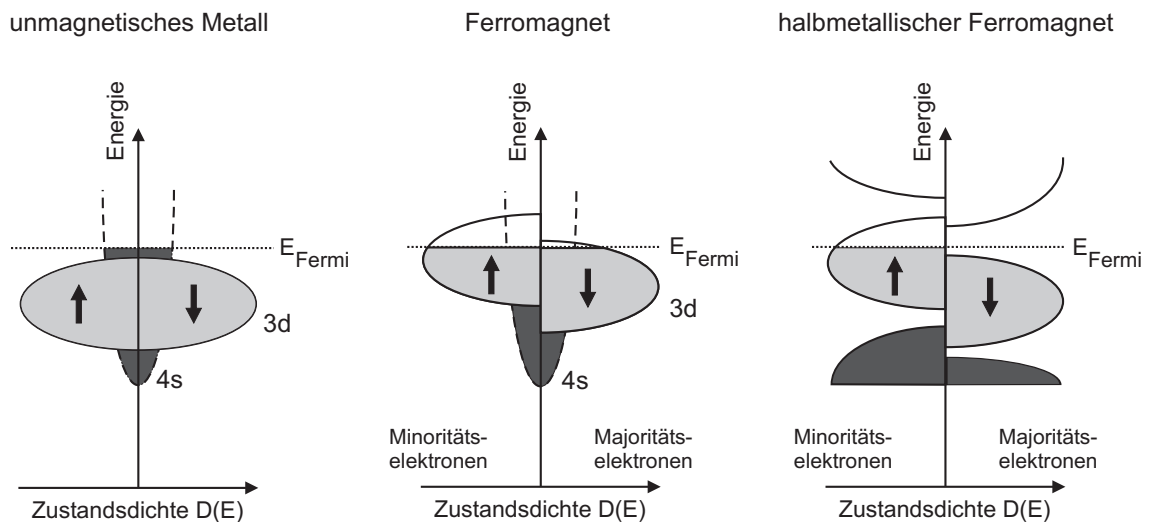


Abbildung 1.2: Idealierte Darstellung der Bandstrukturen für unmagnetisches Metall, Ferromagnete und halbmetallische Ferromagnete.

Bandstruktur und Grenzfläche

Für eine effiziente Spininjektion von einem Ni₂MnIn-Kontakt nach InAs ist eine hohe Spinpolarisation der Heuslerlegierung sowie eine gute Bandpassung zum Halbleiter notwendig. Um beide Voraussetzungen zu überprüfen, berechneten Kilian und Victoria die elektrische Bandstruktur von Ni₂MnIn und bestimmten die Lokalisierung der Elektronen innerhalb dieser. Die Fermienergie der Heuslerlegierung muss für eine gute Bandpassung nahe dem Leitungsband von InAs liegen, da nur Spins aus Zuständen sehr nahe der Fermikante in die unbesetzten Zustände des Halbleiters übergehen können. Diese energetisch günstigen Elektronenzustände lassen sich aus einem Vergleich der Bandstruktur von InAs und Ni₂MnIn bestimmen [Che76, Che84, Kil00]. Aus den Berechnungen für Ni₂MnIn ergab sich eine komplexe Bandstruktur, welche in Abbildung 1.3 für (a) Minoritätsladungsträger und (b) Majoritätsladungsträger

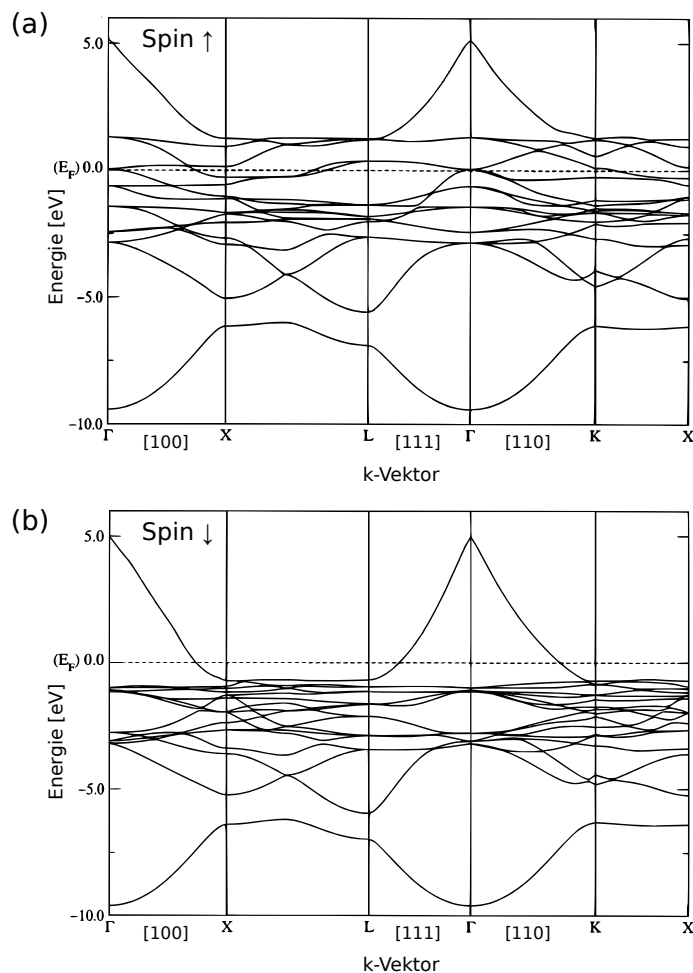


Abbildung 1.3: nach [Kil00]: Bandstruktur für Ni₂MnIn, berechnet für (a) Minoritätsladungsträger und (b) Majoritätsladungsträger.

ger dargestellt ist. Während für ein ferromagnetisches Halbmetall eine vollständige Spinpolarisation erwartet wird, existieren bei Ni_2MnIn in der Nähe des X-Punktes Zustände nahe der Fermikante für Majoritätsspins. Die berechnete Gesamtpolarisation beträgt $4,09 \mu_B$ bei einem berechneten magnetischen Gesamtmoment von $4,16 \mu_B$, welches in guter Übereinstimmung mit experimentell an Ni_2MnIn bestimmten Werten (s.u.) ist. Ein Vergleich mit der Bandstruktur von InAs zeigt, dass die energetisch günstigsten Zustände nahe des Fermineaus in der Nachbarschaft des Γ -Punktes liegen: Das Ni_2MnIn -Minoritätsband schneidet das Fermineau entlang den drei Hochsymmetrierichtungen $\Gamma - X$, $\Gamma - K$ und $\Gamma - L$. Eine erste Abschätzung der Transmissionswahrscheinlichkeiten der $\text{Ni}_2\text{MnIn}/\text{InAs}(001)$ -Grenzfläche unter der Annahme senkrecht einfallender Wellenvektoren und einem Fermilevelpinning von $0,1 \text{ eV}$ oberhalb des InAs-Leitungsbandes ergab für Minoritätsladungsträger Werte von 75% für die $[100]$ -, 82% für die $[110]$ - und 99% für die $[111]$ -Richtung. Die Zustände mit Majoritätselektronen liegen weit vom Γ -Punkt entfernt. Eine Berechnung ebenfalls unter der Annahme eines orthogonalen Übergangs der k-Vektoren ergibt folgende Transmissionswahrscheinlichkeiten: $T_{[100]}^{maj} = 19\%$, $T_{[110]}^{maj} = 19\%$ und $T_{[111]}^{maj} = 39\%$. Aufgrund des großen Abstandes zwischen Schnittpunkt des Majoritätsbandes mit dem Fermineau und dem Γ -Punkt wird aber die Mehrzahl der Wellenvektoren nicht exakt senkrecht zur Grenzfläche einfallen, wodurch die abgeschätzten Transmissionswahrscheinlichkeiten der Majoritätsspins zusätzlich um einen Faktor von etwa 100 vermindert werden.

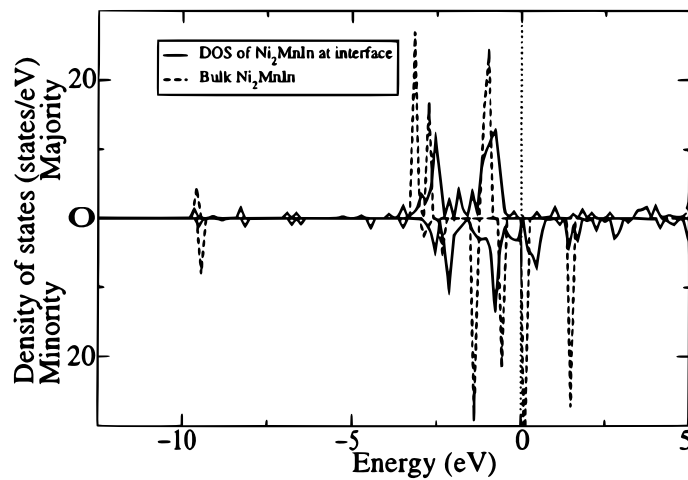


Abbildung 1.4: aus [Kil01]: Zustandsdichten nur unter der Berücksichtigung der Zustände am Γ -Punkt für Ni_2MnIn -Volumenmaterial (gepunktete Linie) und dessen Gegenpart für die $\text{Ni}_2\text{MnIn}/\text{InAs}(001)$ -Grenzfläche (durchgezogene Linie). Die Fermienergie liegt bei 0 eV .

In einer weiteren Berechnung untersuchten Kilian und Victoria die elektronische Struktur einer $\text{Ni}_2\text{MnIn}/\text{InAs}(100)$ -Grenzfläche, um den Einfluss der Streuung aufgrund von Grenzflächenzuständen zu bestimmen [Kil01]. Hierbei stellten sie fest, dass die Spinpolarisation des Ni_2MnIn -Volumenmaterials, hervorgerufen

hauptsächlich durch Manganatome, nicht durch die Gegenwart von InAs zerstört wird. Die Ausbildung einer unmagnetischen Grenzschicht wurde bei den Berechnungen nicht beobachtet. In Abbildung 1.4 sind die Zustandsdichten für das Ni_2MnIn -Volumenmaterial und für die Ni_2MnIn -Grenzfläche wiedergegeben. Entscheidend für eine mögliche Spinpolarisation sind die Minoritätszustände des Volumenmaterials nahe der Fermienergie E_F , für welche ein Überlapp mit Grenzflächenzuständen beobachtet wird. Daher stehen diese Minoritätszustände von Ni_2MnIn bei einer möglichen Spininjektion nach InAs(001) weiterhin zur Verfügung. Aufgrund der guten Bandanpassung und der überwiegenden Transmission von Minoritätsladungsträger an der Grenze zu InAs erscheint Ni_2MnIn als Kandidat für eine spininjizierende Elektrode somit gut geeignet.

Magnetische Eigenschaften

Für eine technologische Verwendung der Heuslerlegierung als spininjizierende Elektrode ist ein starker Ferromagnetismus notwendig, der auch bei Raumtemperatur noch auftritt. In ihren theoretischen Berechnungen haben Sasioglu *et al.* die Koppelung zwischen einzelnen magnetischen Momenten im Kristallgitter untersucht [Sas04]. Sie fanden für die Mangan-Mangan-Koppelung in Abhängigkeit von der Distanz einen in der Summe positiven Wert der Austauschparameter. Der Wert des Austauschintegrals J ist zunächst gering für die nächsten Mangan-Nachbarn und steigt dann auf ein Maximum für die zweit-, dritt und viertnächsten Manganatome an. Das fünftnächste Manganatom ist schwach antiferromagnetisch gekoppelt mit einem negativen Austauschparameter, die Koppelung aller weiter entfernten Manganatome ist gering und trägt nicht mehr signifikant zum Gesamtmoment bei. Bei der Koppelung der Nickel- und Manganatome sind nur die Momente der nächsten Nachbarn von Bedeutung, deren Koppelungsparameter liegt zudem deutlich oberhalb des bei der Mn–Mn Koppelung beobachteten Wertes. Insgesamt resultiert für Ni_2MnIn eine überwiegend ferromagnetische Koppelung der magnetischen Momente. In Neutronenbeugungsexperimenten wurde das magnetische Moment von Ni_2MnIn zu $4,40 \mu_B$ je Formeleinheit bestimmt. Hierbei hat das Manganatom mit $4,24 \mu_B$ den größten Anteil am Gesamtmoment, gefolgt von den beiden Nickelatomen. Das Indiumatom weist in theoretischen Berechnungen ein sehr geringes, entgegengesetzt ausgerichtetes Moment auf, welches experimentell nicht beobachtet wurde [Web84].

Die Curietemperatur von Ni_2MnIn in der kristallographisch geordneten $L2_1$ -Phase liegt nach den theoretischen Berechnungen bei $T_C = 343$ K. Dieser Wert liegt nahe der experimentell bestimmten Curietemperatur von $T_{c,L2_1} = 314\text{--}330$ K [Web69, Hua04, Kur05a]. Für Ni_2MnIn mit weniger geordneter kristallographischer B2-Phase wurde hingegen eine niedrigere Curietemperatur von $T_{c,B2} \approx 170$ K beobachtet [Xie01, Xie05]. Nur perfekt in der $L2_1$ -Phase kristallisiertes Ni_2MnIn zeigt daher oberhalb der Raumtemperatur Ferromagnetismus. Für die Verwendung als spininjizierende Elektrode ist somit das geordnete Wachstum der Heuslerlegierung in der $L2_1$ -Phase notwendig.

1.2 Epitaktisches Wachstum

1.2.1 Molekularstrahlepitaxie

Bei der Molekularstrahlepitaxie (MBE²) wird ein vorhandener Einkristall epitaktisch, das heißt mit fortgesetzter Gitterperiodizität, weitergewachsen. Die deponierte Schicht übernimmt hierbei die Kristallstruktur des unterliegenden Substrates. Technisch erfolgt dies durch thermisches Verdampfen oder Sublimieren von hochreinen Materialien aus Effusionszellen im Ultrahochvakuum (UHV) auf den beheizten Substratkristall. Das notwendige UHV im Bereich von 10^{-11} torr wird mittels Kaltflächen oder unter Ausnutzung der Getterwirkung von geeigneten Metallen erzeugt. Die spezielle Geometrie der eingesetzten Effusionszellen ermöglicht einen homogenen und gerichteten Strahl von Atomen oder Molekülen eines Elementes, deren mittlere freie Weglänge im Vakuum weit größer als der Abstand von Quellenmaterial zum Substrat ist. Als Zellen kommen heutzutage meist keine reinen Knudsenzellen sondern thermische Nichtgleichgewichtszellen mit langem Tiegel zum Einsatz. Die langgestreckte Form des Tiegels bewirkt eine Effusion der sich in gleicher Richtung bewegenden Atome oder Moleküle als Teilchenstrahl. Das keramische Tiegelmateriale besteht aus pyrolytischem Bornitrid (pBN) oder Aluminiumoxid (Al_2O_3), in speziellen Fällen finden auch Tiegel aus Berylliumoxid (BeO) Verwendung. Für hochschmelzende Materialien sind Elektronenstrahlverdampfer gegenüber Zellen mit Widerstandsheizung besser geeignet. Eine präzise Temperaturregelung der Verdampferzellen ist notwendig, um bei konstantem Dampfdruck einen definierten Fluss zu erhalten. Die vertikale Strukturierung der deponierten Schichtstruktur in Wachstumsrichtung wird durch spezielle Verschlussblenden, die sogenannten Zellenshutter, realisiert. Durch Öffnen und Schließen kann jeder Molekularstrahl gezielt ein- oder ausgeblendet werden. Die typische Reaktionszeit der Zellenshutter von 0,2 Sekunden für eine Positionsänderung ermöglicht eine reproduzierbare Herstellung von nanostrukturierten Schichtsystemen. Die Rotation des strahlungsbeheizten Substrathalters während des Wachstums führt zu einer vorteilhaften Homogenisierung der deponierten Materialmenge, welche aus nichtaxial angeordneten Quellen verdampft wird [Cho95, Cho99, Art02].

Beim Wachstum von arsenbasierten III/V-Verbindungshalbleitern ist die hohe Selektivität der verwendeten Gruppe III-Metalle (Ga, Al und In) gegenüber Arsen ein großer Vorteil. Bei einem Überangebot von Arsen wachsen deren binäre und ternäre Verbindungen immer stöchiometrisch. Die Prozesskontrolle erfolgt oft mittels RHEED³-Aufbauten, da deren elektronenoptischer Strahlengang kompatibel zur Aufdampfgeometrie ist. Bei schichtweisem Wachstum korreliert die Intensität des in RHEED-Messungen beobachteten Spekularreflexes mit dem Bedeckungsgrad der Oberfläche, was einen Rückschluss auf die Flussrate der Gruppe III-Komponente zulässt. Hierbei wird vorausgesetzt, dass jedes auftreffende Atom in die Oberfläche eingebaut wird. Für das Wachstum von Halbleiter-Schichtsystemen auf GaAs-

²engl.: Molecular Beam Epitaxy

³engl.: Reflection High Energy Electron Diffraction

Substraten sind Flussraten von einer Monolage pro Sekunde (1 ML/s) typisch, bei der Metall-Epitaxie mit hochschmelzenden Legierungskomponenten treten hingegen deutlich geringere Gesamtflussraten von 0,03 nm/s auf [Zol09].

1.2.2 Wachstumsmodi

Beim epitaktischen Wachstum haben die Oberflächenenergie des Substrates und des aufgedampften Materials sowie die Grenzflächenenergie und die Verspannungsenergie zwischen beiden einen großen Einfluss auf die morphologische Ausbildung der resultierenden Struktur. Man unterscheidet je nach Energiebilanz drei unterschiedliche Wachstumsmodi, deren Schichtstruktur in Abbildung 1.5 dargestellt ist. Der *Volmer-Weber*-Modus ist charakterisiert durch Inselwachstum des aufgedampften Materials auf dem Substrat. Aufgrund einer stärkeren Bindung der deponierten Atome untereinander als zum Substrat bilden sich beim Bedampfen ungleichmäßig über die Substratoberfläche verteilte Inseln [Vol26]. Im Gegensatz dazu ist beim *Frank-van der Merwe*-Modus die Bindung der adsorbierten Teilchen untereinander stärker als zum Substrat. Dies führt zu einer gleichmäßigen Bedeckung der Substratoberfläche und zu einem lagenweisen Wachstum der Schicht. Dies wird als Lagen- oder Schichtwachstum bezeichnet. Im Idealfall wird dabei eine Monolage zuerst vollständig abgeschieden, bevor die Kristallisation der nächsten Lage einsetzt [Fra49]. Eine Mischform beider Wachstumsmodi ist das Lagen- und Inselwachstum nach *Stranski-Krastanov*, welches bei stark unterschiedlichen Gitterkonstanten von Substrat- und Schichtkristall auftritt. Hierbei bildet sich zunächst eine stark gespannte Schicht entsprechend dem Wachstum nach Frank-van der Merwe. Beim Überschreiten einer kritischen Bedeckung θ_c relaxieren die nachfolgenden Schichten durch spontane Inselbildung, um ihre Verspannungsenergie zu minimieren [Str39].

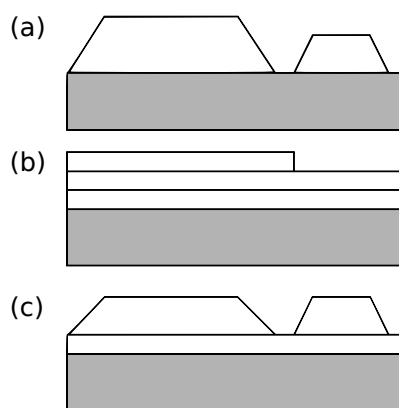


Abbildung 1.5: schematische Darstellung der drei Wachstumsarten beim Aufdampfen: (a) Inselwachstum (Vollmer-Weber), (b) Lagenwachstum (Frank-van der Merve), (c) Lagen- und Inselwachstum (Stranski-Krastanov).

1.2.3 Gitterfehlpassung und Schichtdicke

Verspannung tritt beim Wachstum von Multilagern auf, wenn Einkristalle mit kommensurabler Gitterstruktur, aber unterschiedlichen Gitterkonstanten epitaktisch aufeinander abgeschieden werden. Als Gitterfehlpassung δ ist die relative Differenz der Gitterkonstanten des Substrates a_s und der deponierten Schicht a_d definiert, die sich aus $\delta = (a_d - a_s)/a_s$ berechnet. Das Kristallgitter der Schicht wird durch Zug- oder Druckspannung innerhalb elastischer Grenzen tetragonal verzerrt. Die Spannenergie selbst ist abhängig von der Gitterfehlpassung und der Dicke der verspannten Schicht. Beim Überschreiten der maximal elastisch möglichen Verspannung kommt es zu einem Abbau der Verspannungsenergie durch Versetzungsbildung (plastische Verformung), Bildung von Inseln beim weiteren Wachstum oder dem makroskopischen Biegen des gesamten Schichtsystems. In Abbildung 1.6 ist die von Matthews und Blakeslee berechnete maximale Schichtdicke h_c in Abhängigkeit von der Gitterfehlpassung δ (durchgezogene Linie) aufgetragen, oberhalb derer im Lagenwachstum die Versetzungsbildung zum Abbau der Verspannungsenergie einsetzt [Mat74]. Für den Spannungsabbau im Fall von Stranski-Krastanov-Inselwachstum sind experimentell ermittelte Datenpunkte des kritischen Bedeckungsgrades θ_c wiedergegeben, welche aus Wachstumsuntersuchungen an InAs-Quantenpunkten gewonnen wurden

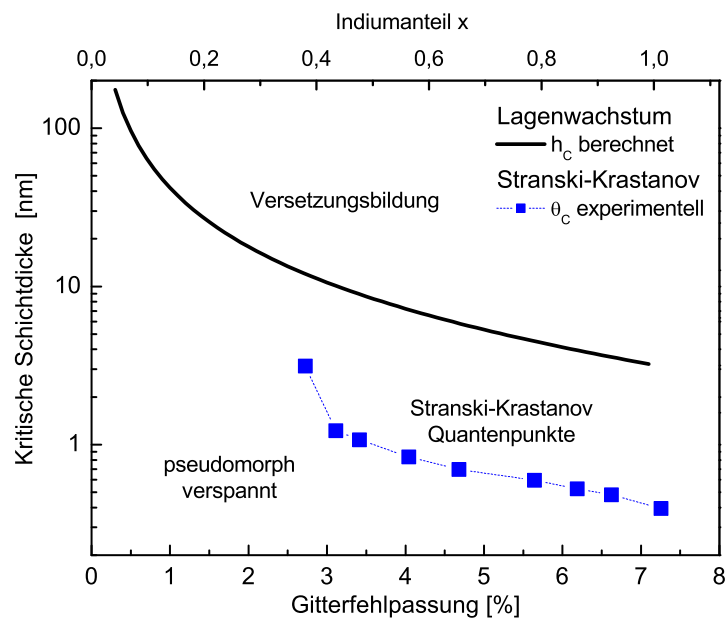


Abbildung 1.6: nach [Men05]: (schwarze Linie) Kritische Schichtdicke h_c für Versetzungsbildung beim Lagenwachstum von InGaAs auf GaAs-Substrat, berechnet nach Matthews und Blakeslee. Bei einer Gitterfehlpassung von $\delta \approx 1\%$ beträgt die kritische Schichtdicke $h_c \approx 50$ nm. (blaue Quadrate) experimentelle Werte für den kritischen Bedeckungsgrad θ_c beim Stranski-Krastanov-Inselwachstum von InAs-Quantenpunkten auf GaAs-Substrat, bestimmt mittels RHEED-Messungen. Ab einer Gitterfehlpassung von $\sim 2,5\%$ dominiert der Spannungsabbau durch Inselwachstum.

[Hey01]. Prinzipiell können beim epitaktischen Wachstum drei Bereiche unterschiedlicher Gitterfehlpassung beschrieben werden:

unverspannte und gitterangepasste Schichten

Das Wachstum gitterangepasster Schichten bei Homo-Epitaxie oder beim Wachstum von Materialien mit nahezu identischen Gitterkonstanten wie GaAs ($a = 0,5653$ nm) und AlAs ($a = 0,5661$ nm) erzeugt nahezu keine Verspannung in den beteiligten Kristallgittern. Solche Schichten lassen sich mit nahezu beliebiger Schichtdicke aufeinander deponieren, wobei das Wachstum bei geeigneten Wachstumsparametern ausschließlich im Frank-van der Merwe-Modus erfolgt.

pseudomorph verspannte Schichten

Pseudomorphes Wachstum tritt bei Schichten auf, welche eine Gitterfehlpassung von weniger als 2,5% aufweisen und unterhalb der kritischen Schichtdicke h_c liegen. Ein Beispiel hierfür ist das verspannte Wachstum von $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ oder $\text{In}_x\text{Al}_{1-x}\text{As}$ auf GaAs. In Abbildung 1.6 ist der Indiumanteil von $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ als obere Achse korreliert zu der jeweiligen Gitterfehlpassung mit GaAs wiedergegeben. Bei einer Gitterfehlpassung von $\delta = 2\%$, entsprechend einem Indiumanteil von $x \approx 28\%$, beträgt die berechnete kritische Schichtdicke $h_c \approx 10$ nm. Schichten aus $\text{In}_{28}\text{Ga}_{72}\text{As}$ oder $\text{In}_{28}\text{Al}_{72}\text{As}$ mit einer Schichtdicke $d < h_c$ wachsen auf GaAs pseudomorph verspannt im Frank-van der Merwe-Modus auf. Die Spannungsenergie führt zu einer tetragonalen Verzerrung der lateral gitterangepassten Kristallstruktur. Die vertikale Gitterkonstante der verspannten Schicht kann aus der Verspannung ϵ bei Kenntnis der materialspezifischen Poissonkonstante ν durch Einsetzen und Auflösen von Formel 1.1 errechnet werden.

$$\frac{(a_{\text{vertikal}} \cdot a_{\text{Substrat}}^2) - a_{\text{Schicht}}^3}{a_{\text{Substrat}}^3} = 2 \left(\frac{a_{\text{Substrat}} - a_{\text{Schicht}}}{a_{\text{Schicht}}} \right) \left(\frac{1 - 2\nu}{1 - \nu} \right) \quad (1.1)$$

$$\text{mit } \frac{\Delta V}{V_0} = 2\epsilon \frac{1 - 2\nu}{1 - \nu} \quad \text{und} \quad \epsilon = \left(\frac{a_{\text{Substrat}} - a_{\text{Schicht}}}{a_{\text{Schicht}}} \right)$$

Eine weitere Erhöhung des Indiumanteils führt im Grenzbereich von $28\% \leq x \leq 35\%$ (Gitterfehlpassung $\delta > 2,5\%$) zum Übergang vom Lagenwachstum in das Stranski-Krastanov-Insellwachstum. Dieser Bereich ist interessant für das Wachstum von InAs-Quantenpunkten, deren kritischer Bedeckungsgrad θ_c in Abhängigkeit von der Gitterfehlpassung δ in Abbildung 1.6 mit blauen Quadraten gekennzeichnet ist.

vollständig relaxierte Schichten

Beim Überschreiten der kritischen Schichtdicke h_c für Lagenwachstum setzt eine verstärkte Versetzungsbildung innerhalb der deponierten Schicht ein. Hierdurch relaxiert das Kristallgitter des Schichtkristall unter Abbau der Verspannungsenergie, bis aufgrund der großen Anzahl eingebauter Versetzungen die vertikale und horizontale Gitterkonstante wieder mit dem Wert des unverspannten Volumenmaterials übereinstimmen.

1.3 Prinzipien der Analysemethoden

1.3.1 Augerelektronen-Spektroskopie

Die Augerelektronen-Spektroskopie (AES) ist eine Analysemethode, welche aufgrund der geringen Tiefe des analysierten Probevolumens hervorragend geeignet ist, die chemische Zusammensetzung dünner Schichten ohne den Einfluss eines unterliegenden Substrates zu untersuchen. Sie beruht auf der Auswertung des Spektrums emittierter Augerelektronen im Bereich 10 eV bis 3 keV. Die Oberflächensensitivität der AES beruht auf der kleinen mittleren freien Weglänge der emittierten Elektronen im Festkörper, welche in einem Bereich von 0,4 bis 5 nm liegt. Die laterale Auflösung ist durch den Durchmesser des Primärelektronenstrahls bestimmt [Bri83, Tho85, Bri03].

Der Auger-Prozess, dargestellt in Abbildung 1.7(a), wird durch Bildung eines Ions mit einer Leerstelle infolge der Stoßionisation eines Photoelektrons (K) durch den Primärelektronenstrahl mit einer Energie von $E_P = 3\text{--}10\text{ keV}$ ausgelöst. Der Ionisation (*hier: des K -Niveaus*) folgt die Relaxation des Atoms. Dabei wird das entstandene Loch durch ein Elektron aus einem höherenergetischem L_2 -Niveau aufgefüllt. Infolge des Übergangs wird die Energiedifferenz ($E_K - E_{L_2}$) als überschüssige kinetische Energie verfügbar. Diese Energie kann im Atom entweder durch die Bildung eines charakteristischen Röntgen-Photons (Röntgen-Fluoreszenzstrahlung) abgebaut werden, oder strahlungslos auf ein Elektron eines gleichen oder höheren Energieniveaus (L_3) übergehen, welches daraufhin ebenfalls emittiert wird (Auger-Emission). Beide Deexzitationsprozesse konkurrieren, die Wahrscheinlichkeit für das Auftreten ist abhängig von der Kernladungszahl z und wird durch die Fluoreszenzausbeute ω bzw. der Auger-Emissionswahrscheinlichkeit α beschrieben, dargestellt in Abbildung 1.7(b). Während ω mit zunehmendem z ansteigt, nimmt α mit steigender Kernladungszahl ab. Beide zusammen ergeben für ein Element immer eine Wahrscheinlichkeit von eins. Die Formel $E_{KL_2L_3} = E_K - E_{L_2} - E_{L_3}^*$ gibt die Energie eines Augerelektrons für den in Abbildung 1.7(a) dargestellten Prozess wieder. Hierbei wird die Bindungsenergie ausgehend vom Fermi-niveau E_F bestimmt und nicht auf die Vakuum-Energie des freien Elektrons bezogen. Das Suffix (*) deutet darauf hin, dass sich die Bindungsenergie eines einfach ionisierten Atoms von der für ein neutrales Atom (L_3) unterscheidet. Aus der Gleichung wird deutlich, dass die Energie eines Augerelektrons ausschließlich von der Lage der atomaren Energieniveaus abhängt. Die Energie E_A jedes emittierten Augerelektrons ist unabhängig von E_P und charakteristisch für ein Element. Für jedes Element des Periodensystems existiert ein eindeutiger Satz von Auger-Energien, basierend auf den Bindungsenergien der Übergangszustände. Der Energieterm des zuerst ionisierten Kernlevels E_K dominiert die Gleichung. Somit ist auch dann eine eindeutige Zuordnung möglich, wenn beide der Ionisation folgenden Elektronen des Augerprozesses aus dem Valenzband stammen, z.B. bei einem KVV -Übergang. Da die Lage der Kernniveaus von der chemischen Umgebung, d.h. Bindungszustand und umgebende Matrix abhängt, ist die Bestimmung von chemischen Verschiebungen mit AES möglich. Prinzipiell

sind mit AES alle Elemente ab Li ($Z > 2$) detektierbar. Wegen der Abhängigkeit des Ionisationsquerschnittes von E_P wird üblicherweise eine Beschleunigungsenergie von $\sim 4\text{--}5 \times E_A$ gewählt, bei typisch verwendeten Anregungsenergien von 3–10 keV. Die Elementidentifikation erfolgt anhand der charakteristischen Serie von Auger-Übergängen, welche unter den experimentellen Standardbedingungen am stärksten ausgeprägt ist. Durch die jeweils hohe Emissionswahrscheinlichkeit ist die Empfindlichkeit von AES größer als bei der energiedispersiven Röntgenspektroskopie (EDX). Auch wenn für die qualitative Analyse berechnete Augerspektren verwen-

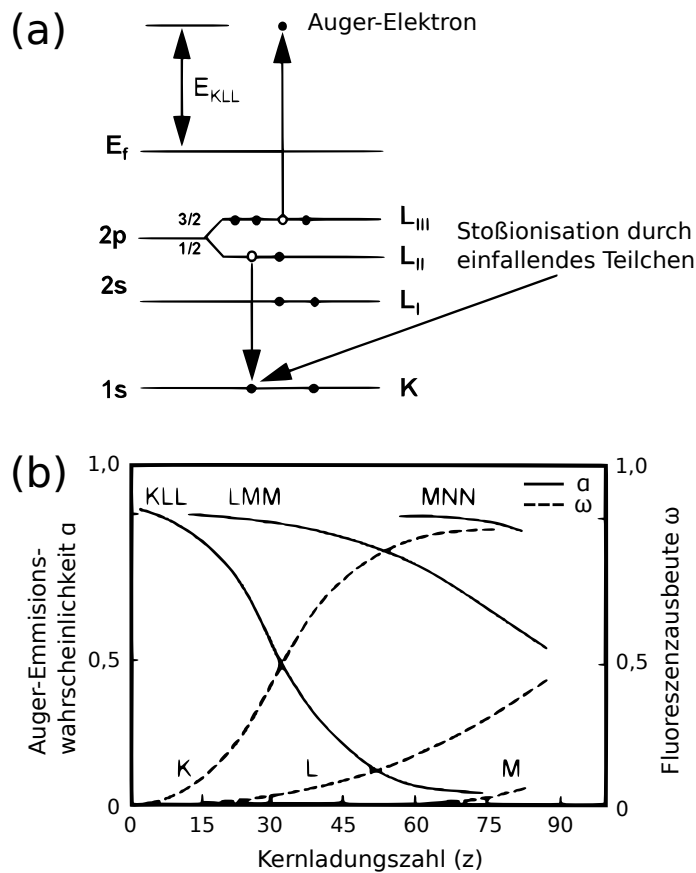


Abbildung 1.7: nach [Hed95]: (a) Auger-Prozess für einen KL_2L_3 -Übergang. Ein einfallendes Elektron mit der Energie E_P schlägt ein Elektron aus dem Kernlevel K . Hierfür muss die Energie $E_P \geq \sim 5 E_K$ sein. Das entstandene Loch wird durch ein Elektron aus dem L_2 -Niveau aufgefüllt. Die hierbei freiwerdende Energie $E_K - E_{L_2}$ kann entweder in Form eines Röntgenphotons abgegeben werden, oder wie dargestellt zur Bildung eines Augerelektrons führen, z.B. kann ein Augerelektron mit der Energie $(E_K - E_{L_2} - E_{L_3}^*)$ aus der L_3 Schale emittiert werden. (b) Dargestellt sind mit durchgezogener Linie die Auger-Emissionswahrscheinlichkeit α und mit Strichlinie die Fluoreszenzausbeute ω zur Bildung eines Röntgenphotons in Abhängigkeit von der Kernladung z . Beide Wahrscheinlichkeiten sind komplementär und ergeben zusammen immer eins.

det werden können, erfolgt in der Praxis der angewandten AES meist ein Vergleich mit Sammlungen aufgenommener Referenz-Augerspektren [Hed95, Sea98]. Die Darstellung der Referenzspektren erfolgt meist in der abgeleiteten Form $dN(E)/DE$, wobei es zwischen den verschiedenen Spektren-Atlanten aufgrund unterschiedlicher Spektrometer zu geringen, meist aber unbedeutenden Unterschieden kommt. Die Erfassungsgrenze für Elemente liegt in der qualitativen Analyse bei 0,001 %–0,1 %. Die quantitative Analyse erfolgt mittels Relativmessungen mit externen Standardmaterialien oder unter der Verwendung von tabellierten Empfindlichkeitsfaktoren. Diese sind im hohen Maße gerätespezifisch und abhängig von verwendeter Auflösung und Strahlstrom. Zusätzlich müssen bei der Verwendung von Empfindlichkeitsfaktoren Korrekturen für Matrixeffekte aufgrund element- und einfallswinkelabhängiger Rückstreuung berücksichtigt werden. Die gemessene Intensität eines Signals I_N eines Elementes ist bei vergleichbaren Messbedingungen proportional dem molaren Anteil im Analysevolumen. Bei der Verwendung von Standards und spezifischen Referenzproben ist in stöchiometrischen Untersuchungen eine Genauigkeit von 0,5–1 at% erreichbar.

Eine orts aufgelöste Augeranalyse kann durch das zeilenweise Rastern des Elektronenstrahls über die Probenoberfläche mit gekoppelter Datenerfassung erfolgen. Mit dieser als *Scanning Auger Microscopy* (SAM) bezeichneten Technik können zweidimensionale Elementverteilungsbilder erzeugt werden. Wird zudem eine geeignete Ionenoptik mit definierten Sputterraten zum Abtragen der Probenoberfläche verwendet, ist es möglich ein Tiefenprofil der Elementverteilung zu bestimmen.

1.3.2 Rasterkraftmikroskopie

Die Rasterkraftmikroskopie⁴ stellt eine Weiterentwicklung der Rastertunnelmikroskopie⁵ dar, bei welcher die Topographie einer Probenoberfläche mit einer scharfen Spitze abgetastet wird. Die Spitze ist an einer Blattfeder (Kantilever) befestigt, welche eine außerordentlich kleine Federkonstante mit $k < 0,1 \text{ N/m}$ aufweist, bei gleichzeitig hoher Resonanzfrequenz von mehreren 100 kHz. Bei einer Messempfindlichkeit von 10^{-15} N können so die Kräfte interatomarer Bindungen im Bereich von 10^{-7} N für ionische Bindungen bis hin zu 10^{-11} N für schwache van-der-Waals-Kräfte untersucht werden [Bin86]. Das Rastern des Kantilevers mit Spitze über die Oberfläche und das definierte Aufsetzen der Spitze sowie die Kraftregelung in Betriebsmodi ohne direkten Kontakt erfolgen über mehrere Piezoantriebe. Die Krafteinwirkung auf die Spitze erzeugt eine Ablenkung des Kantilevers, welche üblicherweise optisch mittels eines Lasers und einer Vier-Sektor-Photodiode detektiert wird. Der Krümmungsradius der oft mikromechanisch präparierten Siliziumspitzen liegt bei 20–50 nm, wobei eine ideale Spitze in einem einzelnen Atom endet. Die laterale Auflösung liegt im Bereich von 0,1–10 nm, bei einer vertikalen Auflösung von weniger als 0,1 nm. Rasterkraftmikroskopie ermöglicht die Untersuchung von Oberflächen im Mikrometerbereich bis hin zu atomarer Auflösung [Fri94]. Da die elektronisch erfass-

⁴engl.: Atomic Force Microscopy (AFM)

⁵engl.: Scanning Tunnel Microscopy (STM)

ten Bilder der Rasterkraftmikroskopie eine direkte Tiefeninformation enthalten, ist die Bestimmung von Rauigkeiten auf einer atomaren Skala möglich. Bei der Auswertung von AFM-Daten muss beachtet werden, dass die resultierenden Messdaten immer eine Faltung der Spitzentopographie und der Oberflächenmorphologie der untersuchten Probe darstellen. Bei der Interpretation von AFM-Daten ist daher eine sorgfältige Analyse der Untersuchungsergebnisse im Hinblick auf Spitzenartefakten notwendig.

1.3.3 Röntgendiffraktometrie

Die Röntgendiffraktometrie (XRD)⁶ ist eine Methode zur Phasenanalyse kristalliner Festkörper. Bei der XRD werden Röntgenstrahlen an Netzebenen gebeugt, so dass bei konstruktiver Interferenz Reflexe entstehen. Eine konstruktive Interferenz liegt dann vor, wenn die Beugungsbedingung erfüllt wird, d.h. die Differenz der optischen Weglänge bei Reflexion an aufeinanderfolgenden Netzebenen dem n -fachen der Wellenlänge λ entspricht. Dieser Sachverhalt ist in Form der Braggschen Gleichung wiedergegeben (1.2). Sie setzt den Netzebenenabstand d_{hkl} , die Wellenlänge λ , den Winkel Θ zwischen einfallendem Strahl und Netzebene und die natürlichen Zahl n für die Beugungsordnung in Beziehung [War90, Kle90].

$$2d_{hkl} \sin \Theta = n \cdot \lambda \quad (1.2)$$

Die Beugungsbedingung kann bei Einkristalluntersuchungen auf zwei Weisen erfüllt werden: Zum einen durch eine Variation der Wellenlänge λ , was durch Verwendung polychromatischer Strahlung geschehen kann, wie zum Beispiel beim Laueverfahren. Zum anderen kann der Beugungswinkel Θ durch eine kontrollierte Bewegung der zuvor ausgerichteten Probe eingestellt werden, was bei Untersuchungen mittels Vier-Kreis-Diffraktometern Verwendung findet. Bei diesen können einzelne Reflexpositionen gezielt angefahren werden. Voraussetzung hierfür ist eine genaue Justage der einkristallinen Probe entsprechend ihrer kristallographischen Achsen mittels eines Goniometers. Bei der Untersuchung von polykristallinen Materialien ist diese Justage nicht nötig, da aufgrund einer regellosen Verteilung der Kristallite immer ein Teil der Netzebenen so ausgerichtet ist, dass die Beugungsbedingung erfüllt wird.

Für die Phasenanalyse von Schichtsystemen hat sich die Bragg-Brentano-Geometrie bewährt. Wie in Abbildung 1.8 dargestellt, wird die Probe im Zentrum um den Winkel Θ gedreht, während der Detektor auf dem Messkreis um den doppelten Winkel 2Θ bewegt wird. Bei dieser Anordnung kommen Röntgenröhre, Detektor und Probe immer auf dem gleichen Fokussierkreis zu liegen.

Eine geeignete Methode zur Untersuchung der kristallinen Qualität eines Materials ist die Aufnahme einer Rockingkurve⁷. Hierbei handelt es sich um eine asymmetrische Beugungsuntersuchung, bei welcher der Detektor auf der 2Θ -Winkelposition

⁶engl.: X-Ray Diffraction

⁷engl: Rocking curve, oft auch ω -scan genannt.

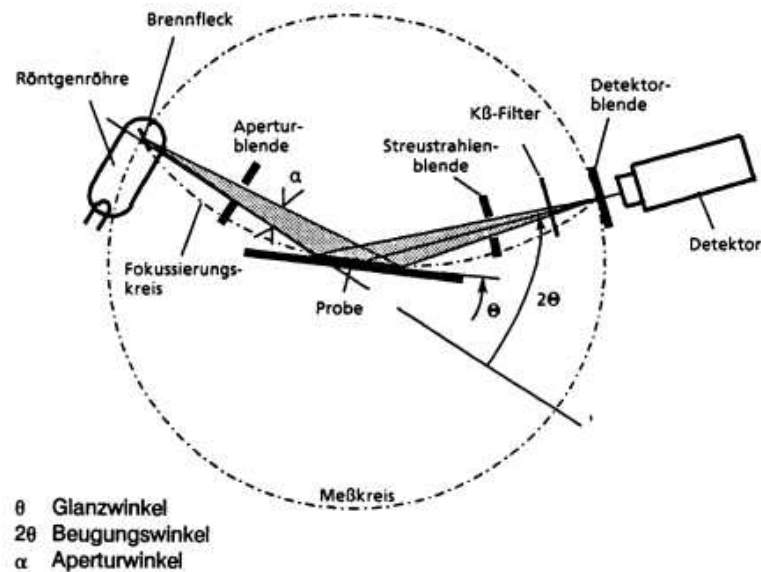


Abbildung 1.8: Strahlengang bei Bragg-Brentano-Geometrie ($\theta/2\theta$ -Geometrie) [Sie93].

eines Reflexes fixiert ist, während die Probe in einem Intervall $\Delta\theta$ um die Reflexposition bewegt wird. Intensität und Halbwertsbreite der so aufgenommenen Kurve hängen ab von der Perfektion der Gitterebenen parallel zur Oberfläche. Die Kristallperiodizität kann durch Versetzungsbildung sowie Verbiegung der Probenoberfläche beeinträchtigt werden. Während perfekte Einkristalle Halbwertsbreiten von weniger als einer Winkelminute aufweisen, treten bei epitaktischen Schichten Reflexverbreiterungen im Bereich von einem Grad auf [Spi09].

1.3.4 Röntgenreflektometrie

Eine Referenzmethode zur Bestimmung von Schichtdicken dünner Schichten im nm-Bereich stellt die Röntgenreflektometrie (XRR)⁸ dar, welche zudem durch eine Analyse der Reflexamplitude Informationen über die Grenzflächenrauigkeiten, die optischen Dichten sowie die Periodizität der Schichten liefern kann. Bei der XRR wird die Veränderung der Reflektivität als Funktion des Einfallswinkels θ zwischen Probe und Strahl untersucht, wofür Röntgenstrahlung unter streifendem Einfall verwendet wird. Hierbei liegt die typische Wellenlänge für Röntgenstrahlung im Bereich von 0,1 nm (10^{19} Hz), und somit etwa vier Größenordnungen oberhalb der typischen Bindungsenergie zwischen Kern und Elektron. Das Prinzip der Reflektometrie kann daher mit Hilfe der optischen Theorie unter Verwendung des komplexen Brechungsindex $\tilde{n} = 1 - \delta - i\beta$ erklärt werden. Hierbei beschreibt der Realteil $n = 1 - \delta$ das Streuvermögen eines Materials infolge der Elektronendichteverteilung δ und der

⁸engl.: X-Ray Reflectometry

Imaginärteil $-i\beta$ das Absorptionsvermögen [Gib00]. Alle Materie besitzt für Röntgenstrahlung einen Brechungsindex $n < 1$ und zeigt somit beim Eintreten des Strahls aus Vakuum bzw. Luft für Winkel kleiner dem kritischen Winkel θ_c Totalreflexion. Für Winkel $\theta > \theta_c$ tritt hingegen eine Aufspaltung des einfallenden Strahls in zwei Komponenten auf, wie in Abbildung 1.9 zu sehen ist.

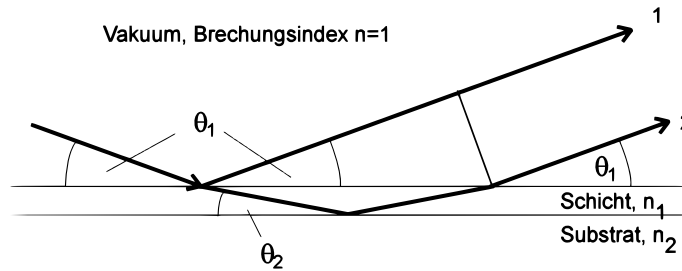


Abbildung 1.9: Schema der Schichtdickenbestimmung mittels Röntgenreflektometrie unter Berücksichtigung von Brechung (Transmission) und Reflexion eines Röntgenstrahls beim Übergang vom Vakuum in ein Medium.

Ein Teil der Strahlung wird als *Strahl 1* an der Oberfläche der Schicht reflektiert, während der Rest der Strahlung als transmittierter *Strahl 2* in die Schicht eindringt und hierbei gebrochen wird. Dieser transmittierte *Strahl 2* wird wiederum an der Grenzfläche zwischen Substrat und Schicht reflektiert und kann beim Austreten mit dem zuvor reflektierten *Strahl 1* interferieren. Durch kontinuierliche Erhöhung des Einfallswinkels θ erhält man so eine Abfolge von Interferenzmaxima und -minima, welche Kiessig-Fringes genannt werden [Kie31]. Eine einfache Schichtdickenbestimmung für Einsichtssysteme beruht auf der Annahme, dass im Allgemeinen der Brechungsindex der Materie für Röntgenstrahlung $n \approx 1$ ist und somit der optische Weg dem vom *Strahl 2* zurückgelegten realen Weg entspricht. Daher kann aus dem Gangunterschied der phasenverschobenen, interferierenden Strahlen direkt auf die Schichtdicke d geschlossen werden. Hierbei sind die Werte θ_i der Maxima bzw. Minima über die modifizierte Bragg-Gleichung 1.3 mit der Schichtdicke d verknüpft. In dieser geht der kritische Winkel der Totalreflexion θ_c , die Wellenlänge der Röntgenstrahlung λ , die Schichtdicke d und die Ordnung des Maximums bzw. Minimums $k_i = 1, 2, 3, \dots$ ein. Die Phasenkorrektur α hat bei metallischen Schichten auf anorganischen Substraten wie Silizium, Indium-Arsenid oder Glas einen Wert von 0 für Maxima bzw. $1/2$ für Minima. Dies entspricht einem Phasensprung um $\lambda/2$, welcher bei Reflexion eines Strahls an der Grenzfläche eines optisch dichteren Mediums auftritt.

$$\theta_i^2 = \theta_c^2 + \frac{\lambda^2}{4d^2} \cdot (k_i + \alpha)^2 \quad (1.3)$$

Die quadratische Auftragung der Werte θ_i^2 für Maxima bzw. Minima gegen die laufende Nummer der Maxima $k_i + \alpha^2$ liefert eine lineare Funktion, bei welcher durch lineare Regression die Schichtdicke d aus der Steigung errechnet werden kann. Gleich-

zeitig kann der Winkel der Totalreflexion θ_c aus dem Achsenabschnitt bestimmt werden. Für größere Schichtdicken (ca. 50 bis max. 150 nm) wird die Zuordnung der Beugungsordnung zunehmend schwieriger, da aufgrund der geringen Eindringtiefe bei kleinen Winkeln nahe θ_c die Interferenzmaxima und -minima nicht mehr stark ausgeprägt sind. Bei der Auswertung solcher Reflektogramme erweist sich eine Zuordnung der Beugungsordnung aufgrund der Optimierung des Bestimmtheitsmaßes in Bezug auf die Korrelation der Messpunkte als sehr hilfreich. Bei Multilagen treten zusätzliche Oszillationen auf, welche durch Reflexionen an der periodischen Mehrlagenstruktur der einzelnen Schichten erzeugt werden. Diese Maxima heißen Viellagen- oder Bragg-Peak. Aus ihrer Lage kann die Dicke der Bilagen, also die Periodenlänge zweier Schichten $n_{1a} + n_{1b}$, berechnet werden.

Bei Mehrschichtsystemen lässt sich die Lage der Interferenzmaxima und -minima nicht mehr genau durch eine analytische Auswertung bestimmen. Statt dessen erfolgt die rechnergestützte Anpassung einer simulierten Reflexionskurven. Hierfür werden die freien Parameter des zugrundeliegende Schichtstrukturmodells solange mit Hilfe eines iterativen numerischen Algorithmus variiert, bis die Abweichung der experimentellen Daten von der simulierten Theoriefunktion nach der Methode der kleinsten Fehlerquadrate minimal ist. Durch eine Anpassung der Reflexionsamplituden können aus dem verwendeten Schichtstrukturmodell neben den Schichtdicken auch die optischen Dichten und die Grenzflächenrauigkeiten gewonnen werden [Par54, Spi09].

1.3.5 Transmissions-Elektronenmikroskopie

Die Elektronenmikroskopie beruht auf der Verwendung beschleunigter Elektronen, deren Wellenlänge aufgrund ihrer Wellennatur nach de Broglie für Beschleunigungsspannungen von 100–400 kV im Bereich von Pikometern liegt. Das Transmissions-elektronenmikroskop (TEM) ist ähnlich wie eine Lichtmikroskop aufgebaut und ermöglicht die Abbildung eines durchstrahlten Objektes bis zu einer Punktauflösung von 0,05–0,2 nm [Ros05]. Die Elektronenstrahlerzeugung erfolgt mittels Wolfram-Hohlkathoden oder Feldemissionskathoden, bei der Strahlkollimation kommen vorwiegend magnetische Linsen zum Einsatz [Kno32a, Kno32b]. Die tatsächliche Auflösung eines TEM ist durch die Abbildungsfehler der optischen Säule bestimmt. Der Chromatischen Aberration wird durch eine hochkonstante elektronische Regelung der Elektronenenergie begegnet, Astigmatismen können durch Ablenkmagneten ausgeglichen werden. Das Fehlen einer magnetischen Zerstreulinse für die Elektronenoptik erschwerte bisher die Korrektur der sphärischen Aberration, welche einhergehend mit einer starken Verringerung des Strahlstroms mit Aperturblenden vor den magnetischen Linsen sowie durch eine sorgfältige Auslegung der optischen Säule minimiert werden kann. Seit kurzem erst sind Korrekturlinsen für sphärische Aberration (Cs-Corrector) basierend auf nicht rotationssymmetrischen Elektronenlinsen kommerziell erhältlich. Durch ihren Einsatz kann die Auflösung von TEM-Systemen bis in den subatomaren Bereich gesteigert werden [Urb08, Urb09].

Die Kontrasterzeugung erfolgt bei der Abbildung amorpher Materialien überwiegend durch einen element- und schichtdickenabhängigen Massendickenkontrast,

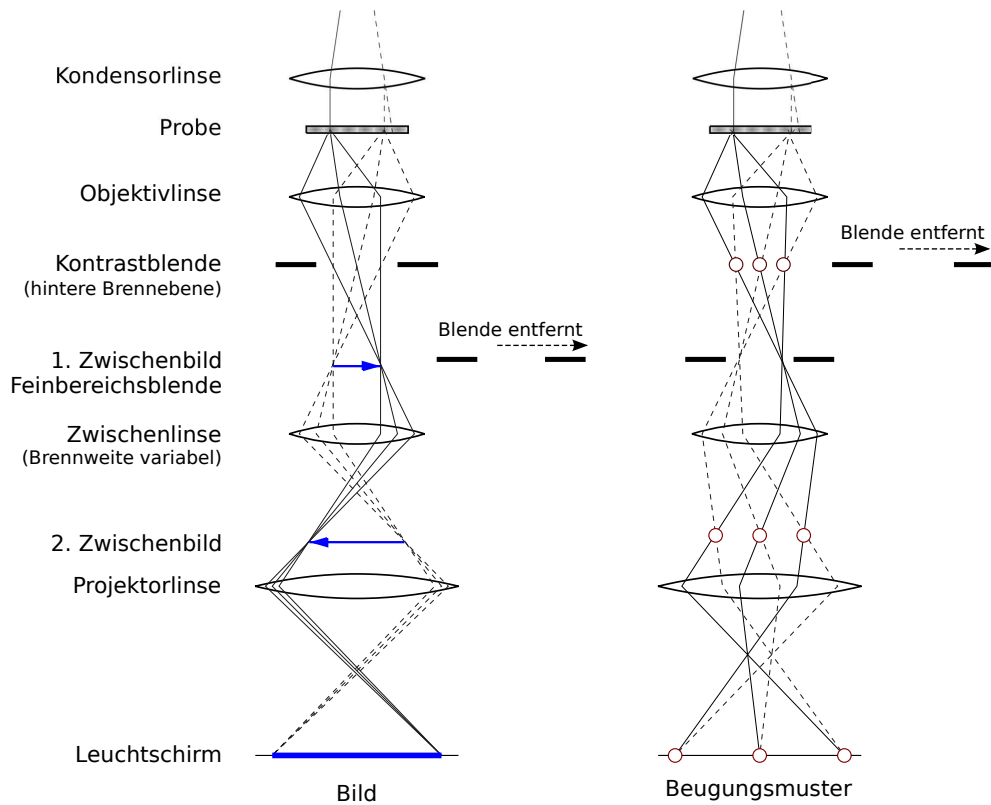


Abbildung 1.10: Strahlengang im TEM bei Abbildung und Beugung. Mittels der Kondensorlinsen und Blenden können Intensität, Durchmesser und Konvergenz des auf die Probe treffenden Elektronenstrahl bestimmt werden. Die Objektivlinse erzeugt ein vergrößertes 1. Zwischenbild der durchstrahlten Probe, wobei in ihrer hinteren fokalen Brennebene die Fouriertransformation dieses Bildes entsteht. Bei kristallinen Materialien entsteht an dieser Stelle das Beugungsbild. Mit der Zwischenlinse kann je nach Erregung wahlweise eine Vergrößerung des 1. Zwischenbildes im Abbildungsmodus oder des Feinbeugungsbildes im Beugungsmodus erzeugt werden. Die Kontrastblende ermöglicht das Ausblenden stärker gebeugter Strahlen im Hellfeldmodus, bzw. die Auswahl des gebeugten Strahl für die Dunkelfeldabbildung. Im Beugungsmodus ist die Kontrastblende vollständig geöffnet und die Feinbereichsblende[†] ermöglicht die Auswahl des zur Beugung beitragenden Probenbereiches. Die nachfolgenden Zwischen- und Projektivlinsen bewirken ein weitere Vergrößerung des mit dem jeweiligem Aufnahme medium beobachteten Bildes. In der vereinfachten Darstellung sind zwei einfallende Strahlen mit je drei gebeugten Strahlen abgebildet.

[†] engl.: *Selected Area Diffraction, SAD*

während bei kristallinen Materialien der Beugungscontrast eine Abbildung der Realstruktur ermöglicht. Die untersuchten Proben müssen für Elektronentransparenz entsprechend ihrer elementabhängigen Absorption und der Beschleunigungsspannung des TEM auf 5–500 nm gedünnt werden. In Abbildung 1.10 ist ein vereinfachter Strahlengang eines TEM für den Abbildungs- und den Beugungsmodus dargestellt. Bei einer Abbildung im Hellfeldmodus wird die Kontrastblende so eingestellt, dass stärker gestreute Elektronen in der hinteren Brennebene ausgeblendet werden. Hierdurch wird der Contrast von Biege- und Dickenkonturen erhöht, da stark streuende Details im Bild dunkel erscheinen. Im Dunkelfeldmodus erfolgt hingegen durch Kippen des Primärstrahls die Abbildung eines Strahls der stärker gebeugten Elektronen. Hierfür wird einer der Beugungsreflexe in der hinteren Bildebene zur Bilderzeugung ausgewählt, während die anderen abgebeugten Strahlen sowie der Primärstrahl durch die Kontrastblende ausgeblendet werden. Der Dunkelfeldmodus ist besonders geeignet zur Abbildung von ein- und zwei-dimensionalen Gitterfehlern, da diese bei kristallinen Materialien jeweils spezifische Beugungscontraste erzeugen. Bei der Untersuchung von kristallinen Materialien im Beugungsmodus erfolgt eine Abbildung der hinteren fokalen Brennebene, in der ein Elektronenbeugungsbild des durchstrahlten Probenvolumens auftritt. Zum Umschalten zwischen Abbildungs- und Beugungsmodus kann die Brennweite der Zwischenlinse durch eine Änderung des Erregungsstroms variiert werden. Wenn im Beugungsmodus ein paralleles Strahlenbündel zum Durchleuchten der Probe verwendet wird, bezeichnet man dies als Feinbereichsbeugung⁹. Die Feinbereichsbeugung ermöglicht die Untersuchung von Kristallstruktur und Kristallorientierung eines mittels der Feinbereichsblende ausgewählten 0,1–1 μm großen Probenbereiches.

Neben der Bilderzeugung kann bei vielen TEM-Aufbauten auch eine Detektion der angeregten charakteristischen Röntgenstrahlung erfolgen. Zur Elementanalyse kommt hierfür oft ein energiedispersiver Detektor auf Halbleiterbasis zum Einsatz. Bei geringer Vergrößerung mit aufgefächertem Strahl ermöglicht dies eine Untersuchung der Stöchiometrie dünner Schichten. Eine erweiterte Möglichkeit bietet die Kombination mit abbildenden Spektrometern, welche bei energiegefilterten TEM-Untersuchungen eine lokale Elementanalyse bei hohen Vergrößerungen ermöglicht.

1.3.6 SQUID-Magnetometrie

Das makroskopische magnetische Moment m sowie die Magnetisierung¹⁰ M einer Probe kann in Abhängigkeit vom Magnetfeld H für verschiedene Temperaturen mittels der Magnetometrie bestimmt werden. Hierbei wird die Stärke der magnetischen Dipole durch ihre magnetische Anziehungskraft (Torsionsmagnetometer) oder ihre Induktionswirkung erfasst (Induktionsmagnetometer). Bei dem oft verwendeten Aufbau des Induktionsmagnetometers wird ein Probendipol periodisch in einer Aufnahmespule bewegt und die resultierende Induktionsspannung als Funktion des Ortes erfasst. Bei Kenntnis der Geometrie lässt sich aus dieser ortsabhängigen

⁹engl.: Selected Area Diffraction (SAD)

¹⁰die Magnetisierung M ist definiert als magnetisches Moment pro Volumeneinheit m/V

Spannungsveränderung das magnetische Moment der Probe berechnen. Die Empfindlichkeit der Messung kann durch den Einsatz eines SQUID¹¹ erheblich gesteigert werden.

Da bei einer Messung sowohl die Variation der magnetischen Feldstärke als auch der Temperatur möglich ist, gibt es verschiedene Messverfahren, welche ihrerseits Aussagen über unterschiedliche magnetische Eigenschaften der Probe liefern. Für die Bestimmung der Hysterese $M(H)$ wird eine Probe bei konstanter Temperatur einem externen Magnetfeld ausgesetzt und die sich ändernde Magnetisierung, welche die Reaktion des Stoffes auf das äußere Feld H darstellt, erfasst. Bei einem Ferromagneten ohne magnetische Vorgeschichte wird beim ersten Anstieg der Magnetisierung die sogenannte Neukurve aufgenommen, bei welcher eine Ausrichtung der zuvor regellos verteilten Momente bewirkt wird. In der anschließenden Messung der Magnetisierung M wird das externe magnetische Feld kontinuierlich von hohen Werten $+H$ bis zu einem entgegengesetzt gleich großen Feld $-H$ erniedrigt und anschließend wieder bis zum Startwert $+H$ erhöht. Aus dem Maximalwert der Hysterese $M(H)$ kann die Sättigungsmagnetisierung M_S des Materials bei der verwendeten Messtemperatur bestimmt werden. Eine weitere Vergrößerung des externen Magnetfelds H bewirkt keine Veränderung der Magnetisierung mehr, da alle magnetischen Bereiche in Richtung des externen Feldes ausgerichtet sind. Weiterhin bleibt in Ferromagneten nach der ersten Magnetisierung auch ohne ein externes Magnetfeld eine Restmagnetisierung zurück, welche remanente Magnetisierung oder Remanenz M_R genannt wird. Diese kann nur durch Anlegen eines magnetischen Gegenfeldes, der sogenannten Koerzitivfeldstärke H_c , aufgehoben werden.

Die Curietemperatur T_C eines Ferromagneten lässt sich aus der Messung der Remanenz M_R in Abhängigkeit von der Messtemperatur T bestimmen. Hierfür wird zunächst die Probe von einer Temperatur oberhalb T_C , also aus dem paramagnetischen Zustand heraus, abgekühlt. Anschließend wird die Probe bei der niedrigsten Messtemperatur einem Magnetfeld H ausgesetzt und so magnetisiert. Die Remanenz $M_R(T)$ des Ferromagneten wird ohne ein externes Magnetfeld mit ansteigender Temperatur gemessen, bis für eine Temperatur $T > T_C$ die Remanenz verschwindet ($M_R = 0$).

Informationen über Energiebarrieren innerhalb von anisotropen oder polykristallinen Materialien können mit der Hilfe von Zero Field Cooled-¹² und Field Cooled-¹³ Messung gewonnen werden. Bei einer ZFC-Messung wird die Probe zunächst von einer Temperatur deutlich oberhalb der Blockingtemperatur T_B , auf eine niedrigere Temperatur deutlich unterhalb T_B abgekühlt. Anschließend wird ein externes magnetisches Feld mit einer konstanten Feldstärke H angelegt und die Magnetisierung $M_{ZFC}(T)$ in Abhängigkeit von der Temperatur beim Erwärmen auf $T > T_B$ mit $H = \text{const.}$ gemessen. Die Bestimmung der FC-Kurve erfolgt durch erneutes Abkühlen der Probe im externen magnetischem Feld H unter Messung der Magnetisierung $M_{FC}(T)$. Alternativ können die Messwerte auch beim Aufwärmen der Probe im ex-

¹¹engl.: Superconducting Quantum Interference Device

¹²engl.: Zero Field Cooled (ZFC)

¹³engl.: Field Cooled (FC)

ternen Magnetfeld H nach dem vorhergehenden Abkühlen im gleichen Magnetfeld erfasst werden. Das externe Magnetfeld muss bei den ZFC- und FC-Messungen klein sein im Vergleich zu den Anisotropiefeldern, um eine Verfälschung der im Kurvenverlauf wiedergegebenen intrinsischen Energiebarrieren auszuschließen.

Nach dem Abkühlen der Probe ohne Feld (ZFC) sind die magnetischen Momente bei isotropen Materialien in ihrer statistischen Ausrichtung quasi eingefroren. Bei magnetisch anisotropen Materialien erfolgt hingegen eine bevorzugte Ausrichtung der magnetischen Momente entlang der sogenannten leichten Achse, welche einer bevorzugten kristallographischen Richtung eines Teilchens entspricht. Hierbei wird die thermische Fluktuation der magnetischen Momente oder deren Ausrichtung durch ein externes Magnetfeld behindert, was als Blockingeffekt bezeichnet wird. Durch das Einschalten des Magnetfeldes und einer schrittweisen Erhöhung der Temperatur wird dem System Energie zugeführt, welche in einer sukzessiven Ausrichtung der magnetischen Momente resultiert, die Blockierung der Ausrichtung wird allmählich aufgehoben. Die zunehmende parallele Ausrichtung der Momente führt zu einem Anstieg der Magnetisierung. Bei Erreichen der Blockingtemperatur T_B sind alle magnetischen Momente frei und somit parallel in Richtung des externen Magnetfeldes ausgerichtet, es bildet sich ein Maximum in der ZFC-Kurve aus. Eine weitere Temperaturerhöhung resultiert in einer Zunahme der thermischen Fluktuationen, welche zu einer Erniedrigung der Magnetisierung aufgrund der immer stärkeren Unordnung der magnetischen Momente entsprechend dem Curie Gesetz führt. Die Magnetisierung nimmt mit zunehmender Temperatur weiter ab, bis die magnetische Ordnungstemperatur des Systems, bei Ferromagneten die Curietemperatur T_C , erreicht ist. Bei dieser Temperatur übersteigt die thermische Energie die der Austauschwechselwirkung, so dass aufgrund der thermischen Fluktuation alle magnetischen Momente regellos angeordnet sind. Die Probe verhält sich oberhalb T_C paramagnetisch. Die FC-Kurve ist im Idealfall bis zur Blockingtemperatur T_B mit der ZFC-Kurve identisch. Erst bei einer weiteren Temperaturerniedrigung wirkt sich die anhaltende Ausrichtung der Momente durch das externe magnetische Feld H aus. Die magnetischen Momente werden im parallel zum Magnetfeld ausgerichteten Zustand eingefroren. Eine Minimierung der restlichen thermischen Fluktuation bewirkt unterhalb der Blockingtemperatur einen Anstieg der Magnetisierung M_{FC} auf einen Wert oberhalb des Maximums für die ZFC-Kurve. Abweichungen vom idealen Verhalten können durch eine Größenverteilung der Teilchen hervorgerufen werden, welche zu einer gemittelten Blockingtemperatur führt, da in einem größeren Temperaturbereich die Blockierung für Teilchen verschiedener Größe sukzessive aufgehoben wird.

Bei dünnen magnetischen Schichten ist die Menge des magnetischen Materials sehr gering, eine Messanordnung mit hoher Empfindlichkeit ist daher notwendig. Um das magnetische Moment m und daraus die Abhängigkeit der Magnetisierung M vom externen Magnetfeld H (mit $T = \text{const.}$) oder der Temperatur T (mit $H = \text{const.}$) zu bestimmen, wird daher oft ein SQUID-Magnetometer verwendet. Ein SQUID-Magnetometer besitzt eine supraleitende Aufnahmespule mit 1-2-1 Windungen, von denen die mittlere im entgegengesetzten Richtungssinn zu den ande-

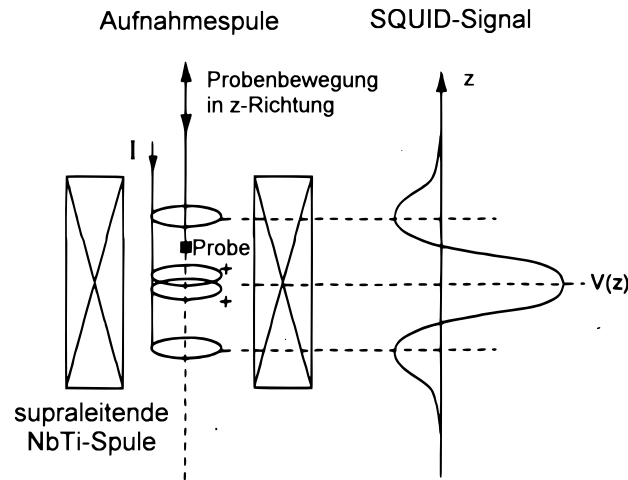


Abbildung 1.11: Gradiometer 2. Ordnung bei Messungen im SQUID. Die gemessene Spannung $V(z)$ des SQUID-Kontaktes ist proportional zum magnetischen Moment m der Probe bei Bewegung durch die Aufnahmespule. Die supraleitende Spule dient der Ausrichtung der magnetischen Momente bei Messungen mit externem Magnetfeld.

ren beiden gewickelt ist (Aufbau siehe Abbildung 1.11). Diese Anordnung nennt man ein Gradiometer zweiter Ordnung. Der magnetische Fluss wird durch diese Aufnahmespule, welche als Flusstransformator dient, über eine größere Fläche aufgenommen und über eine weitere Induktivität in den SQUID eingekoppelt. Dieser besteht aus einer supraleitenden Stromschleife, in der sich zwei Josephson-Kontakte befinden. Letztere sind dünne Isolationsschichten die unter bestimmten Bedingungen durchtunnelt werden können. Quanteninterferenzen zwischen den Strömen durch die beiden Josephson-Kontakte ermöglichen die Messungen von sehr kleinen Flussänderungen. So können Bruchteilen eines Flussquantums nachgewiesen werden, was zu der für Dünnschichtmessungen notwendigen hohen Empfindlichkeit führt. Der SQUID ist räumlich getrennt von der Probe angeordnet, welche dadurch in der Mitte des supraleitenden Magneten hohen Magnetfeldern ausgesetzt werden kann. Bei der Messung wird die Probe periodisch durch die Mitte der Aufnahmespule parallel zu den magnetischen Feldlinien in z -Richtung bewegt. Hierbei wird durch Dipole des Probenmaterials ein elektrischer Strom in den Windungen induziert, der proportional zur zeitlichen Änderung des eingeschlossenen magnetischen Flusses ist. Dieser Strom wird in einem linearen Strom-Spannungskonverter in eine Spannung umgewandelt. Die Magnetometersteuerung detektiert diese dann in Abhängigkeit von der Probenposition in z -Richtung. Aus dieser $V(z)$ -Kurve errechnet das System dann durch Anpassen eines Algorithmus das magnetische Moment m der Probe. Das SQUID besitzt eine Empfindlichkeit von $6 \cdot 10^{-4}$ bis $10^{-2} \Phi_0$, was bei optimalen Bedingungen einer Auflösung des magnetischen Momentes von ca. 10^{-12} Am^2 entspricht. In Einheiten des cgs-Systems sind dies 10^{-9} emu (electromagnetic unit).

1.3.7 Punktkontakt-Andreev-Spektroskopie

Eine Methode um die Spinpolarisation bei ferromagnetischen Materialien zu bestimmen ist die Punktkontakt-Andreev (PCAR¹⁴) Spektroskopie. Bei dieser wird die Spitze eines supraleitenden Metalls als Punktkontakt verwendet, um die Leitfähigkeit dieses Kontaktes in Abhängigkeit von der Lage des Fermi-niveaus des ferromagnetischen Materials zu bestimmen. Die Spinpolarisation kann entsprechend folgenden Modellvorstellungen ermittelt werden.

Bei bestimmten Materialien beobachtet man unterhalb einer spezifischen Sprungtemperatur das Auftreten einer supraleitenden Phase, innerhalb derer ein Ladungstransport widerstandslos erfolgt. Nach der Theorie von Bardeen, Cooper und Schrieffer (BCS-Theorie) koppeln bei solchen Supraleitern je zwei Elektronen entgegengesetzten Spins und Wellenvektors zu so genannte Cooper-Paaren [Bar57]. Diese bosonischen Quasiteilchen folgen nicht mehr der Fermi-Dirac-Statistik und tragen während des supraleitenden Zustandes den gesamten Strom. Aufgrund des Pauli-Prinzips entsteht bei dieser Koppelung im Supraleiter eine Bandlücke der Größe 2Δ . Bei einem Kontakt zwischen Supraleiter und einem normalleitendem Metall, dessen Fermi-niveaus innerhalb der Bandlücke liegt, steht dem einlaufendem Elektron auf der Seite des Supraleiters aufgrund der Bandlücke kein Koppel-Elektron zur Verfügung. Um ein Cooper-Paar aus zwei Elektronen zu bilden, wird ein lochartiger Zustand mit gleichem Spin und entgegengesetztem Wellenvektor ausgebildet, welcher in das normalleitende Metall zurückreflektiert wird (siehe Abbildung 1.12a)). Diesen Vorgang bezeichnet man als Andreev-Reflexion [And64]. Die Leitfähigkeit des Metall-Supraleiterkontaktes erhöht sich durch dieses zusätzliche Elektron auf den doppelten Wert.

Der Normalleiter-Supraleiterübergang wird in dem quantenmechanischen Modell von Blonder, Tinkham und Klapwijk (BTK-Modell) beschrieben [Blo82]. Dieses liefert Wahrscheinlichkeiten für Loch- und Elektronen-Transmission sowie normale und Andreev-Reflexion und erlaubt es, den Strom-Spannungszusammenhang für einen Normalleiter-Supraleiterübergang darzustellen. Die Qualität der Grenzflächen wird im BTK-Modell mit dem Parameter Z beschrieben. Ein ballistischer Kontakt mit perfekter Grenzfläche entspricht $Z = 0$ und eine Tunnelbarriere einem Wert von $Z = 1$ oder größer. Für einen Übergang zwischen ferromagnetischen Metallen und Supraleitern entwickelten Soulen *et al.* eine Erweiterung des BTK-Modells, in welcher der Gesamtstrom als eine Kombination aus polarisiertem und unpolarisiertem Anteil beschrieben wird [Sou98]. Im Kontakt mit einem ferromagnetischen Metall mit vollständiger Spinpolarisation ($P = 1$) kann kein Cooper-Paar mehr gebildet werden. Da aufgrund der Bandstruktur des Metalls kein lochartiger Zustand innerhalb des Energieintervalls 2Δ mehr gebildet werden kann, wird die Andreev-Reflexion vollständig unterdrückt (siehe Abbildung 1.12b)). Die resultierende Leitfähigkeit eines solchen Ferromagnet-Supraleiterkontaktes ist gleich null.

Die Lage der Fermienergie innerhalb der Bandlücke eines Normalleiter-Supraleiterkontaktes kann durch Anlegen einer äußeren Spannung beeinflusst werden. Die

¹⁴engl.: Point Contact Andreev Reflection

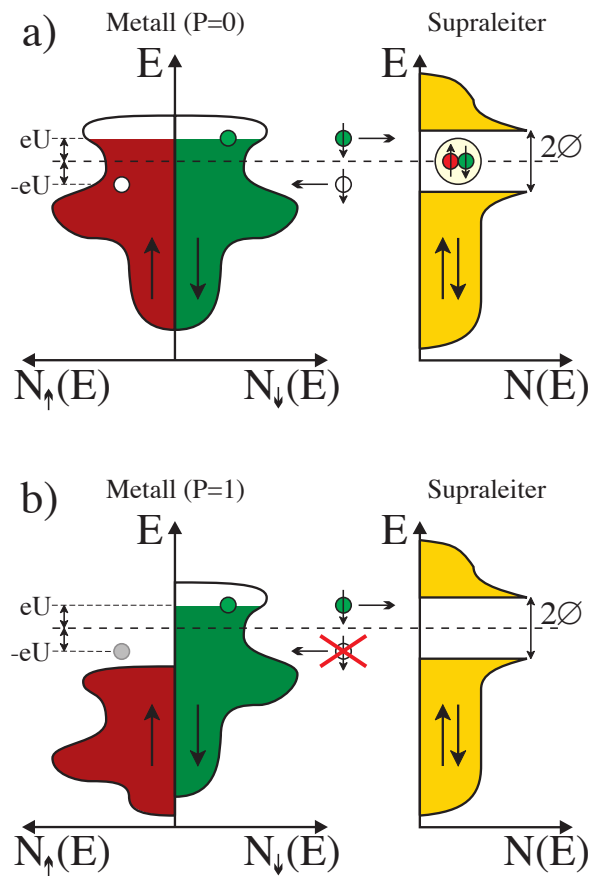


Abbildung 1.12: a) Andreev-Reflexion beim unpolarisierten Metall ($P=0$). Für die Bildung eines Cooper-Paares ist ein weiteres Elektron mit entgegengesetztem Spin notwendig. Der Supraleiter kann aufgrund seiner Bandlücke kein Elektron beitragen. Das Elektron wird erzeugt, indem ein Loch mit entgegengesetztem Spin in das Metall zurück reflektiert wird. b) Bei einem vollständig polarisierten Metall ($P=1$) wird die Andreev-Reflexion unterdrückt. Da keine Zustände für ein Elektron mit entgegengesetztem Spin im Metall existieren kann kein Cooper-Paar gebildet werden. Die resultierende Leitfähigkeit des Kontaktes ist gleich null [Sch04].

resultierenden Veränderungen in der Leitfähigkeit lassen sich im Rahmen des erweiterten BTK-Modells beschreiben. Mit diesem lassen sich Strom-Spannungskennlinien für eine beliebige Temperatur (T), Polarisation (P) oder Grenzflächenbeschaffenheit (Z) berechnen. Durch Anpassen an die Messdaten kann die Spinpolarisation des Normalleiters bestimmt werden [Sch04, Boc07].

1.3.8 Magneto-Optische Ellipsometrie

Spektrale generalisierte Magneto-Optische Ellipsometrie (SGME) ermöglicht sowohl die Diagonalelemente ε_{xx} , als auch die Nicht-Diagonalelemente ε_{xy} des dielektrischen Tensors einer Probenoberfläche mit einer einzigen Messung und ohne ein *a priori* Wissen über die Orientierung der Magnetisierung M zu bestimmen. Hierbei liefert SGME für ferromagnetische Substanzen den Zusammenhang zwischen elektronischen und magnetischen Materialeigenschaften, da die Nicht-Diagonalelemente des dielektrischen Tensors für Stoffe ohne ferro- oder ferrimagnetisches Materialverhalten verschwinden [Ber97, Rau05]. In den Messungen werden die Intensitäten des detektierten Lichts für verschiedene Kombinationen von Polarisator- und Analysatorwinkeln sowie unterschiedlichen externen Magnetfeldern aufgenommen. Die Orientierung der Magnetfelder ist parallel zur untersuchten Schicht und senkrecht zum Einfallswinkel des Lichts. Zur Verbesserung des Signal- zu Rauschverhältnisses werden die relativ schwachen nicht-diagonalen Tensorkomponenten mittels differenzieller Spektroskopie im externen Magnetfeld ermittelt. Während die Diagonalelemente des dielektrischen Tensors nicht durch eine Umkehr des magnetischen Feldes beeinflusst werden, erfahren die Nicht-Diagonalelemente, welche die Informationen über die magnetischen Eigenschaften tragen, einen Vorzeichenwechsel. Somit wird das resultierende differentielle Spektrum aus der Differenz von zwei Intensitätsspektren berechnet, welche mit entgegengesetzter Magnetfeldorientierung gemessen wurden. Der Imaginäranteil ε_{2xx} des Diagonalelementes ε_{xx} ist proportional zu der Summe des links-zirkularpolarisierten und rechts-zirkularpolarisierten Lichts, während der Imaginäranteil ε_{1xy} des Nicht-Diagonalelementes ε_{xy} proportional ist zu dem Ungleichgewicht der Spin- \uparrow und Spin- \downarrow Zustandsdichten, welche an den optischen Übergängen beteiligt sind, also proportional der Spinpolarisation [Ben65].

Ein Maß für die relative Spinpolarisation einer spezifischen Probe ist die Größe des Wertes ε_{1xy} bei einer gewählten Energie. Da es bei Messungen innerhalb einer gleichartigen Probenserie aufgrund von Oberflächeneffekten dennoch zu geringfügigen Verschiebungen der gemessenen Spektren auf der Energieskala kommen kann, ist es für einen Vergleich der Messwerte vorteilhaft, durch Aufsummieren in einem eingeschränkten Energiebereich einen integrierten Wert für ε_{1xy} zu berechnen. Die Auswahl des Energiebereiches erfolgt im Hinblick auf die jeweils materialspezifischen spinpolarisierten Bänder. Für einen Vergleich mit der in elektrischen Messungen bestimmten Spinpolarisation sollten die Grenzen des Integrationsbereiches so gewählt werden, dass überwiegend solche Zustände zu den in optischen Übergängen beobachteten spinpolarisierten Bändern beitragen, welche auch für die Spinpolarisation bei der Fermienergie verantwortlich sind. Die relative Entwicklung der Spinpola-

risation bei der Fermienergie innerhalb einer Probenserie kann so aus einem Vergleich der mittels SGME bestimmten integrierten ε_{1xy} -Werte abgeschätzt werden [Sin09, Vol09].

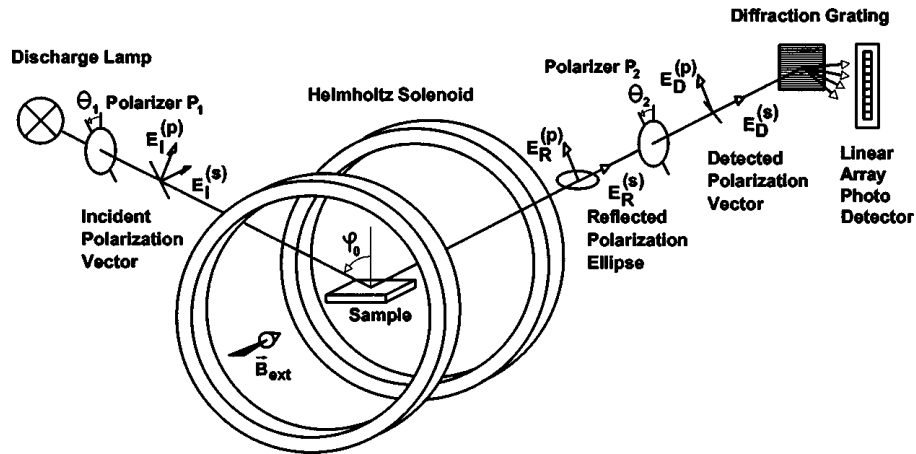


Abbildung 1.13: Prinzip eines Magneto-Optischen Ellipsometers, bestehend aus Lichtquelle, zwei rotierbaren Linear-Polarisatoren, dem wellenlängendispersiven Detektor und Helmholtzspulen zur Erzeugung des externen Magnetfeldes [Rau05].

Kapitel 2

Probenpräparation

Im vorliegenden Kapitel werden zuerst die bei der Planung der Metalldepositionskammer verfolgten Ziele sowie der Aufbau und die Funktionsweise beschrieben. Im Anschluss werden die Prozessschritte erläutert, welche für das Wachstum stöchiometrischer Ni_2MnIn -Schichten unabhängig von der Substratauswahl unter Verwendung des Aufbaus zur Molekularstrahlepitaxie aus Kapitel 2.1 notwendig sind. Voruntersuchungen liefern wichtige Informationen für eine stöchiometrische Probenpräparation, über die Prozessstabilität und die erreichte Schichthomogenität sowie die Langzeitstabilität der hergestellten Heuslerproben. Abschließend werden die Wachstumsparameter von vier Probenserien vorgestellt, welche im weiteren Verlauf der Arbeit untersucht werden.

2.1 Metallkammer

2.1.1 Design der Metallkammer

Im Rahmen dieses Projektes wurde eine spezielle Kammer zum Ko-Verdampfen von Metallen für die Deposition von Ni_2MnIn -Heuslerlegierungen auf Halbleitersubstraten direkt in die Transferlinie des bestehenden Vakuumsystems adaptiert. Es handelt sich bei dieser Kammer um ein modifiziertes Transfermodul, an das ein Cluster-Flansch für bis zu vier Effusionszellen zum Verdampfen von Quellenmaterialien adaptiert ist. Eine besondere Herausforderung bestand in der konstruktiven Vermeidung jeglicher Kontamination der mit dem Vakuumtransfer verbundenen III/V-MBE-Kammern. Das grundlegende Konzept hierzu wurde bereits vor Projektstart von C. Heyn entwickelt. Vervollständigung des Konzeptes, Beauftragung der Fertigung, Aufbau der Kammer sowie Integration von Anbaukomponenten und umfangreicher Überwachungs- und Steuerelektronik erfolgten im Rahmen dieses Promotionsprojektes.

In Abbildung 2.1 ist eine Schemazeichnung des im weiteren *Metallkammer* genannten Aufbaus dargestellt. Die Deposition der Metallschichten erfolgt direkt im Transfertunnel auf MBE-Probenträger, welche auf einer dedizierten Position des Probenwagens platziert sind. Aufwändige Blenden verhindern das unbeabsichtigte

Bedampfen der MBE-Probenhalter mit Heusler-Komponenten. Hierbei findet eine austauschbare Lochblende Verwendung, welche über eine vorklappbare Kulissenmechanik verfügt. Die Lochblende kann, wie in Abbildung 2.2(b) dargestellt, direkt vor der Probe im MBE-Probenträger positioniert werden. Das Aufdampfen der Heusler-Schicht erfolgt so kontrolliert in einem nur 10 mm durchmessenden Bereich. Eine Materialverschleppung in die MBE-Wachstumschamber durch kontaminierte Probenträger kann daher sicher ausgeschlossen werden. Das Substrat auf dem MBE-Probenträger kann bis 400 °C mit dem Substratheizer aus Abbildung 2.2(c) erhitzt werden. Die keramische Heizplatte des Probenheizers ist zusammen mit Hitzeschilden aus Tantal auf einem Linearvorschub montiert, welcher durch die Halteringe des Probenwagens hindurch an der Rückseite der Molybdänprobenträgers positioniert wird (siehe Abbildung 2.2(d)).

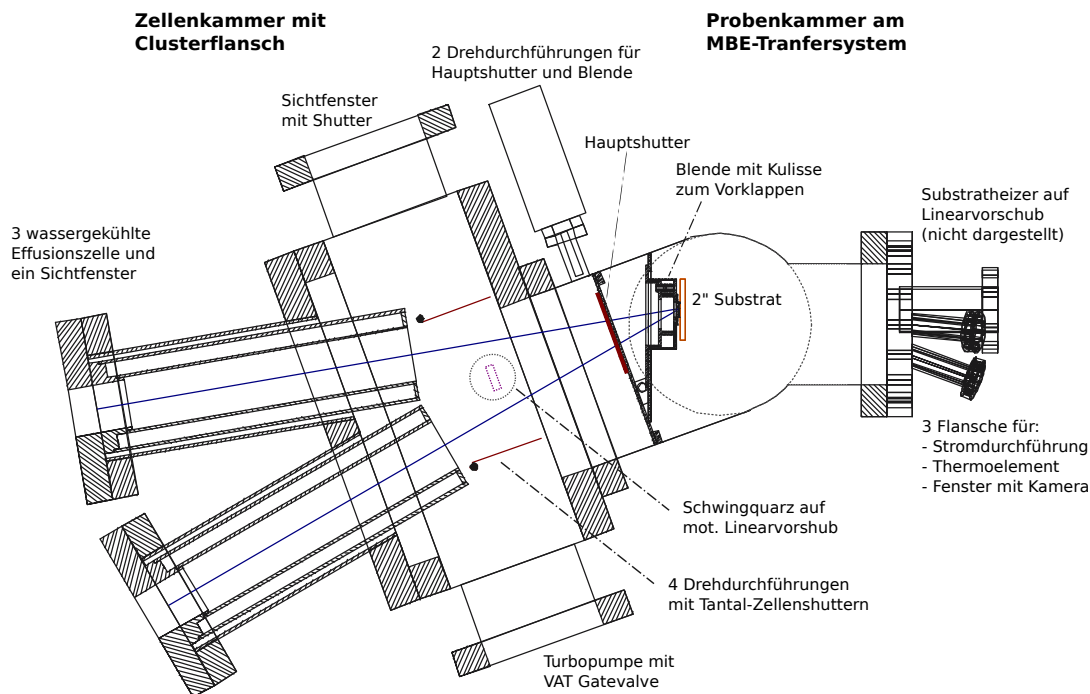


Abbildung 2.1: Schematische Darstellung der Metallkammer im Schnitt: Die Position des Substrates ist in orange hervorgehoben. Die blauen Linien geben den Schnittpunkt der Normalen der Zellenöffnungen wieder. Zellen- und Hauptshutter sind in Rot gekennzeichnet. Die Position des beweglichen Schwingquarzes ist mit gepunkteter Linie dargestellt.

Drei der verfügbaren Zellenflansche sind mit Quellen für Nickel, Mangan und Indium bestückt, um epitaktische Schichten der Heuslerlegierung Ni_2MnIn herzustellen. Alle Zellen besitzen eine separate Wasserkühlung. Ein Fenster im Clusterflansch ermöglicht beim Verdampfen einen Blick auf die Substratoberfläche zur Kontrolle der Probenposition. Jede Effusionszelle ist mit einem individuellen Zellenshutter aus Tantal ausgerüstet (Drehdurchführungen mit grünen Griffen in Abbildung 2.2(a) links und rechts der Zellenkammer). Der Hauptshutter erlaubt das Kalibrieren der Zellenflüsse mit dem Schwingquarz sowie Substratwechsel ohne Bedampfen der Pro-

ben oder des Probenwagens. Die Flussraten werden für jede Zelle mittels eines wassergekühlten Schwingquarzes und passendem Schichtdicken-Monitor bestimmt. Über einen motorisierten Linearvorschub ist für jede Verdampferquelle eine optimale Position des Schwingquarzes durch eingespeicherte Indizes präzise und reproduzierbar ansteuerbar.

2.1.2 Technische Anforderungen

Effusionszellen

Je nach Legierungskomponente kommen beim Aufdampfen unterschiedliche Typen von Effusionszellen zum Einsatz. Indium wird aus einer Standardeffusionszelle *ABN 135L* der Firma *Riber* verdampft. Für das Verdampfen von Mangan wird eine so genannte „Hot-Lip“-Zelle *ST 35HL* der Firma *Addon* verwendet, deren Thermo-elementarretierung nachträglich modifiziert wurde. Eine „Hot-Lip“-Zelle weist einen ansteigenden Temperaturgradienten zur Zellenöffnung auf, wodurch die Ablagerung von sublimiertem Mangan verhindert werden soll. In einer konventionellen Effusionszelle wurde zuvor ein starkes Umlagern des Mangans vom Boden des Tiegels an die Mündungsöffnung beobachtet, was zu extrem schlecht reproduzierbaren Flussraten führte. Erst der Einsatz einer „Hot-Lip“-Zelle brachte eine deutliche Verbesserung, so dass der Mangan-Fluss stabil und reproduzierbar eingestellt werden konnte. Da die hochschmelzende Komponente Nickel bei deutlich höheren Temperaturen als Indium und Mangan verdampft werden muss, wird hierfür eine spezielle Hochtemperatur-Zelle eingesetzt. Im Gegensatz zu den bei niedrigeren Temperaturen verdampfenden Materialien kann als Tiegelmateriale kein Bornitrid mehr eingesetzt werden aufgrund der beginnenden thermischen Zersetzung des Materials. Derzeit wird eine spezielle Hochtemperaturzelle *HTC-40-10-1700* der Firma *Createc* verwendet, welche mit einem Berylliumoxid-Tiegel ausgestattet ist. In Verbindung mit BeO-Tiegeln kann Nickel oberhalb des Schmelzpunktes bei Temperaturen von bis zu 1650 °C verdampft werden. Aufgrund der stark unterschiedlichen Ausdehnungskoeffizienten von Keramik und Metall besteht beim zu schnellen Abkühlen der metallischen Schmelze latent die Gefahr eines Tiegelbruchs. Daher wird beim Absenken von Betriebs- auf Standbytemperatur eine sehr langsame Abkühlrate von 1 °C/Minute verwendet. Bisher konnte somit ein Tiegelbruch, welcher oft die vollständige Zerstörung einer Effusionszelle zur Folge hat, vermieden werden. Das Verdampfen von Nickel unterhalb seines Schmelzpunktes kann bis 1350 °C mit Tiegeln aus Al_2O_3 erfolgen. Die hierbei erreichte Aufdampftrate von Nickel ist aber so gering, dass für ein kontrolliertes Ni_2MnIn -Wachstum im stöchiometrischen Verhältnis von 2:1 die Indium- und Manganaufdampftraten nicht mehr zuverlässig mit einem Schwingquarz bestimmt werden können.

Überwachung und Interlocks

Ein Stromausfall während des Anlagenbetriebes würde zu einem unkontrollierten Abkühlen aller Tiegel führen, wodurch vor allem für den BeO-Tiegel aufgrund des

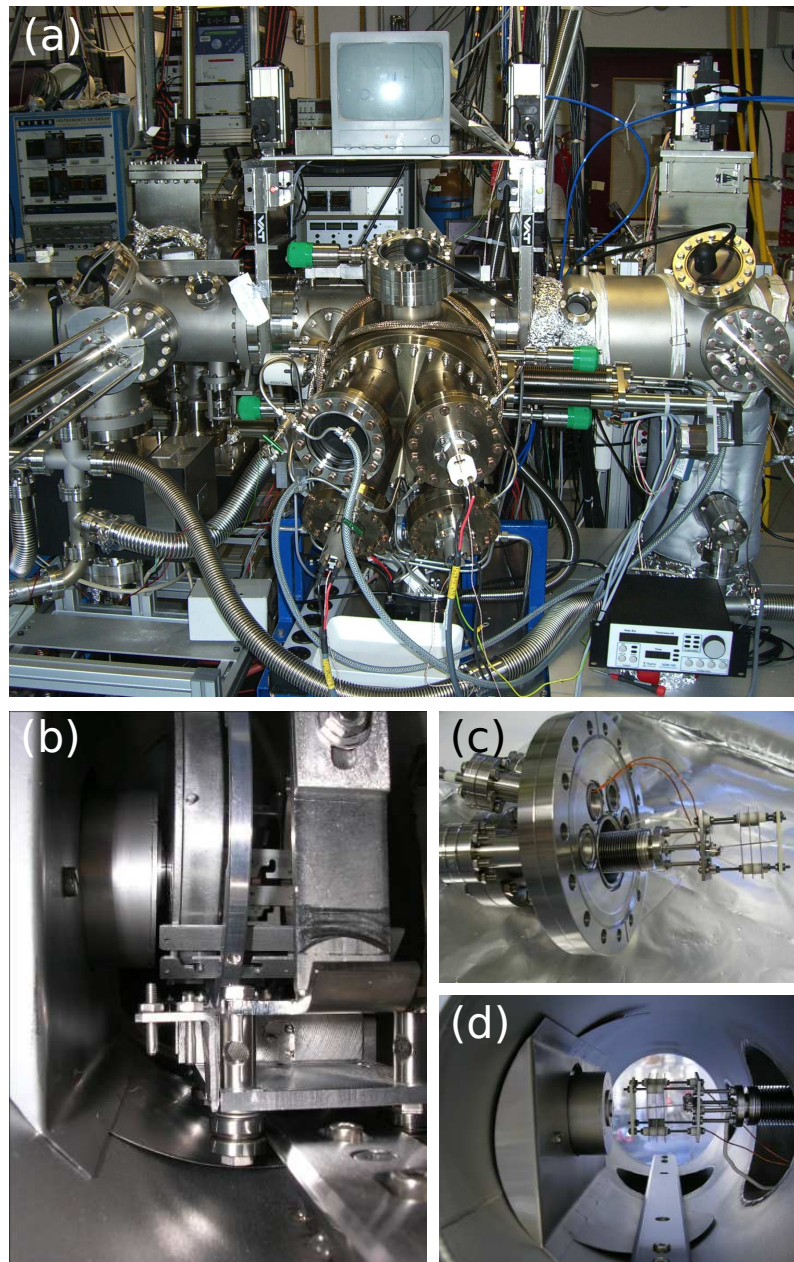


Abbildung 2.2: (a) Anblick der Metallkammer von vorne. Oben rechts im Clusterflansch der Zellenkammer ist die Nickel-Effusionszelle, darunter die Mangan-Effusionszelle und links unten die Indium-Effusionszelle eingebaut. Das Fenster im Clusterflansch ermöglicht die visuelle Inspektion der Substratoberfläche beim Aufdampfen. Auf der rechten Seite der Zellenkammer ist der motorisierte Linearvorschub des Schwingquarzes erkennbar. (b) Der vorgeschobene Blendenmechanismus im Kontakt mit einer Probe. Der MBE-Probenträger sitzt im Probenwagen auf der vordersten Position des rechten Haltekäfigs. (c) Mehrfachflansch mit Probenheizer auf manuellem CF40 Linearvorschub. Die vier CF16 Flansche sind mit Strom- und Thermoelementdurchführung des Heizers sowie zwei Fenstern verschraubt. (d) Position des ausgefahrenen Probenheizers gegenüber der Aufdampfblende im Transfermodul. Deutlich sind keramische Heizplatte und drei Hitzeschilde aus Tantal zu erkennen. Der Heizer liegt innerhalb des ringförmigen Steges des Molybdänprobenträgers.

aufgeschmolzenen Nickels die Gefahr eines Tiegelbruchs besteht. Ein Ausfall des Kühlwassers kann zu einer Überhitzung von Effusionszellen sowie Vakuumbauteilen führen. Ein Ausfall des Systems zur Vakuumerzeugung kann bei rapide sich verschlechterndem Druck eine Beschädigung der heißen Effusionszellen hervorrufen. Die Minderung solcher Risiken ist nur durch den Einsatz von Auswertesystemen gekoppelt mit Interlocks möglich, welche beim Auftreten einer Ausnahmesituation die Metallkammer in einen sicheren Betriebszustand überführen. Aus diesem Grund wurde für die Metallkammer eine Notstromversorgung angeschafft, welche die Folgen eines möglichen Stromausfalls wie z.B. Beschädigung der Hochtemperaturzelle vermeiden sollen. Eine Flussüberwachung des Kühlwassers und eine Drucküberwachung ermöglichen das automatische, kontrollierte Herunterfahren der Anlage aus dem Betriebszustand. Sowohl Vorvakuumssystem als auch Turbopumpe werden mit Hilfe von Alarm- und Stoppsignalen und einer Steuerbox gegenseitig gekoppelt angesteuert. Ein VAT-Plattenventil trennt bei Ausfall dieses Systems die UHV-Kammer von der Turbopumpe ab, um den Rückstoß von Öldämpfen in den Rezipienten auszuschließen.

Software für Prozesssteuerung

Für eine harmonisierte Prozesssteuerung der verschiedenen Metall- und Halbleiterwachstumskammern wurde im Laufe der letzten Jahre von C. Heyn die MBE-Steuersoftware *EpiControl* entwickelt. *EpiControl* ist die Reimplementation und Weiterentwicklung eines Pascal basierten Vorläuferprogrammes. Sie stellt eine einfach bedienbare und skriptfähige Oberfläche zur Steuerung von *Eurotherm 2400* PID-Reglern über das Modbus-Protokoll zu Verfügung. Eine Stärke von *EpiControl* ist sein modularer Aufbau, welcher eine einfache Abfrage verschiedener Druck- und Durchflussmessgeräte sowie die Auswertung von externen Alarmsignalen ermöglicht. Hiermit kann eine flexible Implementierung von Interlockmechanismen erfolgen, welche in Notfallsituationen spezifische eingespeicherte Programmabläufe auslösen. Neben Shutter- und Verdampferzellensteuerung ist die Erweiterung zu einer automatisierten Flussratensteuerung auf Basis von analogen Steuersignalen eines Crossbeam-Massenspektrometers für die neue Metall-MBE in Planung.

Schrittmotorsteuerung

Eine präzise Positionierung von Linearvorschüben und Drehdurchführungen kann mithilfe von Schrittmotoren erreicht werden. Der Vorteil gegenüber einem normalen Gleichstromantrieb liegt in der Möglichkeit begründet, flexibel und unabhängig von mehreren Referenzschaltern eine Vielzahl von Positionen oder Umdrehungen mit Hilfe einer elektronischen Ansteuerung vorzugeben. Ein Schrittmotor benötigt hierfür lediglich einen Referenzschalter zur externen Definition seines Nullpunktes, auch wenn bei Linearantrieben oft ein weiterer Schalter zur definierten Begrenzung des Arbeitsbereiches vorgesehen wird. Der Linearvorschub des Schwingquarzes, das Modell *RLTM 150* der Firma *Mecca 2000*, wurde nachträglich mit einem Schrittmotor

und zwei Endschaltern ausgestattet, um eine reproduzierbare und einfach anpassbare Positionierung des Sensors vor den jeweilige Effusionszellen zu ermöglichen. Der Linearvorschub für das Augerspektrometer sowie die Hohlwellendrehdurchführung *MagiDrive MD35H* der Firma *UHV Design* für die Hauptachse des neuen Metall-MBE Manipulator waren ab Werk mit Schrittmotoren ausgestattet. Für eine handliche, aber dennoch flexible Bedienung der Schrittmotoren wurde das modulare Steuersystem *IKS35S* der Firma *Ingenieurbüro Axel Stab* für drei Achsen mit einer selbstgefertigten externen Kabelfernbedienung adaptiert. Mittels der Entwicklungs-umgebung *TMCL-IDE* ist ein Programm erstellt worden, welches autark in der Schrittmotorensteuerung läuft und eine komfortable Bedienung aller drei Schrittmotoren unter der Verwendung eingespeicherter Positionen sowie inkrementeller Schritte erlaubt. Eine Änderung der gespeicherten Positionen ist jederzeit durch eine Anpassung mittels einem PC über die serielle Schnittstelle möglich.

2.1.3 In-vacuo Analytik

Im weiteren Verlauf des Dissertationsprojektes entstand der Wunsch nach einer optimierten Umsetzung einer speziell für die Herstellung metallischer Legierungen entwickelten Wachstumskammer, welche zudem eine integrierte in-vacuo Analytik aufweist. Dies führte zu der in Kapitel 6 näher beschriebenen Neukonstruktion. Da ein Teil der Geräte für die geplante in-vacuo Analytik bereits zur Verfügung stand, wurde eine Interimslösung unter Verwendung bereits angeschaffter und vorhandener Vakuumkomponenten aufgebaut. So wurde eine 3-Gitter LEED¹-Optik des Typs *ErLEED 150* der Firma *Specs* sowie ein Augerspektrometer *Super CMA ESA-100* der Firma *Staub* mit Hilfe einer provisorischen Zwischenlösung am UHV-Verbundsystem in Betrieb genommen. Hierfür wurde ein schon fertiggestelltes Zwischenstück der zukünftigen neuen Metall-MBE eingesetzt. In Abbildung 2.3 ist die momentane Adaption der LEED-Optik und des Augerspektrometers dargestellt: Das Spektrometer ist auf einem motorisiertem Linearvorschub auf dem rechten Seitenflansch montiert, die LEED-Optik sitzt am Ende des Zwischenstückes (auf dem Bild vorne zu sehen). Der Manipulator ist eine Eigenkonstruktion, bestehend aus einer motorisierten Drehdurchführung und einem Justierstück mit Wellbalg, ein so genannter Port-Aligner. Die Probenaufnahme des Manipulators ist elektrisch isoliert und über eine Vakuumdurchführung mit BNC-Stecker kontaktiert. Dies ermöglicht bei Augeruntersuchungen die Messung des Strahlstroms sowie eine Justage der Heuslerprobe vorm Augerspektrometer mittels Probenstromabbildung durch Rastern des Elektronenstrahls der integrierten Elektronenkanone. Die Winkelpositionierung des Manipulators erfolgt mit dem oben beschriebenen Steuergerät für Schrittmotoren. Die LEED-Optik ist werksseitig mit einem Linearvorschub und einem Segmentshutter ausgestattet und wird mit einem analogen *ErLEED 1000A* Netzteil in Verbindung mit der LEED/RHEED-Software *Safire* über ein TCP/IP ARM-Interface (*ARMIN*) gesteuert. Aufgrund des eingeschränkten Freiraums im verwendeten T-Zwischenstück musste der Segmentshutter temporär entfernt werden. Erste Tests ergaben,

¹engl.: Low Energy Electron Diffraction

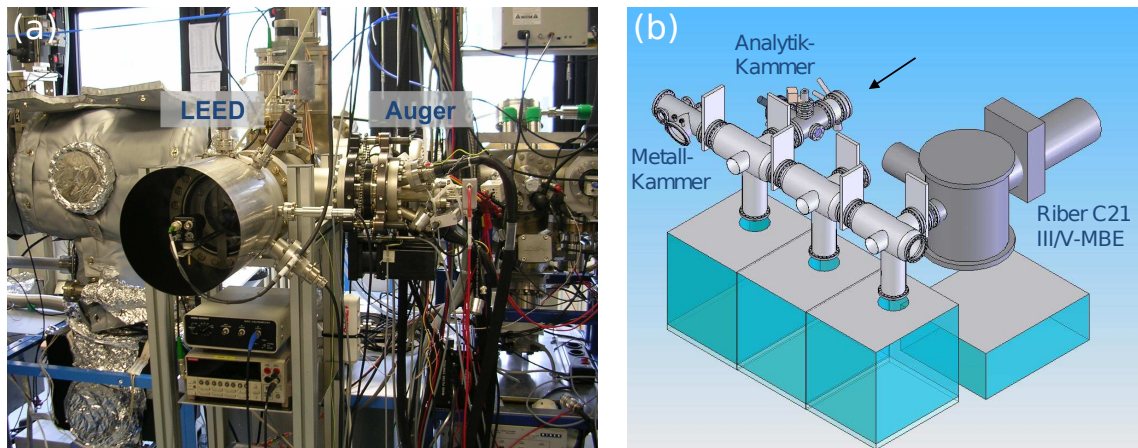


Abbildung 2.3: (a) Interimslösung für Analytik: (*links vorne*) LEED-Optik und (*rechts*) Auger-Spektrometer. Als Manipulator kommt eine Drehdurchführung, montiert auf einem Justierflansch mit Wellbalg zum Einsatz. (b) Adaption der LEED- und Auger-Analytik als Interimslösung in ein modifiziertes T-Stück. Die Blickrichtung der vorigen Aufnahme ist durch einen Pfeil gekennzeichnet.

dass die sehr eingeschränkten Einstellmöglichkeiten des simplen, aus bereits vorhandenen Teilen aufgebauten Probenmanipulators für LEED-Untersuchungen nicht ausreichen. Hingegen konnten erste Untersuchungen mittels Augerspektroskopie erfolgreich durchgeführt werden. Das Augerspektrometer verfügt über eine integrierte 5 kV Elektronenkanone, deren Elektronenstrahl durch integrierte elektrostatische Ablenkplatten über die Probenoberfläche bewegt werden kann. Der Durchmesser des Elektronenstrahls liegt bei korrekter Fokussierung im Bereich von 80–100 μm . Da die Maximalspannung dieser Ablenkplatten unabhängig von der eingestellten Beschleunigungsspannung $U_B = 0,5 - 5 \text{ kV}$ in etwa $\sim 230 \text{ V}$ beträgt, hängen maximale x/y -Ablenkung und die Vergrößerung beim Rastern über die Oberfläche von U_B ab. Der Rastergenerator *RGTV-4* ermöglicht die Ausgabe des Probenstromabbildes auf einen Monitor zur Probenpositionierung sowie alternativ die Datenaufnahme von Abbildungen im Probenstrom- oder SAM²-Modus mit der *StaiB* Steuersoftware *WinSpectro S*. Die Bauart des SuperCMA Augerspektrometers ist vergleichbar mit der eines klassischen CMA³ mit dem Unterschied, dass die spektroskopierten Elektronen nicht durch einen Schlitz innerhalb des inneren Zylinders, sondern an der Stirnseite der beiden parallelen Zylinder in das Analysatorfeld eintreten. Zusammen mit einer vorgeschalteten retardierenden Gitteroptik ermöglicht dies eine elektronisch einstellbare Energieauflösung sowie einen großen Arbeitsabstand von $\sim 30 \text{ mm}$. Dieser große Arbeitsabstand zusammen mit einer unveränderten Energieauflösung für Abweichungen von $\pm 2 \text{ mm}$ von der optimalen fokalen Probenposition erlauben eine einfache Integration dieses Spektromertyps in die zukünftige neue Wachstumskammer. Die Positionierung des Augerspektrometers relativ zur Probenoberfläche

²engl.: Scanning Auger Microscopy

³engl.: Cylindrical Mirror Analyzer

che erfolgt über einen stabilen *BLT63* Linearvorschub der Firma *McAllister*, dessen Schrittmotor ebenfalls von der aufgebauten Motorsteuerung angetrieben wird. Die Detektion der Augerelektronen erfolgt mit Hilfe eines im Spektrometer integrierten Channeltrons, welches sowohl analog zur Bestimmung des Augerstroms mit Lock-In Technik oder im oft verwendeten Pulse-Count Modus betrieben werden kann.

2.2 Herstellungsprozess

2.2.1 Vorbereitung der Metallkammer

Eine regelmäßige Wartung des Rezipienten ist aufgrund des Verbrauchs der Verdampfermaterialien in den MBE-Zellen sowie der limitierten Lebensdauer des bedampften Schwingquarzes notwendig. Die Belüftung des Rezipienten erfolgt mit hochreinem Stickstoff. Die Temperatur des Kühlwassers wird vorab auf Umgebungstemperatur angehoben zur Verhinderung von Kondensation von Wasser an innen liegenden Kaltflächen. Um eine Reaktion der bedampften Innenwände des Rezipienten mit Luft, vor allem im Hinblick auf das stark oxidierende Mangan, zu vermeiden, wird auch nach Kammeröffnung der Stickstofffluss aufrecht erhalten und gleichzeitig die Zeit der Exposition der Kammerwände an Luft minimiert. Falls die Öffnung großer Kammerflansche notwendig ist oder langwierige Arbeiten anstehen, werden die Öffnungen provisorisch verschlossen. Die Befüllung der MBE-Zellen erfolgt in einem abgegrenzten Bereich des Labors nahe des Rezipienten, welcher mit einem laminaren Fluss der Reinraumklasse 100 ausgerüstet ist.

Der Reinheitsgrad der verwendeten Quellenmaterialien genügt den hohen Anforderungen für Molekularstrahlepitaxie. Nickel wird in der Form von hochreinen Pellets (Reinheitsgrad 5N, Größe $\varnothing 6,35 \text{ mm} \times 6,35 \text{ mm}$, Gewicht ca. 1,1 g) von der Firma *Goodfellow* bezogen. Mangan und Indium stammen von der Firma *Group Arnaud*. Das ultrareine Mangan (5N8) liegt als 20 mm langer Stab mit einem Durchmesser von $\varnothing 10 \text{ mm}$ und einem Gewicht von ca. 4,5 g vor. Der eingesetzte Gussblock aus Indium ist etwa 10 g schwer und weist eine Reinheit von 7N auf. Um die Gefahr des Tiegelbruchs beim Aufschmelzen von Nickel zu minimieren, wird der BeO-Tiegel lediglich mit einem Nickel-Pellet gefüllt. Infolge der geringen Materialmenge und der doppelt so hohen Aufdampftrate für stöchiometrische Ni_2MnIn -Schichten ist ein häufigeres Nachfüllen von Nickel im Vergleich zu den anderen beiden Quellenmaterialien notwendig.

Der Schwingquarz des Schichtdickenmonitors muss bei der Überschreitung eines Grenzwertes für die Verschiebung der angeregten Schwingungsfrequenz ausgetauscht werden, da ansonsten die ermittelten Schichtdicken zu ungenau werden und zudem die Gefahr eines spontanen Ausfalls des Schwingquarzes besteht. Der Wechsel wird durch ein Bajonettsystem zur Befestigung des Quarzkristalls vereinfacht und erfolgt ohne Demontage des Linearvorschubs über das obere Fenster des Rezipienten.

Nach der Evakuierung der Kammer wird als erstes die Temperatur der Verdampferzellen und des Probenheizers langsam bis auf Betriebstemperatur erhöht, um Filamente und Quellenmaterialien zu degasen. Bei diesem initialen Hochfahren

des Systems in den Betriebszustand werden Zellenshutter und Rezipient ebenfalls erwärmt und degast. Das Verdampfen der Legierungskomponenten in dem vorderen Teil des Rezipienten bei geschlossenem Hauptshutter führt aufgrund der starken Getterwirkung der Metaldämpfe zu einer weiteren Verbesserung des Vakuums. Dieses Vorgehen ist im Anschluss einer kurzen Wartung, wie das bloße Nachfüllen von Nickel, üblicherweise ausreichend, um einen Basisdruck des Systems bei Betriebstemperatur im Bereich von 7×10^{-8} Torr zu erzielen. Bei einer aufwändigeren Wartung muss vor der Inbetriebnahme der Verdampferzellen ein Ausheizen des Rezipienten mit externen Heizbändern unter Verwendung der temperaturgeregelten Ausheizsteuerung erfolgen. Im Bereitschaftszustand der Anlage liegen die Zellentemperaturen bei 300°C für Mangan und Indium und bei 800°C für Nickel; der Basisdruck beträgt dann $\sim 3 \times 10^{-9}$ Torr.

2.2.2 Präparationsvorbereitung

Vor dem Einschleusen ins Vakuum werden je nach geplantes Experiment InAs(001)-, GaAs(001)- und Si(001)-Wafer ausgewählt und in einem Standard-Molyblock befestigt. Für die Verwendung von 10×10 mm großen Si(001) und Au/Si-Substraten werden die bereits vorbereiteten Waferstücke mit Indium auf einen speziellen massiven Molyblock aufgeklebt. Zuletzt werden die Substrate für TEM-Untersuchungen in diesem Probenhalter fixiert. Alle Molyblöcke werden mit Substraten vor Prozessbeginn bei Temperaturen zwischen 300°C und 400°C für mehrere Stunden im Vakuum degast.

2.2.3 Aufdampfraten

Eine Voraussetzung für die Herstellung stöchiometrischer Ni_2MnIn -Schichten ist die exakte und reproduzierbare Einstellung der Aufdampfraten vor den jeweiligen Effusionszellen mittels des wassergekühlten Schwingquarzes. Dieser ist im gegenwärtigen Aufbau auf einem Linearvorschub mit Schrittmotor montiert, dessen Positionsreferenz in Form eines Endschalters an der am weitest innen liegenden Position definiert wurde. Immer ausgehend von dieser Referenz sind zwei eingespeicherte Positionen des Schwingquarzes vor den Effusionszellen präzise und reproduzierbar ansteuerbar.

Praktisch erfolgte die Bestimmung der Aufdampfraten nach folgender Prozedur: Zuerst wird eine Ni-Flussrate benötigt, die am Ort der Probe exakt doppelt so hoch wie der Mn- und In-Fluss sein muss. Die maximale Temperatur der Ni-Zelle ist durch den BeO-Tiegel bei ca. 1600°C limitiert. Daher wird die aktuelle Flussrate von Nickel bei 1560 – 1580°C am Ort des Schwingquarzes als Bezugspunkt gemessen. Die erforderlichen Flüsse für Mangan und Indium werden relativ zu diesem unter Berücksichtigung der in vorhergehenden Untersuchungen bestimmten Kalibrierfaktoren errechnet. Die Messung der Flussraten aller Zellen erfolgt sequentiell durch Öffnen bzw. Schließen des jeweiligen Zellenshutters und entsprechender Positionierung des Schwingquarzes, der jeweils zuerst in die Referenzposition gefahren wird. Trotz vorhandener Erfahrungswerte im Verlauf einiger Präparationsprozesse

sind meistens Korrekturen zu vormalig verwendeten Zellentemperaturen notwendig, hervorgerufen durch die stetige Entleerung der Tiegel. Aufgrund der sequentiellen Arbeitsweise dauert eine exakte Einstellung der Flussraten aller drei Zellen 4–5 Stunden. Nach dem Herausfahren des Schwingquarzes aus dem Dampfstrahl werden alle drei Zellenshutter geöffnet um den Einfluss von Shuttertransienten beim Beginn des Probenwachstums zu vermeiden [Hey06].

2.2.4 Schichtwachstum

Nach Einstellung der Flussraten werden üblicherweise mehrere Proben zeitlich direkt hintereinander gewachsen. Hierfür wird zunächst ein Molyblock mit dem Magnet zur Bewegung des Probenwagens unter Verwendung einer CCD-Kamera mittig zur Aufdampfblende positioniert. Danach wird der Probenheizer von hinten bis zum Molyblock vorgeschoben und mit einer Stellschraube und einer Sicherungsklammer arretiert. Der Heizer wird mit einer Rampe von $30\text{ }^\circ\text{C}/\text{min}$ auf die gewünschte Substrattemperatur eingestellt. Für das Wachstum von Ni_2MnIn -Schichten sind hierbei Temperaturen im Bereich von $80\text{--}360\text{ }^\circ\text{C}$ typisch. Durch Vorklappen der 10 mm Lochblende bei noch geschlossenem Hauptshutter wird der Molyblock vor dem unbeabsichtigten Bedampfen mit Ni_2MnIn geschützt und gleichzeitig maskiertes Wachstum auf definierten Bereichen des Substrates ermöglicht.

Zum Wachstum mehrerer Heuslerproben nebeneinander auf einem Substrat wird der Molyblock für den ersten Aufdampfvorgang vorsichtig am äußersten rechten Rand positioniert. Da der Probenheizer innerhalb des Sockels des Molyblocks liegt, ist die äußerste Probenpositionen mechanisch begrenzt. Ein gewaltsames Bewegen über den Endanschlag hinaus birgt die Gefahr, den filigranen Probenheizer zu beschädigen. Nach Positionierung der Probe und Erreichen der Substrattemperatur wird nach einer kurzen Wartezeit von 3–5 min der Hauptshutter geöffnet und mit der Zeitnahme für das Schichtwachstum begonnen. Ein Fenster im Cluster-Flansch ermöglicht bei geöffnetem Hauptshutter einen direkten Blick durch die Lochblende hindurch auf die Probenoberfläche. Eine fehlerhafte Positionierung des Substrates kann somit visuell erkannt und unmittelbar bei Beginn des Schichtwachstums korrigiert werden. Bei den verwendeten Wachstumsparametern beträgt die Gesamtflussrate für Ni_2MnIn auf der Substratoberfläche etwa $1,6\text{ nm}/\text{min}$ ($0,027\text{ nm}/\text{s}$), das Wachstum einer 100 nm dicken Ni_2MnIn -Schicht dauert daher 60 min. Beim Erreichen der gewünschten Schichtdicke wird der Molyblock ohne Zurückziehen des Heizers verschoben, um sofort eine weitere Heuslerschicht neben der zuletzt präparierten zu wachsen. Bei komplexerer Probenträgermanipulation oder einer Änderung der vorgegebenen Substrattemperatur muss der Hauptshutter zuvor geschlossen werden. Nach Erreichen der Zieltemperatur und Ablauf einer kurzen Wartezeit zur Angleichung des Molyblocks mit Substrat an die neuen Heizertemperatur kann das Probenwachstum fortgesetzt werden.

Auf einem 2"-Wafer können bis zu vier Ni_2MnIn -Schichten nebeneinander aufgebracht werden. Durch Drehung des Molybdänprobenträgers um 120° kann die Anzahl der deponierten Schichten auf bis zu neun erhöht werden, wie in Abbildung

2.4(a) dargestellt ist. Die Wachstumstemperatur kann für jede der Heuslerschichten auf einem Substrat individuell eingestellt werden. Um eine Veränderung der bereits deponierten Schichten durch Rekristallisation zu vermeiden, sollte aber für ein Substrat die Wachstumstemperatur im Verlauf des Präparationsprozesses nur verringert werden. Abgesehen von den Standardprobenträgern für 2"-Wafer steht ein modifizierter massiver Molyblock für fünf TEM-Netzchen und zwei indiumgeklebte, 10×10 mm große Halbleitersubstratstücke zur Verfügung, der in Abschnitt 2.3.1 näher beschrieben wird. Während eines Probenpräparationsprozesses werden meistens eine polykristalline TEM-Probe und eine polykristalline Schicht auf Au/Si für PCAR-Messungen sowie optional vier Schichten auf Si-Wafern für lithographische Testreihen hergestellt. Für die systematische Untersuchung epitaktischer Heuslerproben werden bis zu neun Schichten mit verschiedener Dicke und Substrattemperatur auf gitterangepasste Substrate wie InAs(001) oder metamorphe HEMT-Strukturen auf GaAs(001) gewachsen.

2.2.5 Probendokumentation

Die Reihenfolge der gewachsenen Proben bei Drehung des Molybdänprobenträgers um 120° wird schriftlich und visuell dokumentiert. Hierfür wird direkt nach dem Deponieren der letzten Heuslerschicht der Probenwagen mit verwendetem Molyblock in eine benachbarte Transferkammer bewegt und dort durch das Fenster oberhalb der Transferstange fotografiert. Die jeweils charakteristische Ausprägung der Heuslerschichten auf dem Substrat relativ zueinander ermöglicht, die Proben in Verbindung mit der schriftlichen Prozessdokumentation später eindeutig zu identifizieren. In gleicher Weise wird für den TEM-Probenträger bildlich dokumentiert, welche der TEM-Netzchen innerhalb des homogenen Aufdampfbereiches liegen.

2.2.6 Brechen der Wafer

Aus den bedampften 2"-Wafern werden in einem Klasse-100-Reinraum jeweils 4×4 mm große Probenstücke gebrochen. Hierfür kommt ein Diamantritzer mit Mikrometer-Justierung zum Einsatz, um mit hoher Präzision die gewünschten stöchiometrisch homogenen Bereiche herauszutrennen. Proben auf InAs-Substrat werden entlang ihrer kristallographischen (110)-Vorzugsrichtung angeritzt und gespalten. Bei Si-Substraten reicht ein bloßes Anritzen aufgrund der nativen Oxidschicht zwischen Substrat und Heuslerschicht nicht aus. Ein Ritzen über den gesamten Wafer ist notwendig, um die Gefahr des unkontrollierten Zerbrechens zu vermeiden. In Abbildung 2.4(b) ist ein InAs(001)-Wafer abgebildet, aus dem durch mehrmaliges Spalten entlang der kristallographischen $(0\bar{1}\bar{1})$ - und $(0\bar{1}1)$ -Richtung neun 4×4 mm große Probenstücke jeweils aus der Mitte der aufgedampften Heuslerschichten herausgebrochen wurden. Das Volumen der deponierten Heuslerschicht eines Probenstückes kann bei Kenntnis der Probenfläche aus der nominellen Schichtdicke errechnet werden. Die exakte Probenfläche wird optisch mittels eines Rasters unter Verwendung eines PC-Scanners bestimmt. Die Auflösung des Scanners von $(1/1200)^2$ inch² ent-

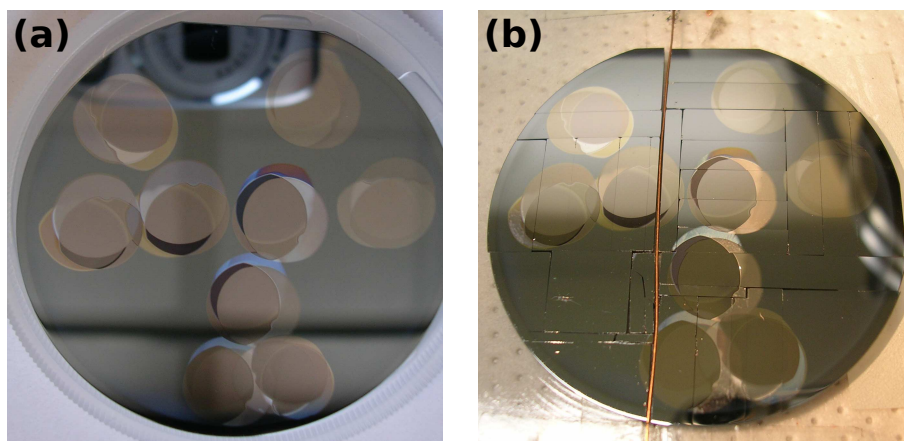


Abbildung 2.4: (a) Neun Ni_2MnIn -Schichten auf InAs -Substrat. Bei der Probenpräparation kamen Substrattemperaturen von 300, 250 und 80 °C zum Einsatz. Es wurden Schichtdicken von 20, 60 und 100 nm hergestellt. (b) Die Proben wurden für weitere Untersuchungen durch mehrmaliges Spalten entsprechend der kristallographischen Orientierung des Substrates in 4×4 mm große Stücke gebrochen.

spricht hierbei $4,5 \times 10^{-4} \text{ mm}^2$. Die genaue Flächenbestimmung der Probestückchen erfolgt mit Hilfe der frei verfügbaren Bildbearbeitungssoftware *ImageJ* [Ras09].

2.3 Voruntersuchungen

2.3.1 Flusskalibrierung

Zur stöchiometrischen Einstellung der Zellenflüsse mit einem Schwingquarz müssen die Kalibrationsfaktoren für die Legierungskomponenten von Ni_2MnIn bestimmt werden. Diese Faktoren geben das Verhältnis zwischen dem gemessenen Fluss der Elemente am Ort des Schwingquarzes und dem jeweils resultierenden Fluss auf der Probenoberfläche wieder. Im Folgenden wird ein Überblick der im Rahmen dieser Arbeit zur Bestimmung der Kalibrationsfaktoren erprobten Techniken gegeben: Die Bestimmung absoluter Aufdampfraten aus Schichtdickenmessungen an maskiert aufgewachsenen Schichten einzelner Elemente mittels AFM ist im vorliegenden Aufbau aufgrund abgerundeter Kanten der aufgewachsenen Strukturen nicht möglich. Diese Technik setzt eine gut definierte Stufe zwischen aufgedampfter Schicht und Substrat voraus, welche oft mittels der Lift-Off Technik hergestellt wird. Die Verwendung von belackten und lithographisch vordefinierten Substraten ist aufgrund der hohen UHV- sowie Reinheitsanforderung beim MBE-Wachstum ausgeschlossen. Eine geeignete Methode zur Schichtdickenbestimmung bei Proben mit einer Dicke im Bereich einiger 100 nm ist die Interferometrie, da bei dieser über größere Flächen gemittelt wird und so auch ohne scharfe Kante die Schichtdicke bestimmt werden kann [Kur05b]. Die hierfür notwendige Stufe wurde an $\text{Ni}_2\text{MnIn}/\text{p-SiO}_2/\text{Si}(001)$ -Proben durch Ankratzen der deponierten Heuslerschicht mittels eines Skalpell er-

zeugt. Das native polykristalline Oxid von Silizium ist härter als Ni_2MnIn . Die Verwendung eines Mikroskops mit Quecksilberdampfampe und halbseitig verspiegelter Glasscheibe zur Interferenzzeugung ermöglichte eine erste grobe Abschätzung der Aufdampfraten der Legierungselemente sowie der Gesamtschichtdicke der deponierten Ni_2MnIn -Schichten. Eine exakte Einstellung der Stöchiometrie war mit diesen Ergebnissen allerdings nicht möglich. Um eine höhere Genauigkeit zu erreichen wäre für jede Probenserie je Legierungskomponenten jeweils eine Schicht im Bereich einiger 100 nm notwendig. Dies ist im Hinblick auf die mit der Metallkammer maximal erreichbare Aufdampfrate von Nickel nicht praktikabel. Zudem ist eine reproduzierbare Definition der abgetragenen Stufe exakt bis zur Oberfläche des verwendeten Halbleitersubstrates mittels eines Skalpells aufgrund von möglicherweise zurückbleibenden Resten der Heuslerschicht schwer zu erreichen.

Eine einfach durchzuführende Methode zur Analyse der chemischen Zusammensetzung von Stoffen ist die energiedispersive Röntgen-Spektrometrie (EDX). Mit EDX-Messungen an Kontrollproben kann die Stöchiometrie der Legierungskomponenten Nickel, Mangan und Indium relativ zueinander auf ± 1 at% genau bestimmt werden. Die Flussraten für Ni_2MnIn können so iterativ in zwei bis drei Prozessläufen exakt und reproduzierbar eingestellt werden. Röntgenspektrometer sind meist als Zusatzmodul bei Raster- oder Transmissionselektronenmikroskopen verfügbar. Bei dünnen Schichten auf dicken Substraten lieferten erste EDX-Messungen in einem Standard-REM ungenaue Ergebnisse aufgrund der in der kommerziellen Gerätesoftware zum Auswerten berücksichtigten *ZAF*-Korrekturfaktoren. Bei der standardlosen Analyse mit diesen Korrekturfaktoren für Kernladung (Z), Absorption (A) und Fluoreszenz (F) wird eine Volumenprobe zugrunde gelegt, was zu einer fehlerhaften Gewichtung bei der Bestimmung der Stöchiometrie einer dünnen Schicht auf dickem Substrat führt. Die Absorption der Röntgenstrahlung ist bei dünnen Schichten im Vergleich zu Volumenmaterialien wesentlich geringer. Zusätzlich verschlechtert die Bremsstrahlung aus dem Substrat das Signal/Rausch-Verhältnis bei der Messung dünner Schichten. Bei EDX-Untersuchungen im TEM kommen hingegen Auswertprogramme zum Einsatz, welche auf dünne, elektronentransparente Schichten zugeschnitten sind. Daher wurden polykristalline Ni_2MnIn -Schichten mit einer Dicke von 30 nm ohne Halbleitersubstrat auf TEM-Netzchen mit Graphit-Membran abgeschieden. Bei den verwendeten TEM-Netzchen handelt es sich um ein engmaschiges Kupfernetz mit einem Durchmesser von 3,05 mm. Auf die Netzchen wird ein wenige Nanometer dicker amorpher Kohlenstofffilm welcher zuvor auf Glimmer aufgedampft wurde mittels Aufschwimmen und Sedimentation übertragen.

Für die Präparation von Heuslerschichten mittels MBE auf TEM-Netzchen wurde von der institutseigenen Werkstatt ein spezieller MBE-Probenenträger aus Molybdän mit eingefrästen Netzchen-Aufnahmen gebaut. Dieser massive 3"-TEM-Molyblock (Abbildung 2.5(a)) ist kompatibel zum bestehenden *RIBER* Probentransfer des UHV-Verbundsystems. In der Draufsicht in Abbildung 2.5(b) sind die insgesamt fünf Senkungen mit einem Durchmesser von 3,05 mm zu erkennen, gruppiert in zwei Aufdampfpositionen mit zwei bzw. drei Vertiefungen. In diese Senkungen wird jeweils ein TEM-Netzchen mit einem Sprengring aus Federstahl befestigt. Zu-

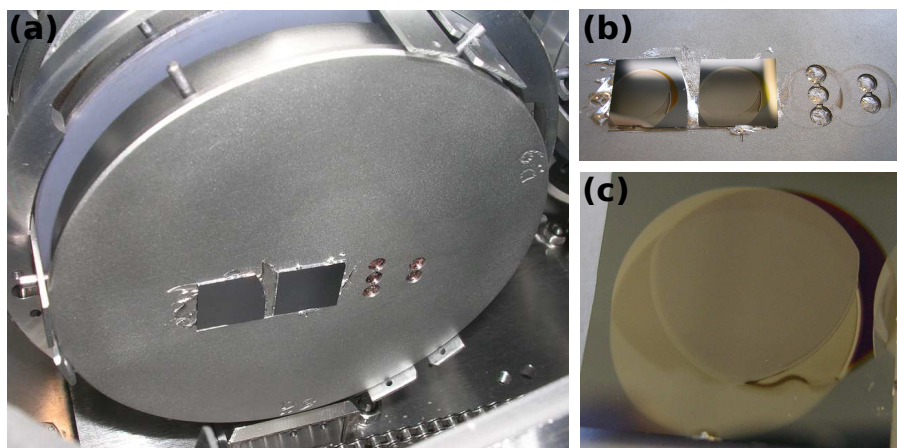


Abbildung 2.5: (a) MBE-Probenhalter aus Molybdän mit Senkungen für insgesamt fünf TEM-Netzchen und zwei indiumgeklebte Waferstücke. (b) Der Probenträger bietet insgesamt vier unabhängige Aufdampfpositionen. (c) 10×10 mm Waferstück mit deponierter Heuslerschicht. Die Aufdampfkegel und der überlappende Bereich mit Ni_2MnIn sind gut abgrenzbar.

sätzlich werden zwei Waferstücke der Größe 10×10 mm gerichtet entlang einer eingefrästen Markierung mit Indium aufgeklebt. Insgesamt können so auf diesem Molyblock vier unabhängige Aufdampfprozesse sequentiell durchgeführt werden. In Abbildung 2.5(c) ist ein 10×10 mm großes Waferstück mit deponierter Heuslerschicht dargestellt. Deutlich abgrenzbar sind drei unterschiedlich ausgeprägte Aufdampfkegel für Nickel, Mangan und Indium und deren überlappender Bereich, in welchem die Ni_2MnIn -Heuslerlegierung kristallisiert. Mindestens ein TEM-Netzchen je Aufdampfposition liegt in der Mitte der aufgedampften Heuslerlegierung. Die auf TEM-Netzchen deponierten Ni_2MnIn -Filme wurden im institutseigene TEM *CM 12* der Firma *Philips* durchstrahlt und mit dem *LINK* System von *Oxford Instruments* mittels orts aufgelöster EDX untersucht. Dieses Vorgehen erlaubt die Bestimmung der Stöchiometrie ohne fehlerbehafteten Untergrundabzug. Anhand der Ergebnisse von deponierten Kontrollproben können die Kalibrationsfaktoren zur Verwendung des Schwingquarzes nach jedem Probenwachstum überprüft und gegebenenfalls angepasst werden.

2.3.2 Prozessstabilität

Die Stabilität der Flussraten der Legierungskomponenten Nickel, Mangan und Indium wurde mehrfach zu Beginn und am Ende des Probenwachstums überprüft. Am Ende des längsten Präparationsprozesses mit einer Gesamtdauer von 22 Stunden wurde am Ort des Schwingquarzes eine Abweichungen von ungefähr $\pm 4\%$ vom initialen Fluss der einzelnen Legierungskomponenten gemessen. Unter Berücksichtigung der individuellen Kalibrationsfaktoren entspricht dies bei einer stöchiometrischen Ni_2MnIn -Heuslerlegierung einer Abweichung von $\approx 2\text{at}\%$ für die Nickel-Komponente

und von ≈ 1 at% für Mangan und Indium. Hierbei liegen die beobachteten Flussratenvariationen nicht in einer Unzulänglichkeit bei der hochgenauen Steuerung der Evaporationstemperaturen, sondern in der MBE-typischen Entleerung der mit verschiedenen Ausgangsmengen an Verdampfermaterial befüllten Tiegel der Verdampferzellen begründet. Diese Abnahme der eingesetzten Quellenmaterialien führt in den verwendeten, leicht konischen und am Boden abgerundeten MBE-Tiegeln zu einer Änderung der zum Substrat gerichteten offenen Oberfläche während langer Aufdampfprozesse. Zusätzlich können Umlagerungen innerhalb des Tiegels bei sublimierenden Materialien wie Mangan die Aufdampftrate beeinflussen. Vor diesem Hintergrund kann die erreichte Stabilität der initial eingestellten Flussraten während eines typischen Wachstumsprozesses als exzellent bewertet werden.

2.3.3 Probenhomogenität

Um die Homogenität der Stöchiometrie der deponierten Heuslerschichten zu untersuchen, wurde eine Ni_2MnIn -Schicht auf p-dotiertem Silizium deponiert und in-situ mittels Augerelektronenspektroskopie untersucht. Hierfür wurde der in Kapitel 2.1.3 beschriebene CMA-Analysator vom Typ *ESA100* der Firma *StaiB* verwendet. Die Substrattemperatur beim Heuslerwachstum betrug 300°C und die Prozessdauer betrug 60 min, was einer Gesamtschichtdicke von 100 nm entspricht. In Abbildung 2.6(a) ist ein Probenstrombild dargestellt, welches durch Rastern des Elektronenstrahls im Augerspektrometer und hierzu synchroner Messung des abgeleiteten Probenstroms aufgenommen wurde. Aufgrund des starken chemischen Kontrastes lassen sich die einzelnen deponierten Komponenten gut voneinander abgrenzen.

Bei der Aufnahme eines Elementverteilungsbildes der Probenoberfläche mittels Augerelektronenspektroskopie wurden für jede Heusler-Komponente der Untergrund sowie die Intensitätsverteilung bei einer charakteristischen Passenergie aufgenommen. Das Maximum des als Passenergie verwendeten Elementpeaks war zuvor anhand eines gewöhnlichen Augerelektronenspektrums identifiziert worden. Beim Elementmapping wurde für Indium eine Passenergie von 394,5 eV eingestellt und bei 406 eV der Untergrund aus Sekundärelektronen aufgenommen. Nickel wurde bei 837,5 eV detektiert und die Differenz zum Untergrund bei 848,5 eV bestimmt. Der Manganpeak lag bei 576 eV, der Untergrund am Fuß des Peaks wurde bei 587 eV aufgenommen. Die Darstellung erfolgte mittels der Auswertesoftware CasaXPS, welche für jedes Element eine Farbcodierung in relativen Intensitäten zum jeweiligen Maximum erzeugt [Fai08]. Das Falschfarbenbild ist eine Überlagerung einer roten Bildkomponente für Indium, einer blauen Bildkomponente für Mangan und einer grünen Bildkomponente für Nickel. In 2.6(b) ist das SAM-Bild der Probe in Falschfarbendarstellung dargestellt. Dieses weist in der Probenmitte einen homogenen weißen Bereich auf, in welchem die Konzentrationen von Ni, Mn und In zueinander konstant sind. Der weiße Bereich entspricht einem Ort konstanter Stöchiometrie und stimmt gut mit dem in Abbildung 2.6(a) visuell erkennbaren Bereich überein, in welchem die drei Aufdampfkegel überlappen.

Die Verwendung der AES zur Bestimmung der Probenstöchiometrie ist mit der

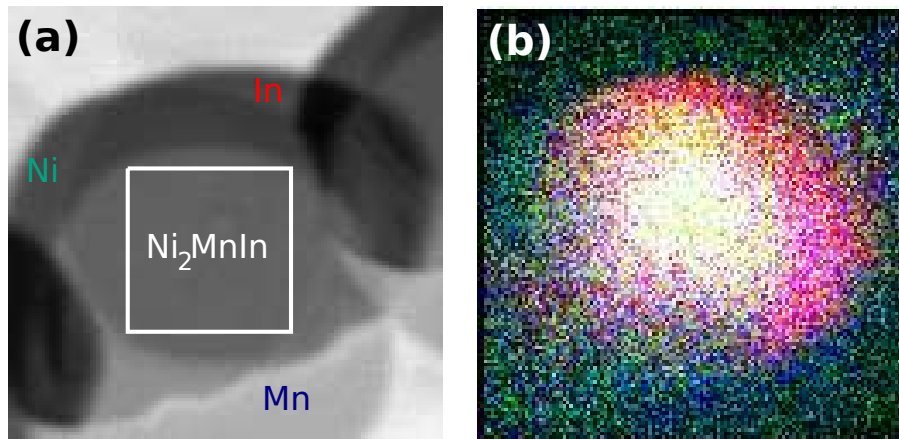


Abbildung 2.6: (a) Probenstromabbildung einer Ni_2MnIn -Schicht auf Silizium-Substrat, erzeugt mit dem Elektronenstrahl des Augerspektrometers. Die Bildgröße entspricht ca. 10×10 mm. (b) Scanning-Auger-Mikroskopie (SAM)-Bild, aufgenommen bei 3 keV und präsentiert mit Falschfarbendarstellung *rot*: In, *blau*: Mn, *grün*: Ni, *weiß*: homogener Bereich im Schnittpunkt der Aufdampfkegel von ca. 4×4 mm.

Integration der Analytik in eine neue Metall-MBE mit gleichzeitig verbesserter Probenmanipulation geplant (siehe Abschnitt 6). Für eine quantitative Analyse der stöchiometrischen Probenzusammensetzung unter Verwendung von Relativmessungen zu einer spezifischen Ni_2MnIn -Referenzprobe, welche als externer Standard dienen, wird eine zu EDX-Messungen vergleichbare Genauigkeit von 0,5–1 at% erwartet.

2.3.4 Probenstabilität

Die Aufbewahrung der hergestellten Heuslerproben erfolgt in einem Exsikkator, welcher mit Silica-Perlen als Trocknungsmittel versehen ist. Um den Einfluss einer normalen atmosphärischen Umgebung auf die Qualität der Proben zu untersuchen, wurde exemplarisch die Morphologie einer Heuslerprobe im Abstand von zwei Monaten mittels XRR untersucht. Hierfür wurde eine 20 nm dicke Heuslerschicht ausgewählt, welche bei 80°C auf $\text{InAs}(001)$ gewachsen wurde. In Abbildung 2.7 sind die beiden gemessenen Spektren der an Luft gelagerten Probe in schwarz dargestellt. Zur Simulation des jeweiligen Spektrums (rote Linie) wird in beiden Fällen das gleiche Strukturmodell verwendet. Die rechnerische Anpassung der Spektren (siehe Abschnitt 3.1.2) ergibt eine Reproduzierbarkeit der ermittelten Schichtdicke für die Oxidschicht mit einer Abweichung von weniger als 1 nm. Die Oxidschichtdicke aller mittels XRR untersuchten Ni_2MnIn -Heuslerschichten liegt in der Größenordnung von 3 ± 1 nm und kann somit über den Zeitraum weniger Monate bei Lagerung an Luft als nahezu unverändert betrachtet werden. Eine ausgeprägte Tendenz der untersuchten Heuslerproben zur Oxidation oder Probendegradation wird auch bei anderen Messverfahren nicht beobachtet.

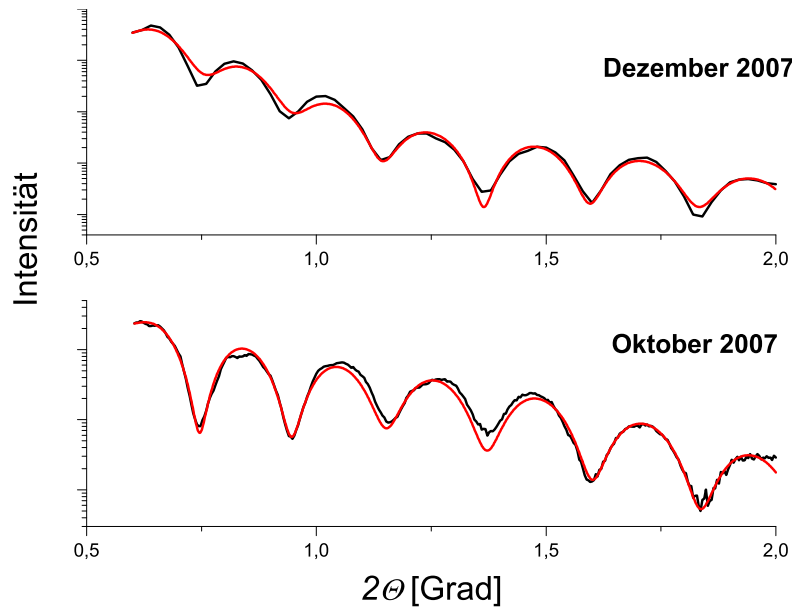


Abbildung 2.7: XRR-Untersuchung zur Bestimmung der Probenstabilität einer 20 nm dicken Ni₂MnIn-Schicht, welche bei 80 °C auf InAs(001) gewachsen wurde. Die Analyse der Spektren ergibt nach zwei Monaten Lagerung an Luft eine Reproduzierbarkeit der ermittelten Schichtdicke der Oxidschicht mit einer Abweichung von weniger als 1 nm bei einer typischen Oxidschichtdicke von 3 nm.

2.4 Probenserien

2.4.1 Freistehende Ni₂MnIn-Heuslerfilme

Um das MBE-Wachstum freistehender Ni₂MnIn-Heuslerschichten zu untersuchen, wurde eine Probenserie von sieben stöchiometrisch ähnlichen Heuslerschichten bei verschiedenen Substrattemperaturen gewachsen. Ziel hierbei war eine homogene Probenmorphologie ohne Lücken in den aufgedampften Filmen, welche sich für eine Bestimmung der Stöchiometrie mittels EDX im TEM eignet. Die 30 nm dicken Ni₂MnIn-Filme wurden auf TEM-Netzchen mit Kohlenstoffmembranen bei 340, 320, 300, 270, 250, 200 und 80 °C unter Verwendung des TEM-Probenträgers aufgedampft. Da der TEM-Probenträger nur zwei Probenpositionen zur Untersuchung unterschiedlicher Wachstumsparameter aufweist, waren insgesamt vier Prozessläufe notwendig. Die Zusammensetzung der hergestellten Filme dieser Probenserie liegt in einem Bereich von ±6 at% um die ideale Stöchiometrie von Ni₂MnIn. In den Untersuchungen von Kurfiß an freistehenden Heuslerschichten mit einer Wachstumstemperatur von 300 °C wurde für Abweichungen von ±5 at% von der nominellen Ni₂MnIn-Stöchiometrie kein Einfluss auf die Ausbildung der kristallographischen L₂₁-Phase beobachtet [Kur03, Kur05a]. Eine Übersicht der deponierten Filme kann Tabelle A.3 im Abschnitt A.2 entnommen werden. Die Heuslerfilme wurden im TEM durch Hellfeld-Abbildung und mit Feinbereichsbeugung hinsichtlich ihrer Morphologie und der kristallisierten Phase untersucht.

2.4.2 Ni₂MnIn-Heuslerschichten auf Au/Si-Substraten

Drei polykristalline Ni₂MnIn-Heuslerschichten wurden auf einem polykristallinen Goldpuffer aufgedampft, um PCAR-Messungen mit einer definierten Paralleleitfähigkeit zu ermöglichen. Als Substrat kamen p-dotierte Si(001)-2"-Wafer der Firma *Si-Mat* zum Einsatz. Diese wurden in 10×10 mm große Probenstücke gebrochen und dann in einer Aufdampfanlage mit einer 40–60 nm dicken, polykristallinen Lage Gold beschichtet. Das Aufdampfen erfolgte direkt auf die unbehandelte Si-Waferoberfläche, ohne vorheriges Entfernen des natürlichen Oxides. Diese Au/Si-Probenstücke dienten im weiteren Herstellungsprozess als Substrat für das Wachstum polykristalliner Ni₂MnIn-Heuslerschichten. Sie wurden mittels Indium auf gekennzeichnete Positionen am TEM-Molyblock befestigt und gemeinsam mit den TEM-Netzchen vor Prozessbeginn degast. Das Heuslerwachstum erfolgte direkt auf dem unbehandelten Au-Puffer. Aufgedampft wurden bei einer Substrattemperatur von 300 °C jeweils eine 50 nm und 60 nm dicke sowie bei 320 °C Substrattemperatur eine 177 nm dicke Heuslerschicht. Das Wachstum auf Au/Si erfolgte zusammen mit der Präparation anderer Proben mit den Aufdampfparametern der jeweiligen Prozessläufe. Eine Zuordnung der drei deponierten Filme kann Tabelle A.3 im Abschnitt A.2 entnommen werden. Die Morphologie und die strukturellen Eigenschaften der Ni₂MnIn/Au/Si-Proben wurde mittels XRD und XRR untersucht, die Spinpolarisation mit PCAR und SGME bestimmt.

2.4.3 Ni₂MnIn-Heuslerschichten auf InAs(001)-Substraten

Eine Serie von 18 verschiedenen Ni₂MnIn-Heuslerproben mit variierender Schichtdicke wurde bei unterschiedlichen Substrattemperaturen auf InAs(001)-Substraten gewachsen. Aufgedampft wurden nominell 20 nm, 60 nm und 100 nm dicke Ni₂MnIn-Schichten bei Substrattemperaturen von je 360 °C, 340 °C, 320 °C, 300 °C, 250 °C und 80 °C. Hierfür wurden in zwei Prozessläufen neun Heuslerschichten je Wafer deponiert. Die Wachstumsraten der einzelnen Ni₂MnIn-Komponenten wurden unter Verwendung der in Abschnitt 2.2.3 beschriebenen Kalibrationsfaktoren mittels des Schwingquarzes exakt eingestellt. Die Gesamtaufdampftrate betrug 0,027 nm/s. Als Substrat kamen n-dotierte InAs(001)-2"-Wafer der Firma *Crystec* zum Einsatz, die jeweils vor Prozessbeginn in einer gesonderten Vakuumkammer bei 300 °C degast wurden. Das native InAs-Oxid des Substrates wurde in der im Vakuumverbund integrierten *RIBER 32P* III/V-Halbleiter-MBE unter Arsengegendruck bei 410 °C thermisch desorbiert. Anschließend wurde eine 500 nm dicke undotierte InAs-Pufferschicht deponiert. Das RHEED-Bild zeigte am Schluss des Halbleiterwachstums das perfekte Bild einer auf einem Laue-Kreis liegenden 2×4-Rekonstruktion. Direkt nach Abschluss des InAs-Wachstums wurde der Wafer in die Heuslerdepositionskammer transferiert und sofort mit dem Aufdampfen der ersten Ni₂MnIn-Probe begonnen.

In beiden Prozessläufen wurde jeweils mit der höchsten Substrattemperatur begonnen. Die acht nachfolgenden Schichten wurden bei jeweils geringeren Substrat-

temperaturen nacheinander aufgedampft. Eine Veränderung der Probenqualität aufgrund der Wartezeit im Vakuum vor Wachstumsbeginn wurde nicht beobachtet. Im ersten Prozesslauf wurden neun Schichten bei Substrattemperaturen von 300, 250, und 80 °C mit Gesamtschichtdicke von nominell 20, 60 und 100 nm aufgewachsen. Die Temperaturen der Verdampferzellen waren 1565 °C für Nickel, 798,2 °C für Mangan und 722 °C für Indium. Der Basisdruck der Vakuumkammer bei heißen Zellen lag bei $2,0 \times 10^{-7}$ Torr. Die Stöchiometrie wurde mittels EDX-Messungen an direkt im Anschluss bedampften TEM-Netzchen bestimmt und zeigte die Zusammensetzung $\text{Ni}_{47}\text{Mn}_{26}\text{In}_{27}$. Beim zweiten Prozesslauf zur Herstellung nominell je 20, 60 und 100 nm dicker Schichten wurden Substrattemperaturen von 360, 340 und 320 °C verwendet. Nickel wurden mit 1570 °C, Mangan mit 797,7 °C und In mit 723 °C verdampft, der Kammerdruck betrug $8,4 \times 10^{-7}$ Torr. Die Heuslerschichten weisen die exakte nominelle Stöchiometrie $\text{Ni}_{50}\text{Mn}_{25}\text{In}_{25}$ auf, welche ebenfalls anhand von EDX-Messungen an direkt im Anschluss bedampften TEM-Netzchen bestimmt wurde. Eine detaillierte Probenübersicht inklusive Vergleichsproben aus beiden Prozessläufen findet sich im Anhang A.2 in Tabelle A.3. Die morphologischen, strukturellen, magnetischen und elektrischen Eigenschaften dieser Probenserie wurden unter Verwendung von AFM, ORS, XRR, TEM-Hellfeldaufnahmen, TEM-Feinbereichsbeugung, XRD, SQUID-Magnetometrie, PCAR und SGME untersucht.

2.4.4 Ni_2MnIn -Heuslerschichten auf virtuellen Substraten

Ein Fernziel des Projektes ist die Injektion spinpolarisierter Ladungsträger in hochbewegliche Elektronensysteme. Um in diesem Zusammenhang das Wachstum von Elektroden aus Ni_2MnIn auf hochbeweglichen Halbleiter-Heterostrukturen zu untersuchen, welche ein 2-DEG⁴ ausbilden, wurden Heuslerschichten auf einer invertierten HEMT-Struktur⁵ mit verspanntem InAs-Kanal aufgedampft. Der InAs-HEMT wurde mit einem metamorphen Puffer auf GaAs(001)-Substrat gewachsen und weist einen verspannten Kanal aus reinem InAs auf, welcher asymmetrisch in einen $\text{In}_{75}\text{Ga}_{25}\text{As}$ -Quantentopf eingefügt ist. Der Quantentopf ist eingebettet in $\text{In}_{75}\text{Al}_{25}\text{As}$ als Barrierematerial. Bei der Herstellung der Halbleiterstruktur wird zuerst das GaAs(001)-Substrat mit GaAs angewachsen und ein GaAs/AlAs-Übergitters zur Verminderung von Fadenversetzungen deponiert. Danach wird ein metamorpher Puffer aus mehreren $\text{In}_x\text{Al}_{1-x}\text{As}$ -Schichten mit steigendem Indiumanteil gewachsen, um schrittweise die laterale Gitterkonstante zu vergrößern. Die stufenweise abrupte Erhöhung des Indiumanteils führt zu einem Abbau der aufgebauten Gitterverspannung durch Versetzungsbildung an den Grenzflächen der $\text{In}_x\text{Al}_{1-x}\text{As}$ -Schichten. Die Schichten sind dabei nahezu frei von Verspannung und weisen eine eindeutige Gitterkonstante auf. Die Verwendung von metamorphen Puffern ermöglicht somit die Definition von virtuellen Substraten mit einer einstellbaren Gitterkonstante zwischen GaAs(001) und InAs(001) [Hey03, Löh03, Löh04]. In Abbildung 2.8 ist das Schichtmodell des verwendeten InAs-HEMT mit metamorphen Puffer

⁴2-Dimensionales Elektronengas

⁵engl. High Electron Mobility Transistor

auf GaAs-Substrat dargestellt. Die Gitterfehlpassung beim pseudomorph verspanntem Wachstum von InAs ($a = 0,6058$ nm) auf dem virtuellen Substrat $\text{In}_{75}\text{Al}_{25}\text{As}$ ($a = 0,5957$ nm) beträgt $\delta = 1,7\%$. Die Gitterfehlpassung zwischen Ni_2MnIn -Heuslerschicht ($a = 0,6022$ nm) und virtuellem Substrat liegt bei $\delta = 1,1\%$.

Bei der Probenpräparation kam als Substrat ein halbleitender GaAs(001)-2"-Wafer der Firma *AXT* zum Einsatz. Die Substratvorbereitung und das Halbleiterwachstum erfolgten analog zu dem für InAs-Substrate beschriebenen Prozess. Direkt nach Abschluss des Halbleiterwachstum erfolgte die Deposition der Heuslerschicht auf die Halbleiteroberfläche. Bei einer Substrattemperatur von 300°C wurden je eine 33, 50 und 66 nm dicke Heuslerschicht nacheinander auf die $\text{In}_{75}\text{Al}_{25}\text{As}$ -Deckschicht aufgewachsen. Die Zellentemperaturen beim Aufdampfen lagen bei 1570°C für Nickel, 791°C für Mangan und 717°C für Indium. Der Basisdruck der Vakuumkammer bei heißen Zellen betrug $8,3 \times 10^{-8}$ Torr, die Gesamtaufdampftrate von Ni_2MnIn war $0,027$ nm/s. Die direkt im Anschluss gewachsene TEM-Probe lieferte für diesen Prozesslauf eine Zusammensetzung von $\text{Ni}_{48}\text{Mn}_{26}\text{In}_{26}$. Eine Probenübersicht findet sich im Anhang in Tabelle A.3. Die 50 nm-Probe sowie eine Referenzprobe des InAs-HEMT ohne Heuslerschicht wurden hinsichtlich ihrer Morphologie und ihrer Struktur mit XRR und XRD untersucht. An der Referenzprobe wurde zudem eine Magnetotransportmessung durchgeführt.

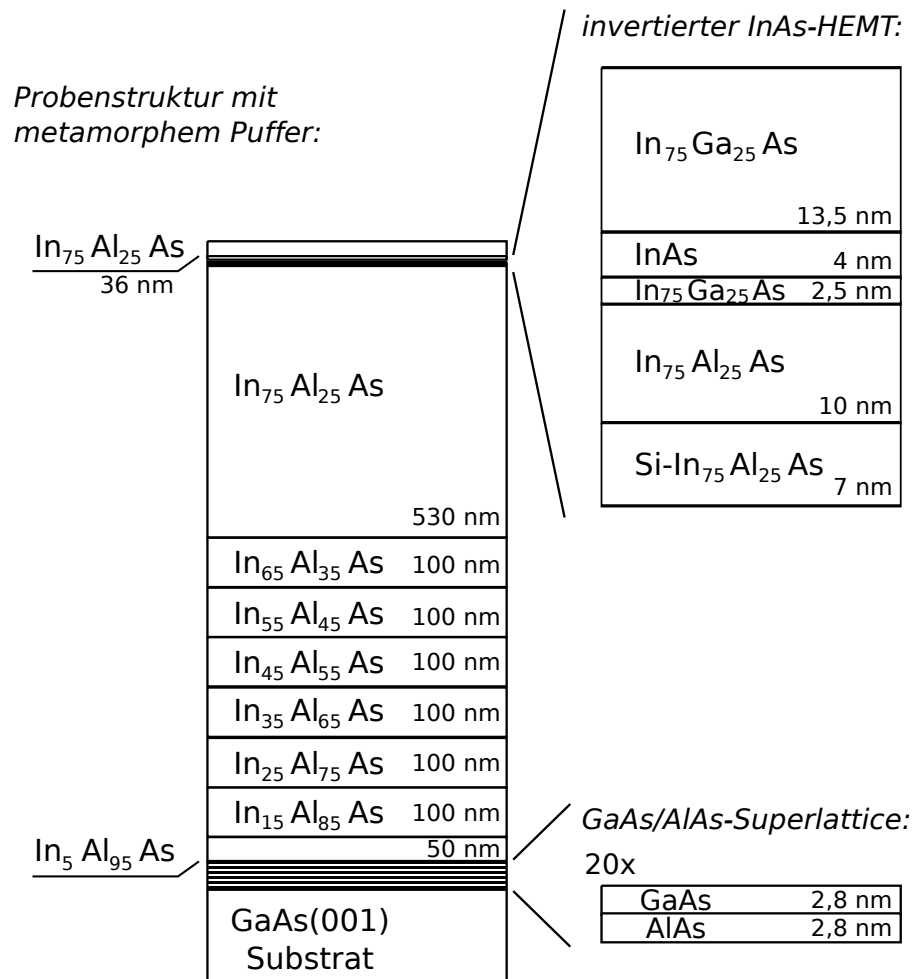


Abbildung 2.8: Schichtmodell der verwendeten HEMT-Struktur auf GaAs-Substrat. Dargestellt sind nominelle Zusammensetzungen und Schichtdicken. Der verspannte InAs-Kanal (Gitterfehlpassung $\delta = 1,7\%$) ist asymmetrisch in einem In₇₅Ga₂₅As-Quantentopf eingefügt, welcher in In₇₅Al₂₅As eingebettet ist. Die 36 nm dicke Deckschicht aus In₇₅Al₂₅As fungiert als virtuelles Substrat für das gitterangepasste Heuslerwachstum. Die Gitterfehlpassung zwischen der Ni₂MnIn-Heuslerschicht und dem virtuellen Substrat beträgt $\delta = 1,1\%$.

Kapitel 3

Probencharakterisierung

In diesem Kapitel werden die für morphologische, strukturelle, magnetische und elektrische Untersuchungen eingesetzten Geräte und Experimente vorgestellt. Hierbei werden die verwendeten Messbereiche sowie zugrundeliegende Messparameter für jede Methode kurz zusammengefasst wiedergegeben. Die Prinzipien der jeweiligen Messmethode sowie Referenzen zu weiterführender Literatur können dem vorangegangenen Kapitel 1.3 entnommen werden.

3.1 Strukturelle Eigenschaften

3.1.1 Rasterkraftmikroskopie

Messungen mit einem Rasterkraftmikroskop *AFM 2300* von *Veeco Metrology Group* lieferten Informationen über die Oberflächenmorphologie der Heuslerproben. Die Datenerfassung wurde im „tapping mode“ durchgeführt. Die Topographie der so untersuchten Oberflächen wurde mit der Software *WSxM 4.0* von *Nanotech Electronica* [Hor07] ausgewertet.

3.1.2 Röntgenreflektometrie

Eine quantitative Analyse der Schichtmorphologie von ausgewählten Proben wurde ermöglicht durch Röntgen-Reflektometriemessungen an der Beamline E2 des HASYLAB/DESY. Es wurde eine Photonenenergie von 11,5 keV (Wellenlänge $\lambda = 0,10765$ nm) gewählt. Die Brillanz betrug 3×10^{13} Photonen/s \cdot mm². Die Winkelauflösung des verwendeten experimentellen Aufbaus war besser als 0,005°. Die Oberfläche der untersuchten Proben wurde exakt parallel zum einfallenden Strahl ausgerichtet. Die Probenhöhe wurde in der Strahlführung des Experimentes so positioniert, dass die Probenkante genau in der Mitte des einfallenden Strahls lag und somit zu einer Halbierung der jeweilig bestimmten Strahlintensität führte. Hierbei wurde die Intensität mit einem *Cyberstar X2000* NaI-Szintillationsdetektor erfasst. Zur Auswertung der aufgenommenen XRR Spektren wurde ein Programm von Andreas Stiele [Sti] eingesetzt. Mit diesem Programm können Reflektogramme gemäß

einem Satz vorgegebener physikalischer Parameter simuliert werden. Basierend auf dem rekursiven Parrat Algorithmus wurden hiermit die Modellparameter numerisch an die experimentellen Daten mit der Methode der kleinsten Fehlerquadrate (χ^2 -Minimierung) angepasst [Par54].

3.1.3 Transmissions-Elektronenmikroskopie

Für die Untersuchung von Heuslerschichten mittels Transmissions-Elektronenmikroskopie (TEM) kamen zwei verschiedene Geräte zum Einsatz:

Für Hellfeldabbildungen und Beugungsexperimente an Schichten auf TEM-Netzchen aus Kupfer wurde das institutseigene *CM12* der Firma *Philips* verwendet. Die maximale Beschleunigungsspannung dieses Gerätes liegt bei 120 kV, das Punktauflösungsvermögen bei 0,3 nm. Die auf einem Fluoreszenzschirm erzeugten Bilder und Beugungsmuster werden auf einen elektronenempfindlichen Negativfilm belichtet. Nach der Filmentwicklung wurden diese mittels eines Durchlichtscanners digitalisiert und standen dann zur rechnergestützten Bildanalyse zur Verfügung. Zur Untersuchung der radialen Intensitätsverteilung mit dem Ziel der Phasenanalyse kam das frei erhältliche Programm *ProcessDiffraction* zum Einsatz [Láb05, Láb08, Láb09]. Mit diesem wurden Reflexlagen für die jeweilige Beschleunigungsspannung und der Kameralänge von 714 mm simuliert. Das CM12 ist zur Bestimmung der lokalen Stöchiometrie mit einem *LINK* System von *Oxford Instruments* zur energiedispersiver Röntgenfluoreszenz-Spektroskopie ausgestattet. Dieses bietet eine rechnergestützte Analyse der Messdaten und erreicht bei der Bestimmung der chemischen Zusammensetzung einer Probe eine Genauigkeit von $\pm 1\%$.

Um deponierte Schichten auf Halbleitersubstraten mittels TEM zu untersuchen, müssen diese bis zur Elektronentransparenz gedünnt werden. Eine solche Präparation kann wie in Abbildung 3.1 dargestellt entweder in planarer Geometrie (*plan view*) oder als Querschnitt (*cross-section*) erfolgen. Um eine ausgewählte Schicht auf Halbleitersubstrat mit dem CM12 in planarer Geometrie zu durchstrahlen, wurde das Substratmaterial mittels selektiven nasschemischen Ätzens gedünnt bis Elektronentransparenz am Rand der zurückbleibenden Heuslerschicht erreicht wurde. Diese Schicht wurde für Beugungsexperimente verwendet.

Um die Morphologie der auf Halbleitersubstraten deponierten Schichten sowie deren kristallographische und chemische Phase zu untersuchen, wurden zwei Proben am Institut für Integrative Nanowissenschaften des IFW-Dresden im Querschnitt mit einer *Nvision 40 Carl Zeiss crossbeam* Ionenstrahlkanone (FIB¹) als dünne Lamellen präpariert. Die Lamellen wurden mit einem fokussierten 700 pA Ionenstrahl bei 30 kV Beschleunigungsspannung aus den Proben herausgeschnitten. Die Probenoberflächen waren zuvor mit einer Schutzschicht aus Kohlenstoff versehen worden. Die endgültige Dicke der Lamellen von 40 nm wurde durch eine abschließende niedrigenenergetische Politur bei 5 kV und 40 pA erreicht. Diese Lamellen wurden am Institut für Physikalische Chemie der Universität Hamburg mit

¹engl.: Focused Ion Beam

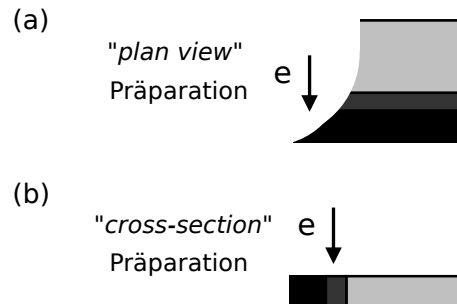


Abbildung 3.1: TEM-Probenpräparation in (a) planarer Geometrie (*plan view*) oder (b) als Querschnitt (*cross-section*). Während eine planare Probe geeignet für die Untersuchung der obersten Schicht ist, ermöglicht eine Querschnittsprobe die Analyse von Grenzflächen.

einem *Phillips CM 300UT* Mikroskop untersucht, welches sowohl mit einer digitalen Kamera zur Bildaufnahme (*Gatan*) als auch einem System zur energiedispersiven Röntgenfluoreszenz-Spektroskopie ausgestattet war. Bei verschiedenen Auflösungen wurde die Morphologie von Schichten und Substrat durch Abbildung im Hellfeld sowie die jeweilige kristallographische Phase mittels Feinbereichsbeugung untersucht. Bei ortsaufgelösten EDX-Messungen lag die effektive lokale Auflösung aufgrund des Anregungsvolumens für Röntgenquanten zwischen 15 nm und 20 nm.

3.1.4 Röntgendiffraktometrie

Die Kristallstruktur der auf Halbleitersubstraten deponierten Heuslerschichten wurde mit Hilfe von Röntgendiffraktometrie (XRD) untersucht. Hierfür wurden Messungen an der Beamline E2 bei HASYLAB/ DESY in koplanarer $\theta/2\theta$ -Geometrie durchgeführt. Die Röntgenstrahlung der Beamline wird an einem Ablenkungsmagnet erzeugt und weist mit 3×10^{13} Photonen/s \cdot mm² eine um den Faktor 1000 höhere Brillanz auf als eine Standardröntgenröhre. Gemessen wurde bei einer Photonenenergie von 11,5 keV, was einer Wellenlänge von $\lambda = 0,10765$ nm entspricht. Die Wahl der Energie war motiviert durch die Anforderungen, ein Übersichtsspektrum im Winkelbereich zwischen dem (002)- und (004)-Reflex von InAs innerhalb der Grenzen des apparativen Aufbaus zu ermöglichen. Als Detektor wurde der NaI-Szintillationszähler *Cyberstar X2000* verwendet. Um die Proben im Diffraktometer genau auszurichten wurde jeweils das Maximum des Substratreflexes 4.-Ordnung (z.B. (004) für InAs(001) und Si(001)) gesucht und so jede Probe genau ausgerichtet. Für alle untersuchten Proben wurde in einem Winkelbereich von $2\theta = 9^\circ$ bis $21,5^\circ$ ein Übersichtsspektrum mit einer Schrittgröße von $0,05^\circ$ bei einer Messzeit von 1 s je Schritt aufgenommen. Für eine genaue Phasenanalyse der Ni₂MnIn-Heuslerschichten wurden XRD-Spektren in ausgewählten kleineren Winkelbereichen mit einer Schrittweite von $0,001^\circ$ bei Messzeiten von 1 s bis 4 s je Schritt aufgenommen. Mit diesen Messparametern wurde unter anderem die Winkelbereiche um den (004)-

Reflex von InAs untersucht. Für ausgewählte Proben wurden zudem an Substrat- und Schichtreflexen die Kristallqualität mittels der Rocking-Curve-Methode untersucht.

Einige Proben wurden zusätzlich am Institut für Physikalische Chemie der Universität Hamburg in einer Geometrie mit rotierendem Probenstisch vermessen. Hierbei kam ein Standardlabordiffraktometer vom Typ *Philips X'Pert PRO MPD* zum Einsatz, welches mit einer Cu-Anode und einem *X'Celerator RTMS* Detektor ausgerüstet war. Die Cu-K $_{\alpha}$ -Strahlung hat eine Wellenlänge von 0,15406 nm, was einer Photonenenergie von 8 keV entspricht.

3.1.5 Optische Reflexions-Spektroskopie

Optische Reflexions-Spektroskopie (ORS) ermöglicht es unter anderem, relative Unterschiede untersuchter Systeme in der Oberflächen- und Grenzflächenmorphologie sowie der zugrunde liegenden Struktur aufzuzeigen. Hierbei definiert die Eindringtiefe der auf die Probenoberfläche einfallenden Photonen die Ausdehnung des untersuchten Probenvolumens und begrenzt somit die vertikale Probtiefe, aus der ein Messsignal noch zu den resultierenden Information beiträgt. Untersuchungen mit Optischer Reflexions-Spektroskopie im Energiebereich von 3,7 eV bis 24 eV wurden unter Nutzung des *Super-Lumi* Experimentes an der Beamline I von HASYLAB/ DESY durchgeführt. Hierbei wurde die Energie der einfallende Photonen mit hoher Auflösung eingestellt durch Verwendung eines 2 m großen Primär-Monochromators in 15° McPherson-Anordnung. Dieser ist ausgestattet mit einem holographisch hergestelltem Konkav-Gitter mit 1200 Linien / mm und Aluminium / MgF $_2$ -Beschichtung (Hersteller: *Jobin Yvon*). Von der Probe reflektierte Photonen wurden relativ zum einfallenden Strahl im Winkel von 35° detektiert. Ein mit Natriumsalicylat (C $_7$ H $_5$ NaO $_2$) beschichtetes Fenster wurde verwendet um die reflektierte Strahlung in Lichtquanten mit einer Wellenlänge von 400 nm bis 440 nm zu konvertieren. Diese wurden dann unter Verwendung eines Photomultipliers vom Typ *Valvo XP2230 B* in das resultierende Messsignal umgewandelt.

3.2 Magnetische Eigenschaften

3.2.1 SQUID-Magnetometrie

Die magnetischen Eigenschaften der Proben wurden in der Arbeitsgruppe von Professor Nielsch² mit einem SQUID-Magnetometer vom Typ *Quantum Design MPMS 2* charakterisiert. Alle Messungen wurden mit einer Magnetfeldorientierung parallel zur Filmebene (in-plane) durchgeführt. Die Magnetisierung einer Probe kann je nach Messverfahren temperaturabhängig (bei konstantem externen Feld) oder feldabhängig (bei konstanter Proben temperatur) bestimmt werden. Für alle einkristallinen Heuslerproben wurde die remanente Magnetisierung M_R als Funktion der

²bis Februar 2007: Prof. Kötzler

Temperatur bestimmt: Nach dem magnetfeldlosen Abkühlen der Probe auf die geringste Temperatur (typisch 10 K) wurde für eine kurze Zeit ein Magnetfeld von $H = 1500$ Oe angelegt, um das magnetische Probenmaterial zu sättigen. Danach wurde ohne externes Magnetfeld H jeweils die Magnetisierungskurve $M_R(T)$ mit steigender Temperatur aufgenommen.

3.3 Elektronische Eigenschaften

3.3.1 Punktkontakt-Andreev-Spektroskopie

Die Spinpolarisation ausgewählter Proben wurde in der Arbeitsgruppe von Professor Merkt mittels Punktkontakt-Andreev-Spektroskopie untersucht [Sch04, vO05]. Hierfür wurden die Proben an den vier Ecken mit Golddrähten unter der Verwendung von Indiumlot in einem speziellen VTI³-Messkopf kontaktiert und im Helium-Kryostat abgekühlt. Der Temperaturbereich der Messungen betrug 2 K bis Raumtemperatur. Eine Niobspitze wurde als supraleitender Punktkontakt verwendet. Die Leitfähigkeit des Metall-Supraleiter-Punktkontaktes wurde mit einer Vierpunktmessung unter Verwendung von LockIn-Verstärkern bestimmt (siehe Abbildung 3.2). Die differentielle Leitfähigkeit des Niobkontaktes wurde zur Auswertung gegen die angelegte Spannung aufgetragen. Die Bandlücke des Supraleiters lässt sich bei dieser Auftragung an dem Verschwinden der Leitfähigkeit symmetrisch zu $U = 0$ in allen Messungen bis zur Sprungtemperatur von Niob bei 9,2 K [Wea89] gut erkennen.

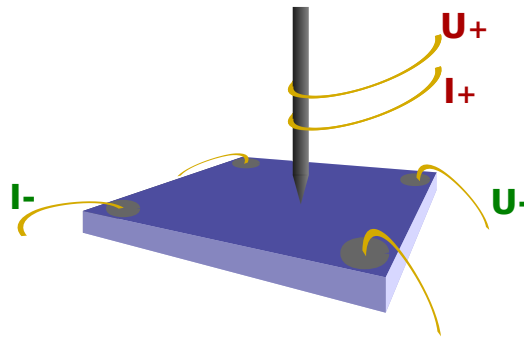


Abbildung 3.2: PCAR-Aufbau zur Messungen der Spinpolarisation. Die Probe ist mit vier Indiumkontakten versehen. Die Niobspitze ist doppelkontaktiert. Für die Vierpunktmessung in PCAR-Anordnung werden zwei Indiumkontakte und beide Spitzenkontakte verwendet

Die Spinpolarisation der Heuslerschichten wurde aus den Messdaten im Rahmen des erweiterten BTK-Modells (siehe Abschnitt 1.3.7) unter Berücksichtigung von Korrekturen für das diffusive Transportregime bestimmt [Sou98]. Die Auswertung der Messdaten erfolgte durch einen Datenbankvergleich mit vorausgerechneten Spektren nach der Methode der kleinsten Fehlerquadrate. Die gesuchten Werte für

³engl.: Variable Temperature Inset

die Polarisation P und den Grenzflächenparameter Z ergaben sich aus dem Parametersatz der Simulation, welcher die beste Übereinstimmung zu den Messdaten aufwies. Der mittels dieses Datenbankvergleichs bestimmte Parameter für die Temperatur T wich oft von der gemessenen Proben temperatur T_{meas} ab, die parallel zur PCAR-Messung am Ort der Probe mit einem Allen-Bradley-Sensor bestimmt wurde. Zm Schluss der Auswertung wurde für jede gemessene Proben temperatur die Polarisation P als Funktion des Z -Parameters als Wertepaar in einem Diagramm aufgetragen. Eine parabolische Extrapolation auf den Wert $Z = 0$ ergibt die Polarisation der Probe im Fall einer angenommenen idealen Grenzfläche für den Punktkontakt. Hierdurch lässt sie die Polarisation für unterschiedliche Proben und unabhängig von der Messtemperatur vergleichen.

3.3.2 Magneto-Optische Ellipsometrie

In der Forschungsgruppe von Professor Rübhausen wurden Untersuchungen mittels SGME durchgeführt, um die Diagonalelemente (ε_{xx}) und Nicht-Diagonalelemente (ε_{xy}) des dielektrischen Tensors mehrerer Heuslerproben zu bestimmen. Hierfür wurden die Intensitäten des reflektierten Lichts für verschiedene Kombinationen von Polarisator- und Analysatorwinkeln und in Abhängigkeit von externen Magnetfeldern bei unterschiedlichen Temperaturen gemessen. Die Komponenten des dielektrischen Tensors einer Probe wurden anschließend aus den Daten von etwa 100 aufgenommenen Spektren extrahiert. Die Analyse der differentiellen Spektren erfolgte auf Grundlage des von Rauer *et al.* entwickelten Rechenmodells [Ber97, Rau05]. Für die Durchführung der temperaturabhängigen SGME-Messungen wurde ein um Helmholtzspulen erweitertes spektroskopisches Ellipsometer vom Typ *Sentech SE 850* eingesetzt. Die verwendete Xenon-Lichtquelle ermöglichte Messungen in einem Spektralbereich von $E = 0,5$ bis $5,5$ eV. Das angelegte Magnetfeld betrug $H = \pm 440$ mT und war parallel zur untersuchten Heuslerschicht und senkrecht zum Einfallswinkel des Lichts orientiert (siehe Abbildung 1.13 auf Seite 30). Gemessen wurde unter Vakuum in einem Helium-Flusskryostaten, welcher spannungsfreie, nicht depolarisierende Fenster innerhalb der Strahlführung aufwies. Der Rezipient wurde für die Untersuchungen auf einen Basisdruck von 3×10^{-8} mbar bei Raumtemperatur evakuiert [Rau05].

In der Heuslerlegierung Ni_2MnIn tragen spinpolarisierte Bänder von Nickel- und Manganzuständen zu den optischen Übergängen im Spektralbereich von $E = 0,5$ – $5,5$ eV bei, welche die in den Messungen bestimmbare spinabhängige dielektrische Tensorkomponente $\varepsilon_{1,xy}$ hervorrufen. In aktuellen Bandstrukturechnungen wird die Spinpolarisation bei Fermienergie auf Beiträge von Nickelzuständen an der Bandstruktur zurückgeführt [Kil01, Sas04, Sin09]. Während bei Übergangsenergien unterhalb 2 eV Nickelzustände die mit SGME gemessene Spinpolarisation dominieren, sind die Bänder, welche zu den optischen Übergängen beitragen, bei höherer Energie zunehmend mit Manganzuständen hybridisiert. Oberhalb des erfassten Energiebereiches ($E > 5,5$ eV) dominieren Manganzustände die mittels SGME gemessene Spinpolarisation. Vor dem Hintergrund der Bandstrukturechnungen von Singer *et al.*

kann der Einfluss von Mangan in einem Energiebereich von $1,57 \text{ eV} < E < 2,84 \text{ eV}$ als gering betrachtet werden [Sin09]. Die in diesem Energiebereich bestimmte Spinpolarisation lässt daher Rückschlüsse auf die am Fermi-niveau auftretende Spinpolarisation zu. Zur Bestätigung dieser Annahme ist eine technische Erweiterung des Ellipsometrie-Experimentes für Messungen bis zu einer Energie von $0,5 \text{ eV}$ geplant. Die Integration der ε_{1xy} -Werte durch Aufsummation ist bei der Untersuchung von Ni_2MnIn vorteilhaft gegenüber einer Betrachtung von ε_{1xy} -Werten bei einer diskreten Energie, da der niederenergetische Teil des Spektrums durch den Messbereich des Spektrometers bei $1,57 \text{ eV}$ abgeschnitten wird und gleichzeitig bei Messungen an verschiedenen Proben desselben Materialsystems leichte Verschiebung der Spektren auf der Energieskala auftreten können. Während die Wahl einer technisch bedingt bei $1,57 \text{ eV}$ liegenden unteren Integrationsgrenze die Ergebnisse der Aufsummation verschiedener Proben relativ zueinander nicht stark verändert, hat eine feste obere Integrationsgrenze, welche gegebenenfalls neben dem Achsenschnittpunkt einer der erfassten Kurven bei $2,58$ bis $2,84 \text{ eV}$ liegt, einen großen Einfluss auf die integrierten ε_{1xy} -Werte (siehe Abbildungen 4.9, 4.25 und 4.26). Da zudem oberhalb des Schnittpunktes des Spektrums mit der x-Achse im Energiebereich $E > (2,58 - 2,84) \text{ eV}$ der Einfluss von Manganzuständen überwiegt, ist die Wahl des jeweiligen Schnittpunktes als obere Integrationsgrenze für einen relativen Vergleich der integrierten ε_{1xy} -Werte zueinander in den vorliegenden Untersuchungen an Ni_2MnIn -Schichten sinnvoll. Eine genauere Betrachtung wird erst die technische Erweiterung des Messaufbaus hin zu einem Spektralbereich kleiner $E = 1,57 \text{ eV}$ erlauben, welche eine vollständige Abbildung der dielektrischen Funktion von Ni_2MnIn ermöglicht.

Kapitel 4

Ergebnisse

In diesem Kapitel werden die Ergebnisse aus Untersuchungen an freistehenden Heuslerfilmen sowie Heuslerschichten auf Au/Si, InAs(001) und virtuellen Substraten (InAs-HEMT) vorgestellt. Hierbei stehen die morphologischen und strukturellen Eigenschaften der jeweiligen Proben im Vordergrund. Ein Teil der Heuslerschichten wurde zudem hinsichtlich ihrer magnetischen und elektrischen Eigenschaften untersucht. Die Resultate aus diesen Messungen runden die systematische Charakterisierung der hergestellten Heuslerproben ab.

4.1 Freistehende Ni₂MnIn-Heuslerfilme

Die kristallographische Phase und die Morphologie von freistehenden Ni₂MnIn-Filmen auf TEM-Netzchen mit Kohlenstoffmembranen wurde mittels Transmissions-Elektronenmikroskopie untersucht. Hierfür wurden Abbildungen des Hellfeldes sowie der Feinbeugung von einer bei verschiedenen Substrattemperaturen gewachsenen Probenserie erstellt.

4.1.1 Probenmorphologie

Die Hellfeldaufnahmen der 30 nm dicken freistehenden Ni₂MnIn-Filme sind in Abbildung 4.1 dargestellt. Untersucht wurden sieben Heuslerproben, welche bei 80 °C, 200 °C, 250 °C, 270 °C, 300 °C, 320 °C und 340 °C Substrattemperatur gewachsen wurden. Alle zwischen 200 °C und 340 °C gewachsenen Heuslerfilme weisen eine ähnliche Morphologie auf. Erkennbar ist eine geschlossene, polykristalline Schicht ohne Lücken und ohne erkennbaren Kontrast an den Korngrenzsäumen, welcher auf eine Ausscheidung von Fremdphasen an Grenzflächen hinweisen könnte. Einzelne Kristallite treten durch Kontrastvariationen in Erscheinung. Hierbei handelt es sich um Beugungskontrast, hervorgerufen durch unterschiedliche kristallographische Ausrichtung der einzelnen Kristallite. Die Kristallitgröße der Heuslerfilme liegt für alle Substrattemperaturen zwischen 20 nm und 25 nm. Einzig die 80 °C-Probe weist eine leicht veränderte Morphologie auf. Dieser Heuslerfilm besteht aus einer amorphen Matrix, in welcher wenige, etwa 20–25 nm große Ni₂MnIn-Kristallite eingebettet

sind. Um die amorphen Bereiche des Gefüges zu rekristallisieren, wurde an dieser 80 °C-Probe ein zusätzlicher thermischer Prozessschritt durchgeführt. Der Heusler-Film wurde an Luft für drei Stunden bei einer Temperatur von 200 °C ausgeheilt. Das Ergebnis ist in Abbildung 4.1 unten rechts dargestellt. Eine starke Veränderung der morphologischen Probebeschaffenheit hin zu einem feinkristallinen Gefüge ist deutlich zu erkennen.

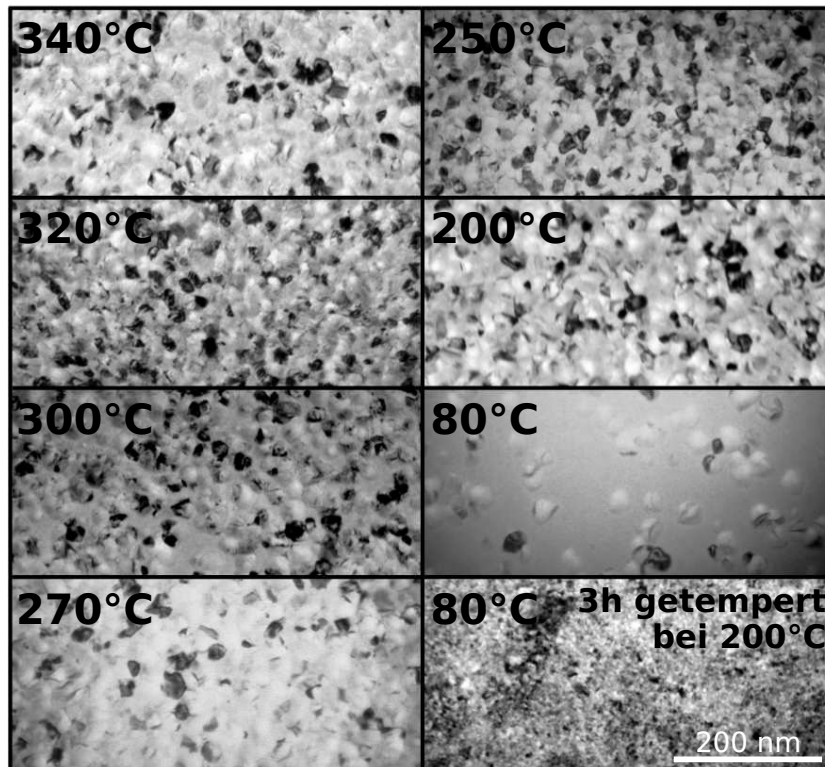


Abbildung 4.1: TEM-Hellfeldbilder von 30 nm dicken freistehenden Ni₂MnIn-Filmen. Die Wachstumstemperatur betrug 80 °C–340 °C. Die Kristallitgröße der geschlossenen, polykristallinen Filme liegt zwischen 20 nm und 25 nm. Der 80 °C-Film besteht aus Kristalliten in einer überwiegend amorphen Matrix. (*unten rechts*) Die 80 °C-Probe zeigt nach 3h Tempern bei 200 °C ein feinkristallines Gefüge mit Ausscheidungen von Fremdphasen.

Alle mittels MBE präparierten freistehenden Heuslerfilme weisen trotz unterschiedlicher Wachstumstemperaturen eine vergleichbare Kristallitgröße von 20 nm bis 25 nm auf. In den Untersuchungen von Kurfiß [Kur03, Kur05a, Kur05b] wurde hingegen eine starke Veränderung der Probenmorphologie für verschiedene Substrattemperaturen beobachtet. Zudem wurde dort ein Einfluss der Heusler-Stöchiometrie auf die Kristallitgröße beschrieben, der in den hier vorliegenden Untersuchungen nicht beobachtet werden kann. Abweichungen von der exakten Ni₂MnIn-Stöchiometrie bei den untersuchten freistehenden Ni₂MnIn-Filmen zeigen keinen Einfluss auf die Morphologie. Weder führt eine Erhöhung des Indiumanteils um 6 at% zur Ausbildung von größeren, noch eine leichte Erhöhung des Mangananteils von 2 at% zur Entstehung von kleineren Heusler-Kristalliten. Als Ursache wird ein Unterschied

in der Präparationstechnik vermutet. Kurfiß setzte einen Zweifach-Elektronenstoßverdampfer ein, aus dem Ni und eine MnIn-Legierung stöchiometrisch aufgedampft wurden. Die Gesamtflussrate für Ni_2MnIn war dabei im Vergleich zu der hier verwendeten Aufdampftechnik um den Faktor 2–3 größer.

4.1.2 Phasenanalyse

In Abbildung 4.2 sind die Ergebnisse der Feinbeugung an den sieben 30 nm dicken Heuslerschichten dargestellt. Die regellos verteilten Kristallite dieser polykristallinen Heuslerproben erzeugen Beugungsringe. Die berechnete radiale Intensitätsverteilung

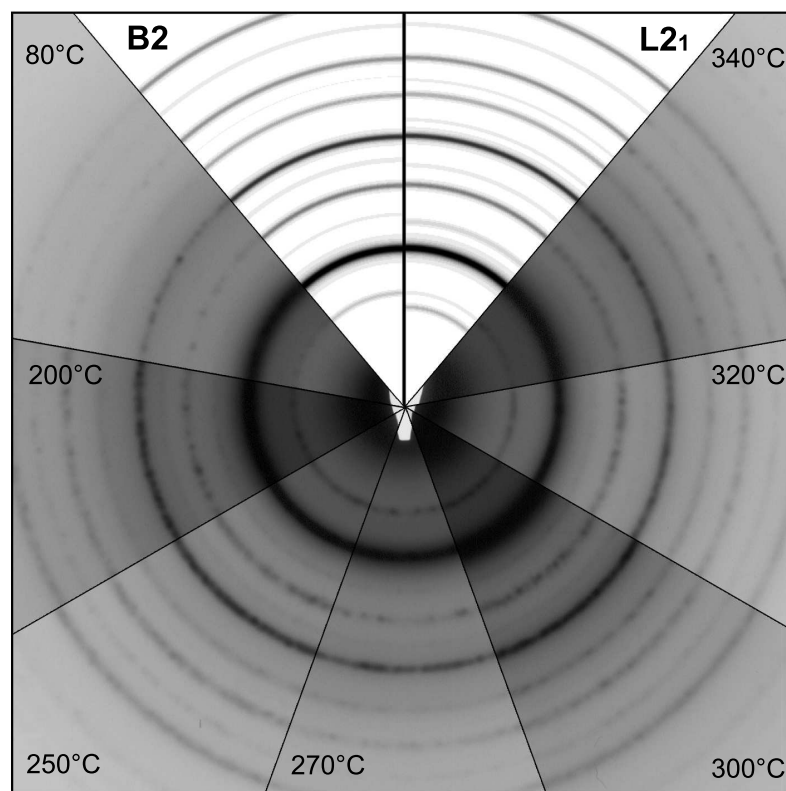


Abbildung 4.2: Feinbeugung an 30 nm dicken freistehenden Ni_2MnIn -Filmen. Die Wachstumstemperatur der Heuslerschichten ist im Sektor des jeweiligen Beugungsringes angegeben. Im oberen Teil der Abbildung sind die berechneten radialen Intensitätsverteilungen für die L_{21} - und B_2 -Phase dargestellt. Alle sieben untersuchten Heuslerfilme kristallisieren unabhängig von der Wachstumstemperatur in der B_2 -Phase.

für Reflexlagen der L_{21} - und B_2 -Struktur sind im oberen Teil der Abbildung dargestellt. Hierbei sind unterschiedliche Intensitäten der Beugungsringe als Modifikationen in der Linienbreite der Darstellung wiedergegeben. Der innerste Beugungsring der berechneten Intensitätsverteilung für die L_{21} -Phase wird durch Netzebenen vom Typ (111) hervorgerufen. Bei keinem der untersuchten Heuslerfilme treten Reflexe mit ungeraden Indizes auf. Die Beugungsbilder aller sieben Proben können eindeutig

der B2-Phase zugeordnet werden. In keinem der Beugungsbilder existieren Anzeichen, welche auf die Existenz einer nicht kubischen Heuslerphase bzw. Fremdphase hindeuten könnten. Lediglich bei der 80 °C-Probe fällt im Vergleich zu den anderen Proben eine geringere Intensität der Ni₂MnIn-Beugungsringe auf. Dies ist konsistent mit der Beobachtung einer überwiegend amorphen Matrix mit wenigen ausgeprägten Kristalliten in der TEM-Hellfeldaufnahme dieser Probe.

4.2 Ni₂MnIn auf Au/Si(001)-Substraten

4.2.1 Probenmorphologie

Röntgenreflektometrie

Die Morphologie einer polykristallinen Ni₂MnIn-Heuslerschicht auf Si-Substrat mit einer Zwischenschicht aus Gold wurde mittels Röntgenreflektometrie untersucht. In

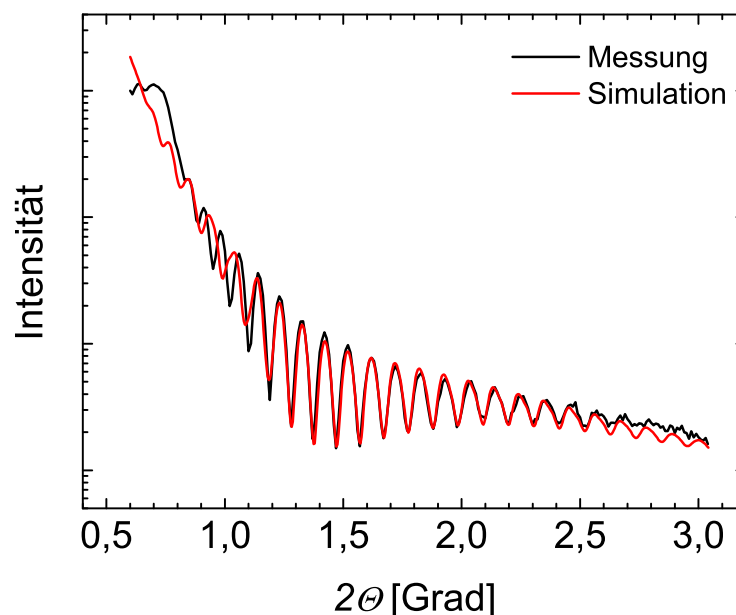


Abbildung 4.3: Gemessenes (schwarz) und simuliertes (rot) XRR-Spektrum einer nominell 50 nm dicken Heuslerschicht, bei 300 °C auf eine ex-situ aufgedampfte, 60 nm dicke Zwischenschicht aus polykristallinem Gold auf Silizium(001) gewachsen.

Abbildung 4.3 ist das XRR Spektrum der nominell 50 nm dicken Heuslerschicht, deponiert auf einer 60 nm dicken polykristallinen Goldschicht, dargestellt. Als Substrat wurde Silizium(001) mit natürlicher Oxidschicht verwendet, die Wachstumstemperatur betrug 300 °C. Die Auswertung der in schwarz dargestellten XRR-Messdaten erfolgte mittels einer Anpassungsrechnung unter Verwendung eines *Vier-Lagen* Modells. In diesem Strukturmodell werden eine dünne Oxidschicht auf der Probeno-

berfläche, die Heuslerschicht (Lage 1), eine Reaktionszone in Form einer durchmischten Zwischenschicht zwischen Gold- und Heuslerschicht (Lage 2), die aufgedampfte Goldschicht (Lage 3), das natürliche Oxid des Substrates (Lage 4) sowie das Si-Substrat berücksichtigt. Das berechnete XRR-Spektrum mit der besten Anpassung an die Messdaten ist in Abbildung 4.3 als rote Kurve dargestellt. Auf Basis der resultierenden Modellparameter wurde für den Schichtaufbau der Probe (Oxid/ Ni_2MnIn /Reaktionszone/ $\text{Au}/\text{p-Si}$) ein Strukturmodell der nominellen und realen Probenmorphologie erstellt, welches in Abbildung 4.4 wiedergegeben ist. Abweichend von der nominellen Schichtstruktur in 4.4(a) zeigen die Ergebnisse der XRR-Untersuchungen die Ausbildung einer 20 nm dicken durchmischten Reaktionszone zwischen der Heusler- und der Goldschicht an. Die Schichtdicke der polykristallinen Heuslerlegierung verringert sich hierdurch auf etwa 34 nm, wie in Abbildung 4.4(b) gezeigt.

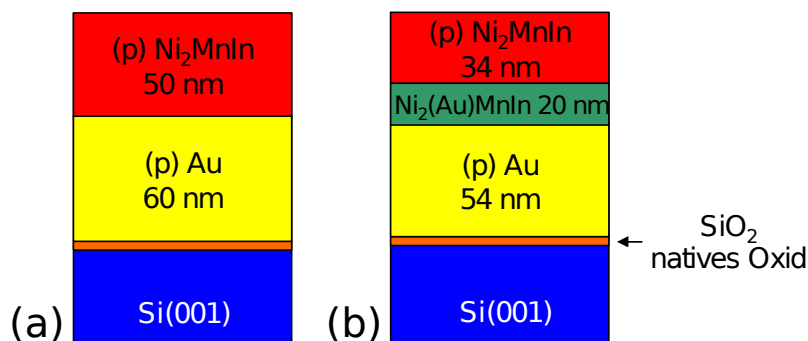


Abbildung 4.4: (a) nominelle Schichtstruktur der $\text{Ni}_2\text{MnIn}/\text{Au}/\text{Si}$ -Probe (b) reale Morphologie der polykristallinen Heuslerschicht auf $\text{p-Au}/\text{Si}(001)$. Zwischen Heuslerschicht und der polykristallinen Gold-Zwischenschicht hat sich eine 20 nm dicke Reaktionszone ausgebildet.

4.2.2 Strukturelle Eigenschaften

Röntgendiffraktometrie

Die $\text{Ni}_2\text{MnIn}/\text{Au}/\text{Si}$ -Probe wurde zudem in $\theta/2\theta$ -Geometrie mit Röntgenbeugung untersucht. Bei der Justage der Reflexposition im Diffraktometer wurde die Probe exakt auf das Intensitätsmaximum des Silizium (004)-Substratreflexes ausgerichtet. In Abbildung 4.5(a) ist das Übersichtsspektrum der Heuslerprobe dargestellt; neben dem Substratreflex ist deutlich der (111)-Au-Reflex der polykristallinen Goldschicht sichtbar. Bei polykristallinem Wachstum treten alle für ein Kristallgitter erlaubten Reflexe in einem Beugungsspektrum auf, unabhängig von der Orientierung des unterliegenden einkristallinen Substrates. Die Intensität der beobachteten Reflexe ist hierbei von der Flächenhäufigkeit bestimmt. Eine Übersicht des Beugungswinkels, der relativen Intensität und Art der erlaubten Reflexe für Ni_2MnIn ist in Tabelle 4.1 wiedergegeben. In Beugungsexperimenten an Gold erzeugen (111)-Ebenen die

stärksten Signale. Der zweitstärkste Reflex wird von Ebenen des (200)-Typs erzeugt. Bei Ni₂MnIn ist nur der Reflex mit der höchsten Intensität von Ebenen des (220)-Typs zu erkennen. Eine höher aufgelöste Aufnahme für den Bereich $\theta = 12\text{--}16^\circ$ ist in Abbildung 4.5(b) dargestellt. Neben dem (111)-Au-Reflex können zwei weitere Maxima identifiziert werden, welche sich Ni₂MnIn ($\bar{2}20$) und Au (002) zuordnen lassen. In der Auftragung oben rechts in Abbildung 4.5(b) ist ein hochaufgelöstes Spektrum des Ni₂MnIn ($\bar{2}20$)-Reflexes gezeigt. Die Anpassung einer Gaußkurve, dargestellt in rot, ergibt für die Lage des Maximums einen Wert von $\theta = 14,58^\circ$. Aus diesem Wert lässt sich unter Annahme einer kubischen Symmetrie für die polykristalline Heuslerlegierung eine Gitterkonstante von $0,6056 \pm 0,0002$ nm errechnen. Im Vergleich zu der Gitterkonstante von 0,6022 nm für Ni₂MnIn-Volumenmaterial weisen die hier vorliegenden Kristallite eine größere Gitterkonstante auf. Da aufgrund der polykristallinen Au-Zwischenschicht Verspannungseffekte sowie eine Textur durch Wachstum in einer Vorzugsrichtung als Ursache ausscheiden, wird eine Kontamination der Heuslerlegierung mit Goldatomen als Ursache vermutet. Unterstützt wird diese Annahme durch die Ergebnisse der XRR-Untersuchung, für deren Auswertung der Bereich nahe der Ni₂MnIn/Au-Grenzfläche als eigene Schicht im Modell betrachtet werden musste (Abbildung 4.4(b)). In diesem Bereich nahe der Grenzfläche liegt offensichtlich eine besonders hohe Au-Kontamination aufgrund von Diffusion in die Heuslerschicht vor.

	θ [°]	d [nm]	Intensität [%]	h k l
Ni ₂ MnIn	8,990	0,345	9	1 1 1
	10,367	0,2996	3	2 0 0
	14,718	0,2122	100	2 2 0
	17,309	0,1812	4	3 1 1
	18,104	0,1735	2	2 2 2
	21,006	0,1504	9	4 0 0
	22,979	0,1381	2	3 3 1

Tabelle 4.1: Übersicht experimenteller Literaturwerte für Röntgenbeugung von Ni₂MnIn mit einer Gitterkonstante von 0,6024 nm: Beugungswinkel θ für Synchrotronstrahlung mit $E = 11,5$ keV ($\lambda = 0,107826$ nm), Netzebenenabstand (d -Wert), relative Intensität und Millersche Indizes aus [JCP94].

4.2.3 Elektronische Eigenschaften

Punktkontakt-Andreev-Spektroskopie

Drei polykristalline Heuslerschichten auf Au/Si-Substraten wurden in der Gruppe von Prof. Merkt von Jan Scholtyssek und Hauke Lehmann mittels PCAR untersucht und ausgewertet. Eine Pufferschicht aus Gold wurde bei diesem Probende-

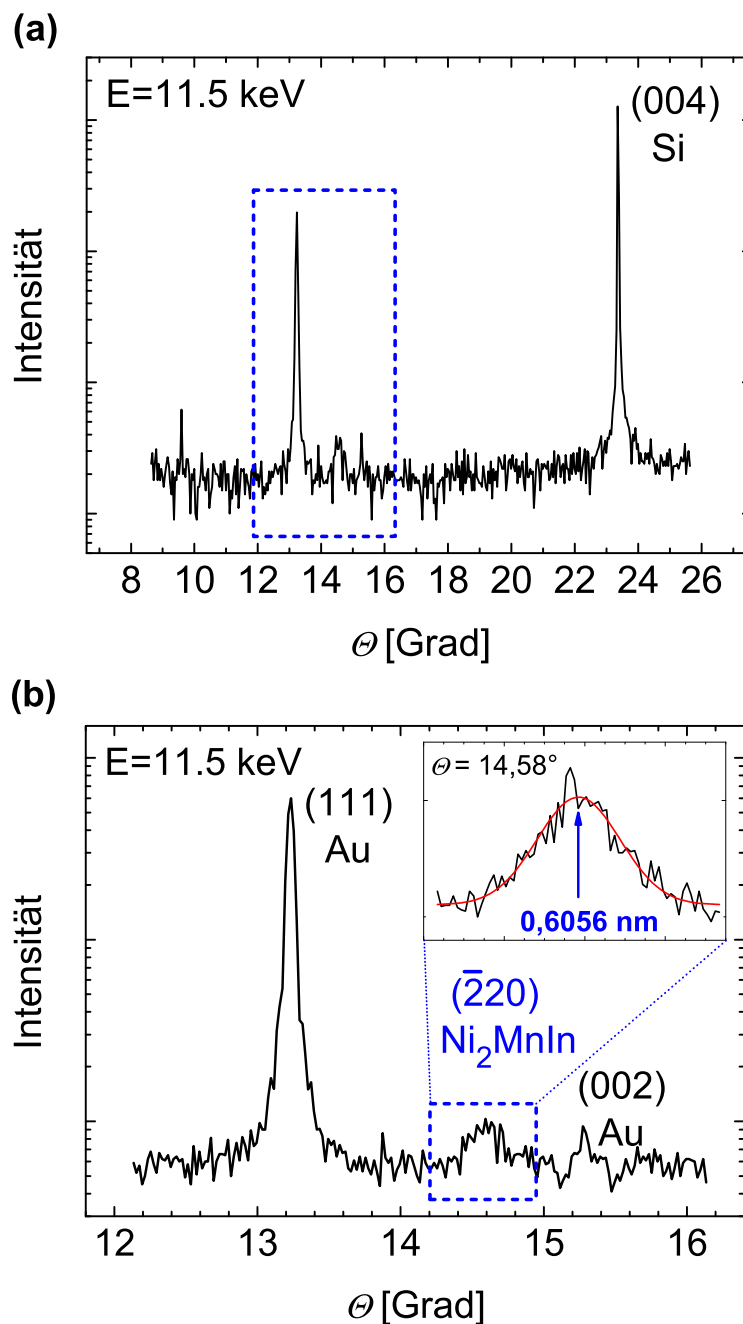


Abbildung 4.5: (a) XRD-Übersichtsspektrum einer $\text{Ni}_2\text{MnIn}/\text{Au}/\text{Si}$ -Probe. Deutlich zu erkennen ist der (004)-Reflex des Siliziumsubstrates. Der im blau gestrichelten Rechteck gekennzeichnete Bereich umschließt den (111)-Au-Reflex. (b) XRD-Detailspektrum des Winkelbereiches rechts vom (111)-Au-Reflex. Zwei weitere Maxima können als $(\bar{2}20)$ - Ni_2MnIn - und (002)-Au-Reflexe der beiden polykristallinen Schichten identifiziert werden. Oben rechts ist eine hochauflösende Messung des Heuslerreflexes dargestellt. Die Anpassung einer Gaußkurve (rot) ergibt ein Maximum bei $\theta = 14,58^\circ$ und somit eine um 0,5% größere Gitterkonstante von $0,6056 \pm 0,0002$ nm für p- $\text{Ni}_2\text{MnIn}/\text{Au}$ im Vergleich zum Heusler-Literaturwert.

sign gewählt, um einen Einfluss des p-dotierten Si-Wafers auf die temperaturabhängige Messung der differentiellen Leitfähigkeit zu vermeiden. Die ersten beiden $\text{Ni}_2\text{MnIn}/\text{Au}/\text{Si}$ -Proben wurden bei 300°C deponiert und unterscheiden sich nur in ihrer Schichtdicke von jeweils 50 nm und 60 nm. Die dritte Schicht ist 177 nm dick und wurde bei einer Substrattemperatur von 320°C gewachsen.

Die Auswertung erfolgte bei allen drei Proben mit einem Modell für das diffusive Transportregime durch Anpassung der gewonnenen Messdaten an simulierte PCAR-Spektren aus einer zuvor berechneten Referenzdatenbank [Boc07, Sch07]. Die Spinpolarisation P und der Z -Parameter können so aus der Messkurve der jeweiligen Temperatur bestimmt werden (siehe Abschnitt 3.3.1). In Abbildung 4.6 ist die differentielle Leitfähigkeit dG des Punktkontaktes normiert auf die Leitfähigkeit G_n der 50 nm dicken Ni_2MnIn -Schicht (gewachsen bei 300°C auf Au/Si) als Funktion der externen Spannung für verschiedene Temperaturen dargestellt. Auch wenn zwischen den gemessenen Daten und der rechnerischen Simulation (dargestellt als durchgezogene Linie) Abweichungen erkennbar sind, weisen die im Rahmen der Auswertung erreichten kleinen Werte der χ^2 Fehlerquadrate auf eine gelungene Anpassung hin. Im inneren Diagramm ist die jeweilige aus dem Fit gewonnene Polarisation P gegen den Z -Parameter aufgetragen. Eine Extrapolation der Auftragung $P(Z)$ auf $Z = 0$ ergibt für diese Probe eine Spinpolarisation von $P = 0,32$. Die PCAR-Ergebnisse

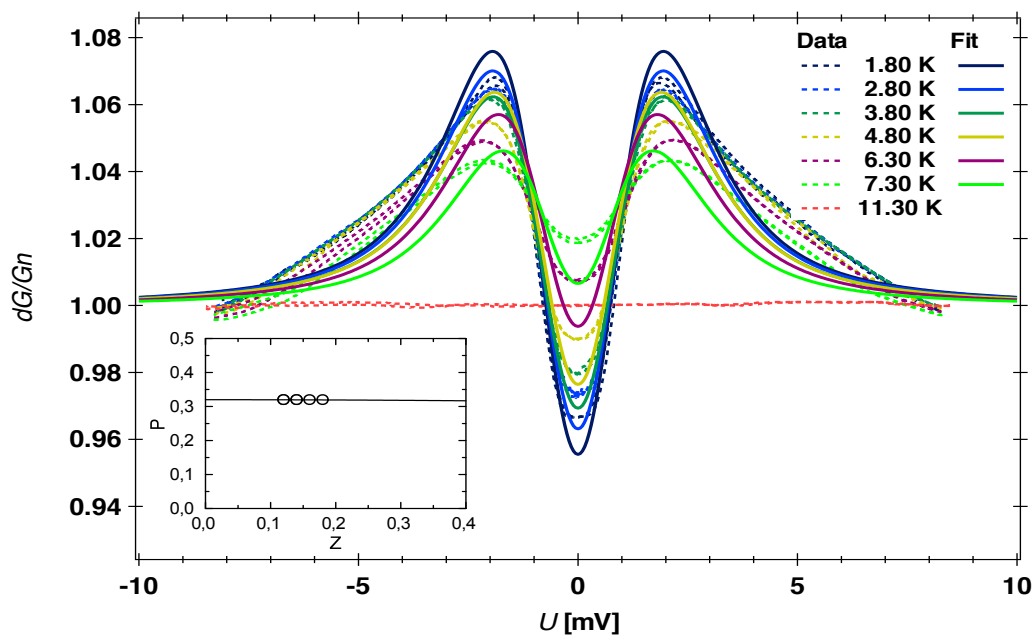


Abbildung 4.6: Leitfähigkeit dG/dG_n eines $\text{Ni}_2\text{MnIn}/\text{Au}/\text{Si}$ -Punktkontaktes mit Niobspitze. Die Heuslerschicht ist 50 nm dick und wurde bei 300°C gewachsen. Innerhalb der Bandlücke des Supraleiters Niob wird bei $U = 0$ (ohne externe Offset-Spannung) die Andreev-Reflexion effektiv unterdrückt. Mit zunehmender Messtemperatur nimmt dG/dG_n ab, bis zum Verschwinden der Bandlücke beim Erreichen der Sprungtemperatur $T_{C,\text{Niob}} = 9,2\text{ K}$ [Wea89]. Inneres Diagramm: für $Z = 0$ ergibt sich eine Polarisation von $P = 0,32$.

der bei 300°C gewachsenen 60 nm dicken Ni_2MnIn -Schicht sind in Abbildung 4.7 gezeigt. Eine Extrapolation der ermittelten $P(Z)$ auf den Wert für $Z = 0$ ergibt bei dieser Probe eine Spinpolarisation von $P = 0,42$. Die Daten der bei 320°C gewachsenen 177 nm dicken Ni_2MnIn -Heuslerschicht sind in Abbildung 4.8 wiedergegeben. Für die Spinpolarisation der Heuslerschicht extrapoliert auf $Z = 0$ ergibt sich ein Wert von $P = 0,32$. Die Parameter aller simulierten PCAR-Kurven sind in Tabelle A.1 auf Seite 131 zusammengefasst.

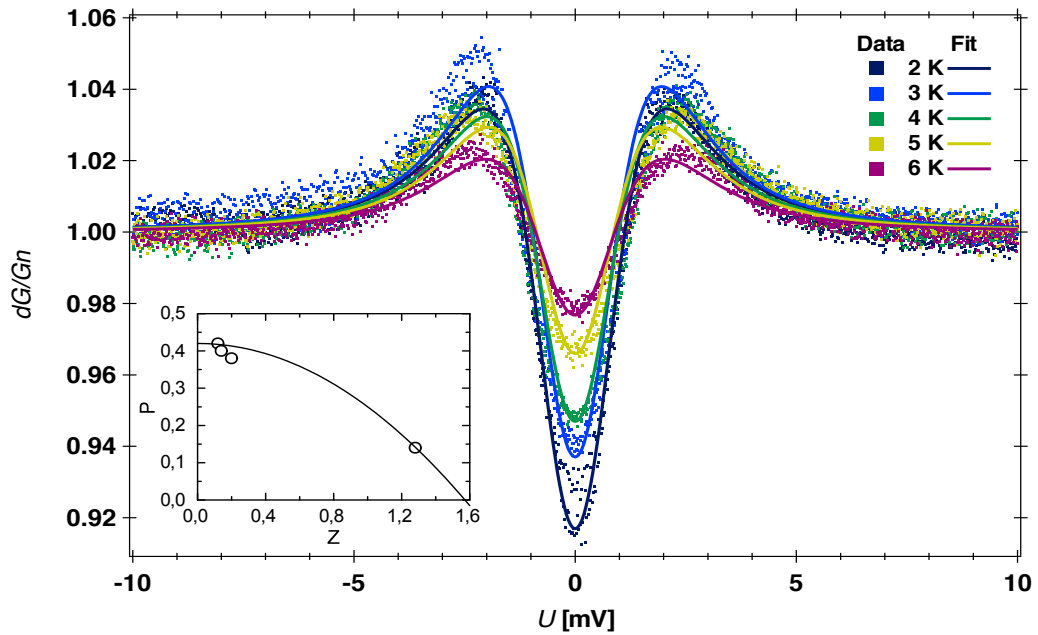


Abbildung 4.7: Leitfähigkeit dG/dG_n eines $\text{Ni}_2\text{MnIn}/\text{Au}/\text{Si}$ -Punktkontaktes mit Niob-Spitze. Die Heuslerschicht ist 60 nm dick und wurde bei 300°C gewachsen. Die hier dargestellten Messdaten wurden nicht geglättet. Inneres Diagramm: für $Z = 0$ ergibt sich eine Polarisation von $P = 0,42$.

Alle an polykristallinen Heuslerschichten auf Gold bestimmten Werte für die Spinpolarisation P liegen im Bereich zwischen 32% und 42% . Die höchste Spinpolarisation von $P = 42\%$ wird bei der 60 nm dicken, bei 300°C gewachsenen Probe beobachtet. Die 50 nm dicke, ebenfalls bei einer Wachstumstemperatur von 300°C hergestellte Ni_2MnIn -Heuslerschicht weist mit $P = 32\%$ eine etwas geringere Spinpolarisation auf. Dies liegt möglicherweise in einem strukturellen Einfluss der in Abschnitt 4.2.1 beobachteten Reaktionszone zwischen Ni_2MnIn und Gold begründet, welcher bei Spinpolarisationsmessungen an der dünneren, 50 nm dicken Heuslerschicht stärkerer zum Tragen kommt. Mit einer Erhöhung der Wachstumstemperatur auf 320°C und der Heuslerschichtdicke auf 177 nm konnte kein Ansteigen der Spinpolarisation auf Werte oberhalb von $P = 32\%$ erreicht werden.

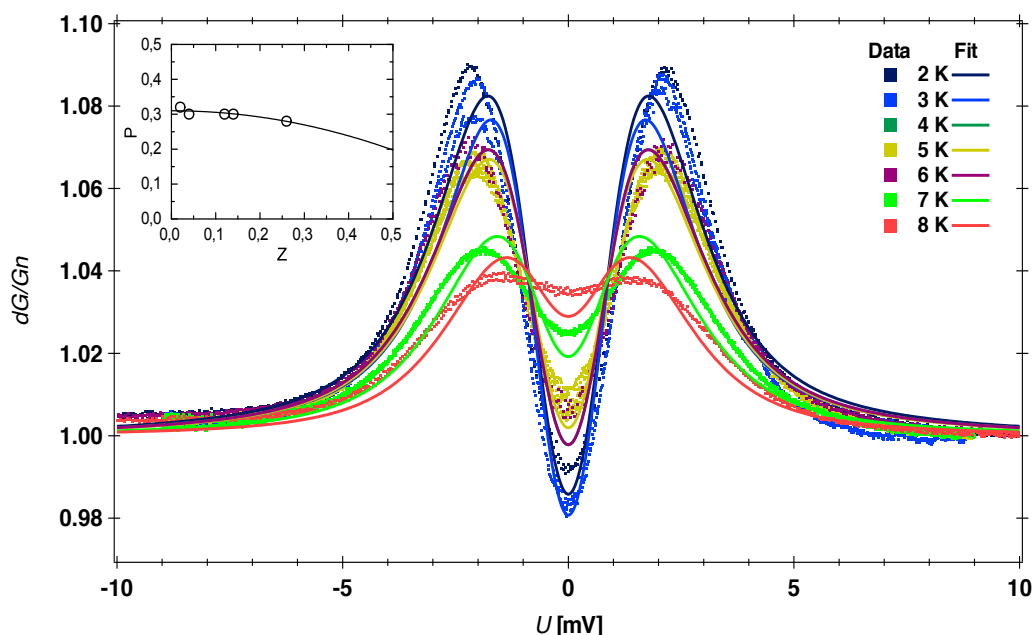


Abbildung 4.8: Leitfähigkeit dG/dG_n eines $\text{Ni}_2\text{MnIn}/\text{Au}/\text{Si}$ -Punktkontaktes mit Niob-Spitze. Die Heuslerschicht ist 177 nm dick und wurde bei 320°C gewachsen. Die hier dargestellten Messdaten wurden nicht geglättet. Inneres Diagramm: für $Z = 0$ ergibt sich eine Polarisation von $P = 0,32$.

Magneto-Optische Ellipsometrie

An zwei der Ni_2MnIn -Heuslerschichten, welche auf $\text{p-Au}/\text{Si}(001)$ präpariert worden waren, wurden von Marta Bastian in der Gruppe von Prof. Rübhausen SGME-Untersuchungen durchgeführt. Untersucht wurde die bei 300°C gewachsene 60 nm dicke Heuslerschicht sowie die bei 320°C Substrattemperatur aufgedampfte 177 nm dicke Ni_2MnIn -Probe. Gemessen wurde bei Temperaturen unterhalb der Curietemperatur T_C der Heuslerschichten. Bei Messungen oberhalb von T_C lieferten die Nicht-Diagonalelemente den Wert null. Der Imaginärteil ε_{1xy} und der Realteil ε_{2xy} des dielektrischen Tensors beider untersuchten Heuslerschichten, gemessen bei 100 K, ist in Abbildung 4.9 dargestellt. Die integralen ε_{1xy} -Werte der beiden Spektren wurden durch Aufsummieren von der niedrigsten Energie bei 1,57 eV bis zum Schnittpunkt des jeweiligen Spektrums mit der x-Achse bestimmt. Die oberen Integrationsgrenzen der 60 nm dicken und der 177 nm dicken Heuslerschicht liegen bei 2,58 eV und bei 2,81 eV. Innerhalb der Grenzen des gewählten Integrationsbereiches tragen überwiegend Nickel-Zustände zu den in optischen Übergängen beobachteten spinpolarisierten Bändern bei (siehe Abschnitt 3.3.2). Die ermittelten integralen ε_{1xy} -Werte betragen 8,0 für die 300°C -Probe und 9,8 für die 320°C -Probe. Die bei 320°C gewachsene polykristalline $\text{Ni}_2\text{MnIn}/\text{Au}/\text{Si}$ -Probe weist somit in SGME-Untersuchungen im relativen Vergleich ein stärker spinpolarisiertes Signal auf.

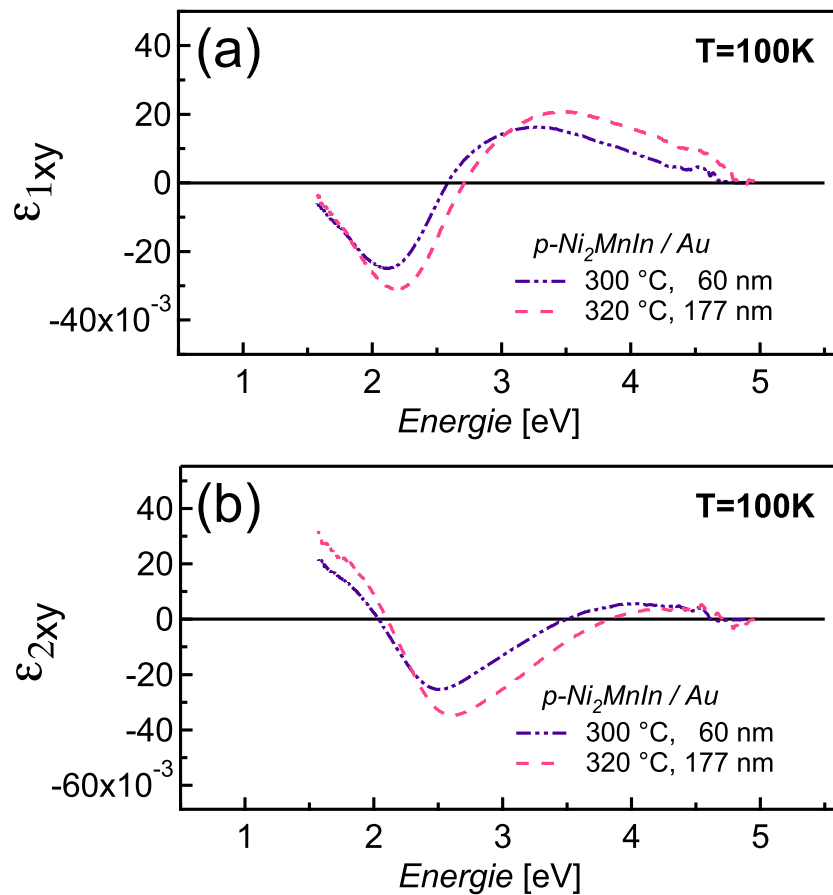


Abbildung 4.9: Nicht-Diagonalelemente des dielektrischen Tensors zweier Ni_2MnIn -Schichten auf $p\text{-Au}/\text{Si}(001)$, hergestellt bei einer Wachstumstemperatur von $300\text{ }^\circ\text{C}$ und $320\text{ }^\circ\text{C}$. Die Schichtdicken betragen 60 nm und 177 nm. (a) Der Imaginärteil ϵ_{1xy} und (b) der Realteil ϵ_{2xy} wurden mit SGME-Messungen bei 100 K bestimmt.

4.3 Ni₂MnIn auf InAs(001)-Substraten

4.3.1 Probenmorphologie

Rasterkraftmikroskopie

In Abbildung 4.10(a) sind die Ergebnisse der AFM-Untersuchungen an nominell 60 nm dicken Heuslerschichten dargestellt. Gemessen wurden sechs Heuslerproben, welche bei 80 °C, 250 °C, 300 °C, 320 °C, 340 °C und 360 °C Substrattemperatur aufgedampft wurden. Ein starker Einfluss der jeweiligen Temperatur auf die Oberflächenmorphologie ist deutlich erkennbar. In Abbildung 4.10(b) ist die Peak-to-Peak Amplitude der Oberflächenrauigkeit in Abhängigkeit von der Wachstumstemperatur wiedergegeben. In dieser Auftragung können zwei temperaturabhängige Bereiche

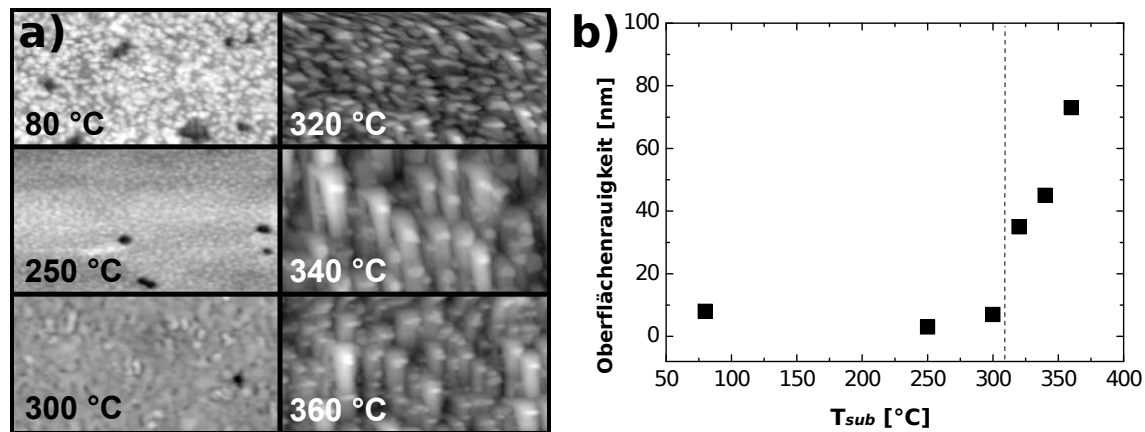


Abbildung 4.10: (a) AFM-Aufnahmen der Probenoberfläche nominell 60 nm dicker Heuslerschichten, gewachsen auf InAs(001) bei der jeweils angegebenen Substrattemperatur. (b) Peak-to-Peak Amplitude der Oberflächenrauigkeit in Abhängigkeit von der Wachstumstemperatur (Bildausschnitt entspricht $1 \times 3 \mu\text{m}^2$). Die gestrichelte Linie trennt zwei temperaturabhängige Regime: $T_{Sub} = 80 - 300 \text{ °C}$ mit geringer Oberflächenrauigkeit und $T_{Sub} = 320 - 360 \text{ °C}$ mit stark ansteigender Oberflächenrauigkeit.

unterschieden werden: ein Bereich von 80 °C bis 300 °C mit einer nahezu konstanten Oberflächenrauigkeit von weniger als 10 nm und ein Bereich oberhalb 300 °C mit einer Oberflächenrauigkeit von deutlich über 10 nm. Die zwischen 80 °C und 300 °C gewachsenen Heuslerschichten zeigen zudem in der lateralen Dimension Löcher mit einem Durchmesser von etwa 50 nm. Solche Spuren sind typische Indikatoren für die Existenz von Fadenversetzungen¹[Jah98]. Es wird eine Abnahme der Spuren mit Anstieg der Wachstumstemperatur auf 300 °C beobachtet. Dies deutet auf eine deutlich geringere Anzahl von Versetzungen innerhalb der bei 300 °C gewachsenen Heuslerschicht hin im Vergleich zu der bei 80 °C hergestellten Probe. Bei Wachstumstemperaturen oberhalb 300 °C übersteigt die gemessene Peak-to-Peak Amplitude der

¹engl: threading dislocation

Oberflächenrauigkeit die nominelle Schichtdicke. Die Probenserien mit 20 nm und 100 nm Schichtdicke zeigen qualitativ ähnliche Ergebnisse.

Optische Reflexions-Spektroskopie

Für Untersuchungen mittels ORS wurden Heuslerschichten mit einer nominellen Dicke von 20 nm ausgewählt. Die Eindringtiefe der einfallenden Photonen beträgt bei dem von uns untersuchten Materialsystem etwa 100 nm. Diese Untersuchungsmethode zeigt daher eine hohe Empfindlichkeit für die Qualität von Ober- und Grenzflächen und somit auch für die Grenzfläche zwischen der Ni_2MnIn -Heuslerschicht und dem InAs-Substrat. In Abbildung 4.11 ist je ein Spektrum für die zwischen

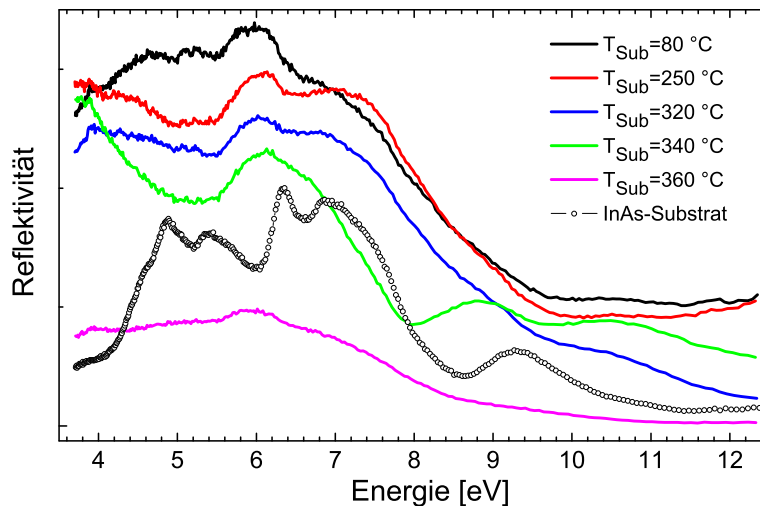


Abbildung 4.11: Optische Reflexionsspektren nominell 20 nm dicker Heuslerschichten, gewachsen auf $\text{InAs}(001)$ bei der jeweils angegebenen Substrattemperatur. Eine Referenzmessung eines unbedampften einkristallinen $\text{InAs}(001)$ -Wafers ist ebenfalls dargestellt.

80 °C und 360 °C gewachsenen Schichten dargestellt. Als Referenz wurde auch ein Spektrum an einem Stück des unbedampften $\text{InAs}(001)$ -Wafers vermessen. Dieses ist in der Abbildung ebenfalls gezeigt. Messungen an Proben mit einer Wachstumstemperatur bis zu 320 °C ergeben qualitativ ähnliche Reflexionsspektren, welche eine bestimmte Anzahl spezifischer Minima und Maxima aufweisen. Im Vergleich hierzu zeigen Spektren von Proben, welche bei 340 °C und 360 °C Substrattemperatur gewachsen wurden, starke qualitative Abweichungen. Das Spektrum der 340 °C-Probe weist deutlich breitere Maxima auf. Die bei 360 °C gewachsene Probe hingegen zeigt nur noch eine einzelne, breite Reflexionskurve ohne jegliche Substruktur. Die Signalintensität ist bei dieser Probe deutlich reduziert. Die Tendenz zur starken Verbreiterung des Reflexionssignals deutet auf eine morphologische Verschlechterung der Grenzflächenqualität, dass heißt auch von der Schicht/Substrat-Grenzfläche für Probenwachstum oberhalb von 320 °C hin.

Röntgenreflektometrie

Die Morphologie von achtzehn auf InAs-Substrat präparierten Heuslerschichten wurde mittels Röntgenreflektometrie untersucht. In Abbildung 4.12 sind die XRR-Spektren aller nominal 20 nm dicken, bei verschiedenen Substrattemperaturen gewachsenen Heuslerproben als schwarze Kurven dargestellt. Zwei Strukturmodelle wurden für die Auswertung der XRR-Daten mittels Anpassungsrechnungen verwendet: zuerst wurde ein *Ein-Lagen* Strukturmodell verwendet, welches das InAs-Substrat, die Heuslerschicht (Lage 1) sowie eine Oxidschicht auf der Probenoberfläche berücksichtigt. Die Qualität des Modells wurde bewertet mit der quadratischen Abweichung χ^2 zwischen experimentellen Daten und berechneten Werten. Für XRR-

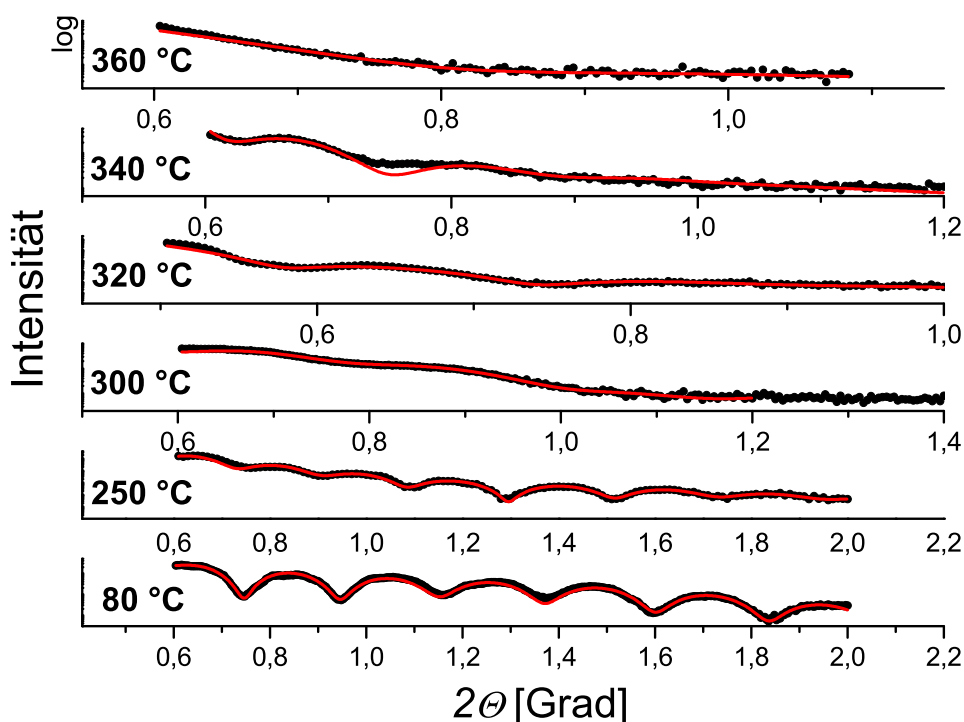


Abbildung 4.12: Gemessene (schwarz) und simulierte (rot) XRR-Spektren nominell 20 nm dicker Heuslerschichten, bei der jeweils angegebenen Substrattemperatur auf InAs(001) gewachsen.

Daten, welche sich nicht in den Grenzen dieses ersten Modells auswerten ließen und in zu großen Fehlerquadraten ($\chi^2 > 0,1$) resultierten, wurde statt dessen ein *Zwei-Lagen* Strukturmodell verwendet. Im *Zwei-Lagen* Modell wurde zwischen Substrat und Heuslerschicht eine zusätzliche Schicht (Lage 2) eingefügt, welche die Reaktionszone einer durchmischten Zwischenschicht repräsentiert (Oxid/Lage 1/Lage 2/InAs). Die berechneten XRR-Spektren, welche die beste Anpassung an die Messdaten liefern, sind in Abbildung 4.12 als rote Kurven dargestellt.

Bei Proben bis zu einer Wachstumstemperatur von 300 °C liefern nur Berechnungen basierend auf dem *Zwei-Lagen* Modell Ergebnisse, welche gut mit den gemessenen XRR-Spektren übereinstimmen. Für Wachstumstemperaturen von 320 °C und

340 °C liefert das *Ein-Lagen* Modell die beste Übereinstimmung mit den Messdaten. Das Spektrum der bei 360 °C gewachsenen Probe unterscheidet sich von anderen, indem es kein einziges Intensitätsmaximum mehr zeigt und somit hinsichtlich einer Schichtstruktur nicht rechnerisch ausgewertet werden kann. Die Modellparameter für die untersuchten Proben (mittlere Schichtdicke, mittlere quadratische Grenzflächenrauigkeit und Realdekrement des Refraktionsindex) sind in Tabelle 4.2 zusammengefasst.

T_{Substrat} [°C]		80	250	300	320	340
Oxid	d	3 nm				
	σ	1 nm				
	δ	5 E - 7				
Lage 1	d	22 nm	27 nm	10 nm	×	×
	σ	0,9 nm	1,2 nm	1,2 nm	×	×
	δ	6 E - 6	6 E - 6	7 E - 6	×	×
Lage 2	d	2 nm	4 nm	18 nm	28 nm	36 nm
	σ	0,6 nm	1 nm	0,8 nm	6 nm	6 nm
	δ	8 E - 6	7 E - 6	8 E - 6	9 E - 6	8 E - 6
Substrat	σ	1 nm	1,7 nm	2,1 nm	4,7 nm	4,2 nm

Tabelle 4.2: Modellparameter der rechnerischen Anpassung von XRR-Spektren nominell 20 nm dicker Heuslerschichten auf InAs, hergestellt bei verschiedenen Substrattemperaturen. d : mittlere Schichtdicke, σ : mittlere quadratische Grenzflächenrauigkeit, δ : Realdekrement des Refraktionsindex, ×: Keine Berücksichtigung der Schicht im verwendeten Modell. Die Parameter der Oxidschicht sind für alle Wachstumstemperaturen gleich.

Die XRR Ergebnisse der 60 nm und 100 nm dicken Heuslerschichten zeigen eine quantitativ ähnliche Entwicklung für die Schichtdicke der Reaktionszone in Abhängigkeit von der Wachstumstemperatur der Proben. In Abbildung 4.13 ist für nominell 20 nm dicke Heuslerproben die Schichtdicke der Reaktionszone gegen die Wachstumstemperatur aufgetragen. Aus der temperaturabhängigen Zunahme der Reaktionszonenschichtdicke bei Substrattemperaturen von 250 °C bis 320 °C kann für die Volumendiffusion eine Aktivierungsenergie von $0,7 \pm 0,3$ eV abgeschätzt werden. Dieser Wert der Aktivierungsenergie ist typisch für eine Diffusion von Atomen in Zwischengitterplätzen.

4.3.2 Strukturelle Eigenschaften

Transmissions-Elektronenmikroskopie

Experimente mit Transmissions-Elektronenmikroskopie wurden durchgeführt, um Informationen über die Grenzflächenmorphologie, Zusammensetzung der durchmisch-

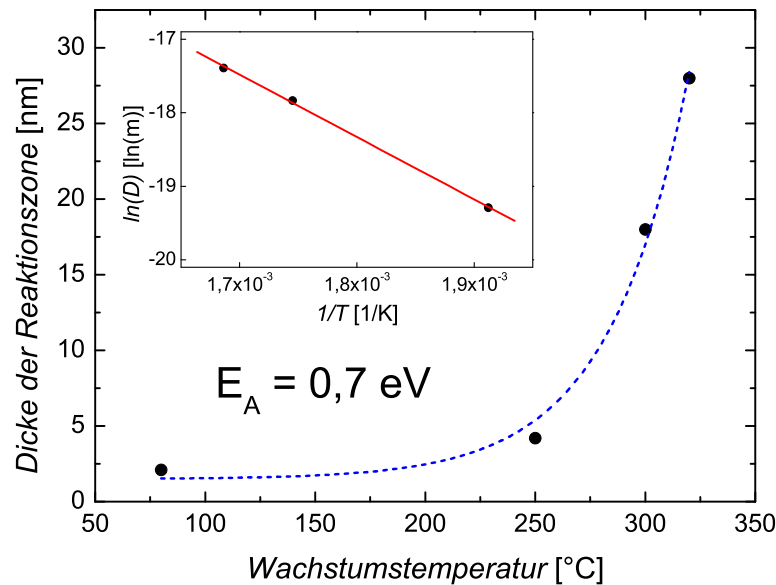


Abbildung 4.13: Bestimmung der Aktivierungsenergie aus der Auftragung der Reaktionszonenschichtdicke als Funktion der Wachstumstemperatur. Aus der Steigung der Ausgleichsgeraden in der Arrheniusdarstellung (oben links) kann eine Aktivierungsenergie von $0,7 \pm 0,3$ eV ermittelt werden.

ten Zwischenschicht, die kristallographische Orientierung der aufgedampften Heuslerschichten und deren kristallographische Phase zu erhalten.

Grenzfläche und Orientierung Schicht/Substrat

Für die Charakterisierung der Grenzfläche zwischen Substrat und Schicht wurden Proben mit einer nominellen Dicke von 60 nm ausgewählt, welche bei 80 °C und 300 °C Substrattemperatur hergestellt worden waren. Hiermit sollten die Eigenschaften von Heuslerschicht und InAs-Substrat für Proben bei der tiefsten Wachstumstemperatur und direkt vor dem Einsetzen der starken morphologischen Veränderungen untersucht werden. Abbildungen beider im Querschnitt präparierten Proben wurden im Hellfeld und bei Untersuchungen mittels Feinbereichsbeugung (SAD) aufgenommen. Die lokale Stöchiometrie der 300 °C-Probe wurde mit energiedispersiver Röntgenfluoreszenz-Spektroskopie (EDX) bestimmt.

In Abbildung 4.14(a) ist eine TEM-Hellfeldaufnahme der Querschnittspräparation der bei 80 °C gewachsenen Probe gezeigt. Der obere dunkle Bereich ist die aufgedampfte Heuslerschicht, welche deutlich von dem helleren darunter liegenden InAs-Substrat abgegrenzt werden kann. Ein inhomogener Kontrast kann innerhalb der Heuslerschicht beobachtet werden. Die Kontrastvariationen können auf strukturelle Defekte wie Versetzungen, Korngrenzen oder ähnliches zurückgeführt werden. Diese Defekte beginnen an der Schicht/Substrat-Grenzfläche und setzen sich durch die gesamte Schicht fort. Ihre hohe Anzahl deutet darauf hin, dass die Probe stark verspannt ist. Dennoch erkennt man eine glatte Schicht/Substrat-Grenzfläche. Die

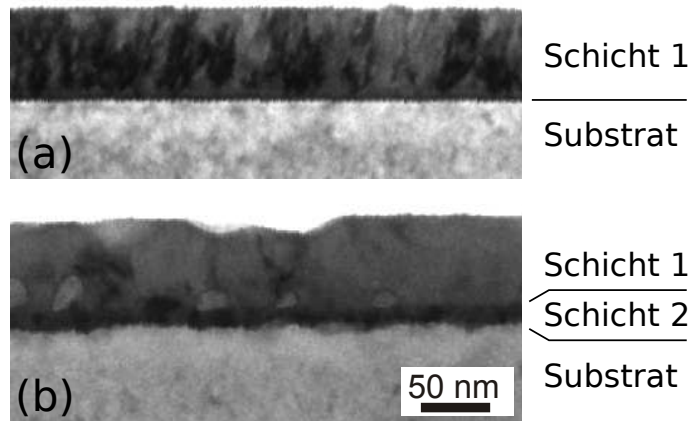


Abbildung 4.14: TEM-Hellfeldaufnahmen von zwei Querschnittspräparationen nominell 60 nm dicker Ni_2MnIn -Schichten, gewachsen auf $\text{InAs}(001)$ bei (a) 80°C und (b) 300°C . Erkennbar sind die stöchiometrische Heuslerlegierung (Schicht 1), die Reaktionszone bei der 300°C -Probe (Schicht 2) und der Bereich des InAs -Substrates. Die Stöchiometrie der Schichten 1 und 2 wurde an der 300°C -Probe mittels ortsaufgelöster Röntgenfluoreszenz-Spektroskopie bestimmt.

bei einer Substrattemperatur von 300°C gewachsene Probe zeigt eine qualitativ andere Morphologie. Zwischen der deponierten Heuslerschicht und dem InAs -Substrat hat sich eine zusätzliche Schicht gebildet, sichtbar in Abbildung 4.14(b) als dunkle Linie. Diese Zwischenschicht kann als durchmischte Reaktionszone identifiziert werden, welche eine Dicke von etwa 15 nm aufweist. Die Grenzfläche zwischen Schicht und Substrat hat eine deutlich höhere Rauigkeit als die der 80°C -Probe. Innerhalb der instrumentellen Auflösungsgrenze stimmt die Dicke der durchmischten Zwischenschicht gut überein mit den errechneten Werten für das XRR-Spektrum (300°C -Probe, siehe Tabelle 4.2). Auffallend ist, dass die bei 300°C gewachsene Ni_2MnIn -Heuslerschicht eine wesentlich geringere Defektdichte aufweist als die 80°C -Probe. Die abnehmende Dichte struktureller Defekte mit steigender Wachstumstemperatur stimmt gut mit den Ergebnissen aus den AFM-Messungen an 60 nm dicken Heuslerschichten überein (siehe Kapitel 4.3.1).

Die Zusammensetzung der deponierten Heuslerschicht und der Zwischenschicht wurde bei der 300°C -Probe mittels ortsaufgelöster Röntgenfluoreszenz-Spektroskopie bestimmt. Die EDX-Daten bestätigen, dass die obere Schicht die nominelle Ni_2MnIn -Stöchiometrie aufweist. Die Zwischenschicht der 300°C -Probe besteht aus einer Ni_2MnIn -Heuslerlegierung mit einer hohen Konzentration von zusätzlichem Arsen. Das Konzentrationsverhältnis von Arsen zu Indium beträgt $As : In \approx 2 : 1$. Dies deutet klar darauf hin, dass die durchmischte Zwischenschicht durch Arsendiffusion vom Substrat in die wachsende Heusler-Schicht entsteht. Die genaue Bestimmung des Konzentrationsgradienten von Arsen innerhalb der Zwischenschicht war nicht mit hoher Auflösung möglich, da die effektive lokale Auflösung des EDX-Aufbaus mit 15–20 nm in der gleichen Größenordnung lag wie die Schichtdicke der untersuchten Schicht.

TEM-SAD-Beugungsbilder der bei 300 °C gewachsenen 60 nm-Heuslerprobe sind in Abbildung 4.15(a-d) dargestellt. Die Querschnittspräparation erfolgte senkrecht zur der in Abbildung 4.15(e) mit 0° gekennzeichneten Projektionsrichtung. Die Abbildung 4.15(a) wurde im Bereich des InAs-Substrates aufgenommen und zeigt das typische Beugungsmuster einer [110]-Zonenachse. Das in Abbildung 4.15(b) dargestellte Feinbeugungsbild aus einem Bereich nahe der Probenoberfläche zeigt hingegen für die Heuslerschicht eindeutig eine [100]-Orientierung der Kristallstruktur bei gleichbleibender Richtung des einfallenden Elektronenstrahls. In Abbildung 4.15(c) ist das Beugungsbild der Schicht/Substrat-Grenzfläche dargestellt. Das beobachtete Beugungsbild besteht aus einer Überlagerung von Heuslerschicht- und InAs-Substratreflex. Die kristallographische $[1\bar{1}0]$ -Richtung des InAs-Substrates ist in Abbildung 4.15(c) als rote diagonale Linie dargestellt. Die Reflexe entlang dieser Linie bleiben unverändert, wenn der Elektronenstrahl aus dem Substrat in den Bereich der Heuslerschicht bewegt wird. Dies zeigt, dass die Bragg-Reflexe entlang der roten Linie in beiden kristallographischen Basissystemen durch $(1\bar{1}0)$ -Ebenen hervorgerufen werden. Sowohl für das Basissystem des InAs-Substrates als auch für das Basissystem der Heuslerschicht ist die Orientierung der $(1\bar{1}0)$ -Ebenen identisch. Diese besondere kristallographische Beziehung von Heuslerschicht zum InAs-Substrat wird in Abbildung 4.15(e) verdeutlicht: Die relative Orientierung der Heusler-Einheitszelle und der InAs(001)-Einheitszelle im Ortsraum ist am Beispiel von nicht verspannten Volumenmaterialien dargestellt. Die gemeinsame $(1\bar{1}0)$ -Ebene ist mit einem rotgepunkteten Rechteck hervorgehoben. In Abbildung 4.15(d) ist der rotumrandete Bereich aus Abbildung 4.15(c) vergrößert dargestellt. Die Reflexe der kristallinen Schicht und des Substratgitters sind in dieser Darstellung jeweils mit Verbindungslinien gekennzeichnet. Reflexe, deren Ursprung im Substrat liegt, sind mit orangenen Strichlinien hervorgehoben. Reflexe der einkristallinen Schicht sind durch blaue Strichlinien verbunden. Die wichtigsten Film- und Substratreflexe wurden entsprechend ihrer jeweiligen Zonenachse indiziert. Die Projektion der Querschnittspräparation der 300 °C-Probe weist für das Substrat eine [110]-Zonenachse und für die Schicht eine [100]-Zonenachse auf. Bestehende Auslöschungsregeln aufgrund der Orientierung der Zonen wurden bei der Indizierung berücksichtigt. Der in Abbildung 4.15(d) durch eine gepunktete Ellipse definierte Bereich umschließt die Reflexe entlang der [001]-Richtung des Substratkristalls. Diese Reflexe, welche sowohl vom Schicht- als auch vom Substratkristall herrühren, können auch mittels XRD-Messungen in co-planarer Standardgeometrie untersucht werden. Solche XRD-Untersuchungen werden in Abschnitt 4.3.2 näher beschrieben. Hierbei stellen die Ergebnisse der TEM-Experimente den Ausgangspunkt für die Interpretation der korrespondierenden XRD-Daten dar.

Kristallographische Phase der Heuslerschicht

Um die kristallographische Phase von Heuslerschichten mit verschiedener Schichtdicke zu bestimmen, wurden eine 20 nm- und eine 60 nm-Heuslerschicht, beide bei 300 °C auf InAs gewachsen, mittels Feinbereichs-Elektronenbeugung untersucht. Eine perfekt geordnete stöchiometrische Ni₂MnIn-Legierung besitzt ein kubisches Git-

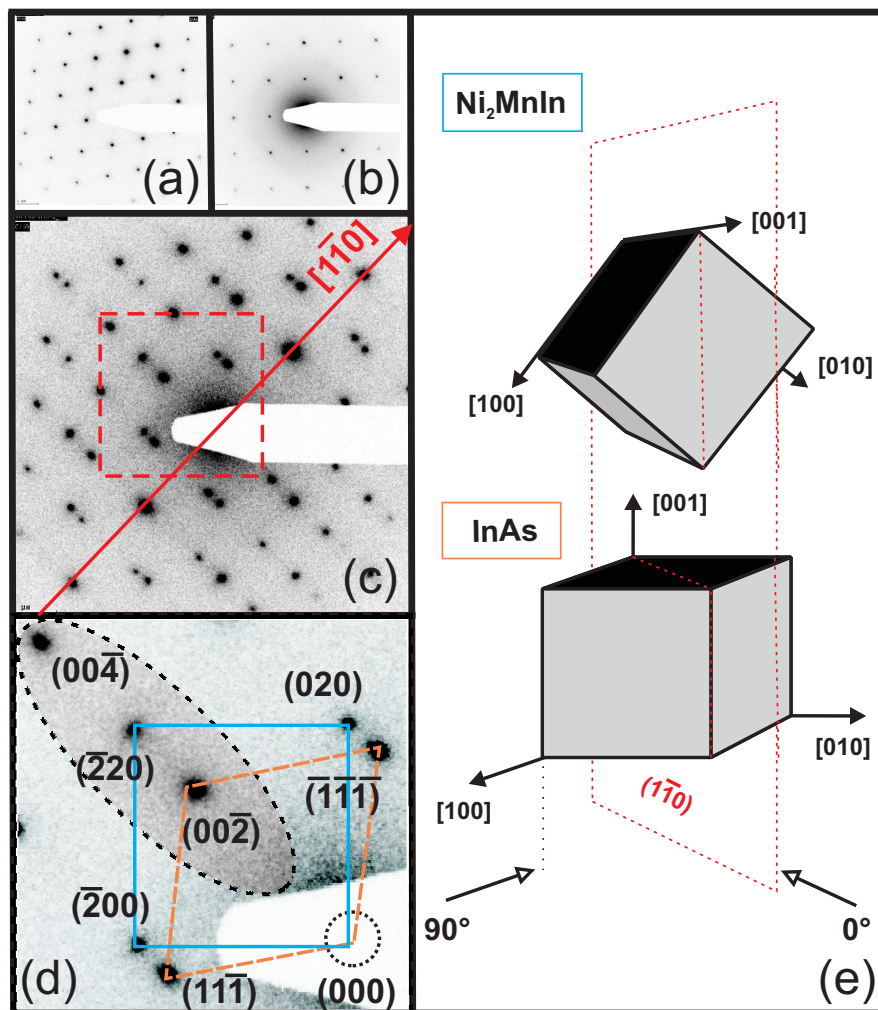


Abbildung 4.15: TEM-Beugungsexperimente an der bei 300 °C auf $\text{InAs}(001)$ gewachsenen, 60 nm dicken Heuslerschicht, welche für eine Projektion entlang 0° als Querschnittsprobe präpariert wurde. Die SAD-Beugungsbilder wurden jeweils aufgenommen im Bereich (a) des InAs -Substrates, (b) der Heuslerschicht und (c) der Schicht/Substrat-Grenzfläche. Die diagonale rote Linie in (c) kennzeichnet Reflexe entlang der $[1\bar{1}0]$ -Richtung, welche durch $(1\bar{1}0)$ -Ebenen erzeugt werden. Diese korrespondieren zu den jeweiligen $(1\bar{1}0)$ -Ebenen in den Basissystemen der Ni_2MnIn -Schicht und des InAs -Substrates. Der in (c) rot gestrichelte Bereich ist in (d) vergrößert dargestellt. Reflexe, deren Ursprung im Substrat liegt, sind in (d) mit orangenen Strichlinien, Reflexe der Schicht durch blaue Strichlinien verbunden. Film- und Substratreflexe wurden entsprechend ihrer jeweiligen Zonenachse indiziert (Substrat mit $[110]$ - und Schicht mit $[100]$ -Zonenachse). Die Position des Primärstrahls unterhalb des Strahlfängers ist mit einem gestrichelten Kreis gekennzeichnet. Der durch die gepunktete Ellipse definierte Bereich in (d) umschließt die Reflexe entlang der $[001]$ -Richtung des Substratkristalls. In (e) ist die relative Orientierung der Heusler-Einheitszelle und der $\text{InAs}(001)$ -Einheitszelle im Ortsraum am Beispiel von nicht verspannten Volumenmaterialien dargestellt. Die gemeinsame $(1\bar{1}0)$ -Ebene ist mit einem rot gepunkteten Rechteck hervorgehoben.

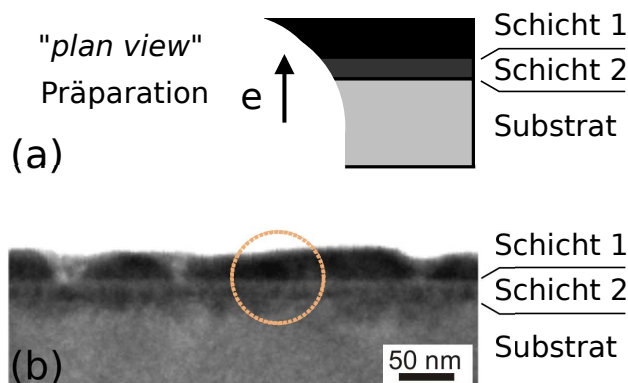


Abbildung 4.16: (a) Schematische Darstellung der *plan view* 60 nm-Probe. Die Heuslerschicht wird parallel zu ihrer Wachstumsrichtung durchleuchtet. (b) TEM-Hellfeldaufnahme einer Querschnittspräparation mit nominell 20 nm dicker Ni_2MnIn -Schicht, gewachsen auf $\text{InAs}(001)$ bei 300°C . Erkennbar ist die Heuslerlegierung (Schicht 1), eine Reaktionszone (Schicht 2) und der Bereich des InAs -Substrates. Der Kreis verdeutlicht die Größe des bei der Feinbeugung durchstrahlten Bereiches.

ter der Symmetrie $L2_1$. Lediglich bei Heuslerlegierungen in der $L2_1$ -Phase treten aufgrund der vieratomigen Basis mit drei *kfz*-Untergittern Überstrukturefflexe vom Typ $\langle 111 \rangle$ und $\langle 311 \rangle$ auf. Bei perfekter statistischer Verteilung von Indium- und Manganatomen wird die Symmetrie der Einheitszelle verringert, was in einer Heusler-Einheitszelle des CsCl -Typ mit halbiertes Gitterkonstante resultiert. In dieser reduzierten $B2$ -Symmetrie einer *krz*-Elementarzelle mit zweiatomiger Basis treten aufgrund der Auslöschungsregeln keine Reflexe mit ungerader Summe vom Typ $\langle 111 \rangle$ und $\langle 311 \rangle$ auf. Zur Unterscheidung der $L2_1$ - von der $B2$ -Phase ist es notwendig, für die Abbildung des reziproken Raumes eine Projektion zu wählen, welche das Beobachten dieser Reflexe mit ungeraden Millerschen Indizes ermöglicht. Hierfür ist eine Präparation entlang einer $[110]$ - oder $[1\bar{1}0]$ -Zonenachse notwendig. In Abbildung 4.17(a) sind diese kristallographisch gleichwertigen Richtungen für eine Heusler-Einheitszelle dargestellt. Beide resultierenden Beugungsbilder können direkt miteinander verglichen werden. Unter Berücksichtigung der im vorigen Abschnitt bestimmten Orientierung der Heuslerschicht auf dem InAs -Substrat erfolgte für die 60 nm-Probe eine *plan view* Präparation. Hierbei wird die Heuslerschicht, wie in Abbildung 4.16(a) gezeigt, in Wachstumsrichtung durchleuchtet. Die Abbildung des reziproken Raumes erfolgt entlang einer (110) -Ebene des Heuslerkristalls, gekennzeichnet durch Richtung \textcircled{A} in Abbildung 4.17(a). Das Beugungsmuster der Schicht ist in Abbildung 4.17(b) dargestellt. Die Projektion entspricht der eines kubischen Heuslerkristalls. Alle beobachteten Reflexe wurden entsprechend der $[110]$ -Zonenachse der Heuslerschicht indiziert. Reflexe vom Typ $\langle 111 \rangle$ und $\langle 311 \rangle$ können eindeutig nachgewiesen werden. Hieraus folgt, dass die 60 nm-Heuslerschicht Ni_2MnIn in $L2_1$ -Phase enthält.

Ein Querschnitt der 20 nm-Heuslerprobe wurde entlang der gemeinsamen $(1\bar{1}0)$ -Ebene von Schicht und Substrat präpariert. Die Beugungsexperimente wurden unter

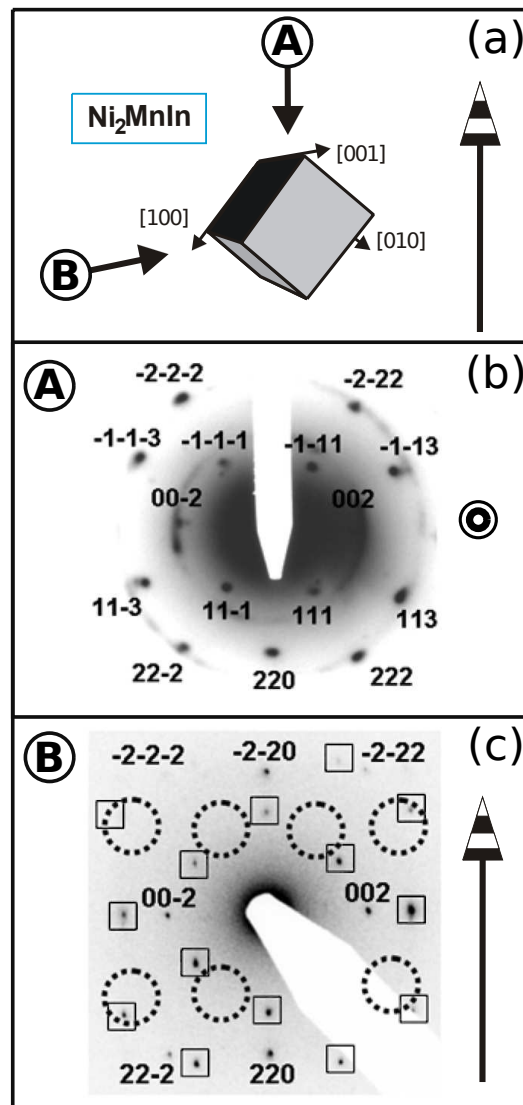


Abbildung 4.17: (a) Ausrichtung der Ni_2MnIn -Einheitszelle zur Probenoberfläche basierend auf der relativen Orientierung zum $\text{InAs}(001)$ -Substrat. Die Buchstaben (A) und (B) markieren die jeweilige Projektion der mittels Feinbeugung untersuchten 60 nm und 20 nm dicken Heuslerschichten. Der große Pfeil am rechten Rand aller drei Ansichten gibt jeweils die kristallographische Orientierung der (001)-Achse des InAs -Substratkristalls an. (b) Feinbeugungsbild der 60 nm-Heuslerschicht, aufgenommen in *plan view* Geometrie (Projektion A). Alle sichtbaren Beugungsreflexe sind beschriftet. (c) Feinbeugungsbild der 20 nm-Heuslerschicht, aufgenommen in *cross-section* Geometrie (Projektion B). Die Substratreflexe mit [110]-Zonenachse sind mit Rechtecken gekennzeichnet. Alle sichtbaren Beugungsreflexe der Heuslerschicht sind beschriftet. Die theoretischen Positionen der ausgelöschten $\langle 111 \rangle$ - und $\langle 311 \rangle$ -Reflexe sind mit großen gepunkteten Kreisen markiert.

Verwendung einer 20 nm Kontrastblende durchgeführt. Eine Hellfeldaufnahme der 20 nm-Querschnittsprobe ist in Abbildung 4.16(b) wiedergegeben. Der durchstrahlte Bereich ist mit einem Kreis hervorgehoben. Wie auch bei dem in Abbildung 4.14(b) gezeigten 60 nm-Querschnitt ist in der Hellfeldabbildung zwischen deponierter Heuslerschicht und Substrat eine Reaktionszone erkennbar. Die Projektionsrichtung für Schicht und Substrat ist in Abbildung 4.15(e) mit einem 90°-Pfeil gekennzeichnet und entspricht Richtung \mathbb{B} in Abbildung 4.17(a). In Abbildung 4.17(c) wurden alle erkennbaren Reflexe des Heuslerkristalls indiziert und entsprechend gekennzeichnet. Aufgrund der 20 nm-Kontrastblende, welche im Bereich der Schichtdicke liegt, treten im Beugungsbild zusätzliche Reflexe auf, welche durch das unterliegende InAs-Substrat hervorgerufen werden. Im Beugungsbild der 20 nm-Probe können keine Intensitäten bestimmt werden, welche sich Reflexen vom Typ $\langle 111 \rangle$ oder $\langle 311 \rangle$ zuordnen lassen. Im Gegensatz zur 60 nm dicken Heuslerschicht ist die 20 nm-Heuslerprobe ausschließlich in der B2-Phase kristallisiert.

Röntgendiffraktometrie

Die $\text{Ni}_2\text{MnIn}/\text{InAs}$ -Proben wurden am Deutschen Elektronen-Synchrotron in Hamburg mit Röntgenbeugung untersucht. Jede Probe wurde nach Einbau im Diffraktometer exakt auf das Intensitätsmaximum des (004)-Substratreflexes ausgerichtet um eine genaue Referenz der gemessenen Reflexpositionen zu gewährleisten. Übersichtsspektren in $\theta/2\theta$ -Geometrie wurden für alle $\text{Ni}_2\text{MnIn}/\text{InAs}$ -Proben im Bereich zwischen dem (002)- und (004)-Reflex des InAs-Substrates aufgenommen. Die Beugungsspektren der 80 °C-Probenserie zeigen ausschließlich Einkristallreflexe des (001)-orientierten InAs-Substrates. Reflexe, welche ihren Ursprung in der Heuslerschicht haben, konnten nicht beobachtet werden. Das Ausbleiben dieser Signale lässt sich mit der hohen Defektdichte der bei 80 °C gewachsenen Heuslerschichten erklären, welche bei den TEM- und AFM-Untersuchungen in den Abschnitten 4.3.1 und 4.3.2 beobachtet wurde.

Heuslerfilme, welche oberhalb von 80 °C gewachsen wurden, zeigen in ihren Spektren ein zusätzliches schwaches Beugungssignal. In Abbildung 4.18(a) ist eine typische Messung für Proben mit einer Wachstumstemperatur zwischen 300 °C und 360 °C dargestellt. Zwischen $\theta = 14^\circ$ und $\theta = 15^\circ$ ist ein zusätzlicher Beugungsreflex zu erkennen. Ein Vergleich der Position dieses Schichtreflexes zwischen den InAs-Substratreflexen zweiter und vierter Ordnung mit der relativen Lage des in den TEM-Untersuchungen beobachteten $(\bar{2}20)$ -Feinbeugungsreflexes zwischen dem (002)- und (004)-Substratfeinbeugungsreflex ergibt, dass in beiden Beugungsexperimenten das Verhältnis des Substratreflexes zu dem Schichtreflex des rotierten Heuslerkristalls identisch ist. Der bei Röntgenmessungen in koplanarer Geometrie beobachtete Schichtreflex zwischen $\theta = 14^\circ$ und $\theta = 15^\circ$ lässt sich somit als $(\bar{2}20)$ - Ni_2MnIn -Reflex identifizieren. Er ist identisch zum in Abbildung 4.15(d) beobachteten $(\bar{2}20)$ -Reflex, innerhalb der gestrichelten Ellipse des Feinbeugungsbildes der 300 °C-Querschnittspräparation. Die Intensität dieses zusätzlichen Maximums ist in allen aufgenommenen Beugungsspektren sehr gering und liegt bei einigen Proben

in der Größenordnung des Hintergrundrauschens. Die Ursache hierfür ist wahrscheinlich in einer geringen Missorientierung der kristallographische Achsen von Schicht und Substratkristall begründet. Hierdurch stimmt die Beugungsbedingung der Schicht nicht exakt mit der des Substratkristalls überein.

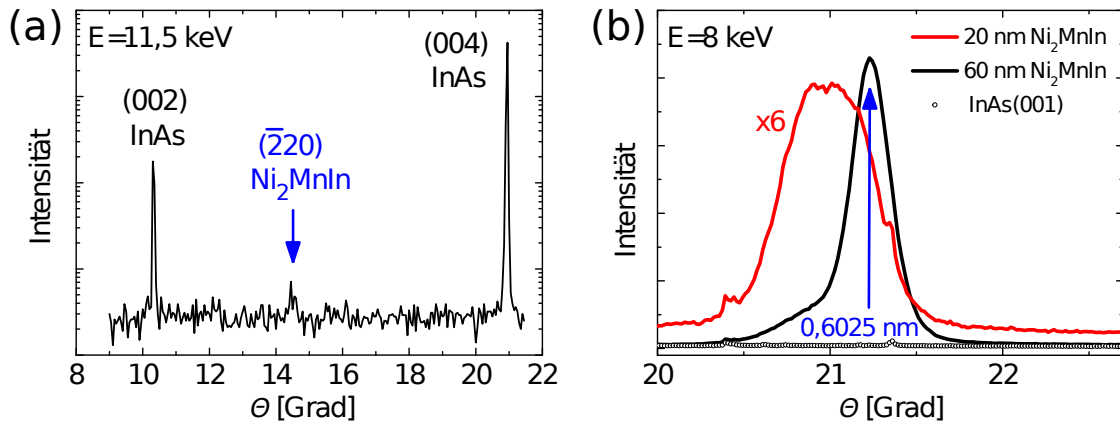


Abbildung 4.18: (a) XRD-Spektrum einer bei 340°C gewachsenen $\text{Ni}_2\text{MnIn}/\text{InAs}$ -Probe, aufgenommen in koplanarer $\theta/2\theta$ -Geometrie unter Verwendung von Synchrotronstrahlung ($\lambda = 0,10765 \text{ nm}$). Das Beugungsspektrum ist typisch für Proben mit einer Wachstumstemperatur zwischen 300°C und 360°C . (b) XRD-Spektren zweier bei 300°C auf InAs gewachsener Ni_2MnIn -Schichten, aufgenommen unter Verwendung eines Labor-Diffraktometers mit Probenrotation. Gemessen wurde mit $\text{Cu}_{K\alpha}$ -Strahlung. Die nominellen Schichtdicken sind 60 nm und 20 nm , das Signal der dünneren Schicht ist um den Faktor 6 vergrößert dargestellt. Unbedampftes $\text{InAs}(001)$ -Substrat wurde als Referenz vermessen. Die Position des $\bar{2}20$ -Reflexmaximums der 60 nm -Schicht ist mit einem Pfeil gekennzeichnet. Aus diesem wurde eine Gitterkonstante von $a = 0,6025 \text{ nm}$ für eine Ni_2MnIn -Heuslerlegierung in Form von kubischem Volumenmaterial errechnet.

Um den Einfluss der Missorientierung zu minimieren, wurden weitere Messungen mit einem Standard-Labor-Diffraktometer durchgeführt, welches eine Rotation der Probe um die eigene Achse ermöglicht. Das Signal- zu Rauschverhältnis wird hierbei verbessert, da ein Beugungsreflex von mehreren gleichartigen Netzebenen erzeugt wird. Für die Messungen wurde Kupfer- K_α -Strahlung verwendet. In den Beugungsexperimenten mit Probenrotation treten die Signale der Heuslerschicht deutlich hervor. In Abbildung 4.18(b) sind die Spektren einer 20 nm dicken und einer 60 nm dicken Heuslerprobe dargestellt, welche bei einer Temperatur von 300°C gewachsen wurden. Zum Vergleich ist auch das Spektrum eines nicht bedampften InAs -Substrates als Referenz gezeigt. Aus der Lage der beiden $(\bar{2}20)$ -Signalmaxima errechnet sich für die 20 nm und 60 nm dicken Heuslerschichten ein Netzebenenabstand von $0,215 \pm 0,001 \text{ nm}$ und $0,213 \pm 0,001 \text{ nm}$. Unter der Annahme, dass dickere Schichten relaxieren und der Heuslerkristall dann eine unverspannte kubische Symmetrie aufweist, kann aus dem Netzebenenabstand der dickeren Schicht die Gitterkonstante des Ni_2MnIn -Volumenkristalls errechnet werden. Für die 60 nm dicke Heuslerlegierung ergibt sich eine Volumengitterkonstante von $0,6025 \pm 0,002 \text{ nm}$. Die-

ser Wert stimmt gut mit der berichteten Gitterkonstante von 0,6022 nm für Ni_2MnIn -Legierungen überein [JCP94, Kur03]. Aus der mittleren Halbwertsbreite der $(\bar{2}20)$ -Schichtreflexe kann unter der Annahme einer vertikalen Kristallgröße im Bereich der Schichtdicke eine Verspannung des Kristallgitters von etwa $\approx 1\%$ abgeschätzt werden. Xie *et al.* beobachten bei Ni_2MnIn -Proben, welche in einem ähnlichen Temperaturbereich mit MBE gewachsen wurden, ebenfalls zusätzliche Beugungsreflexe mit vergleichbarer Lage [Xie05]. Diese zusätzlichen Beugungssignale wurden von Xie *et al.* als hexagonale Ni_2In_3 -Fremdphase identifiziert. Im Gegensatz dazu zeigen die hier vorliegenden Ergebnisse aus Röntgen- und Elektronenstrahlbeugung eindeutig eine andere Interpretation der beobachteten Reflexe an. Die in Abbildung 4.15(a-d) beobachtete kubische Symetrie der untersuchten Heuslerschicht entlang der (110) -Zonenachse des InAs-Substrates ist evident und erlaubt die Identifikation des zusätzlichen XRD-Beugungssignals als $(\bar{2}20)$ - Ni_2MnIn -Reflex.

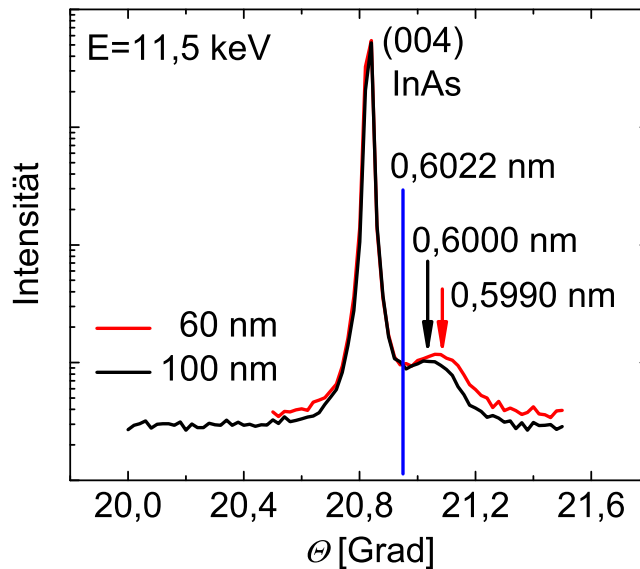


Abbildung 4.19: Hochaufgelöste XRD-Beugungsspektren einer 60 nm und 100 nm dicken Ni_2MnIn -Schicht, beide gewachsen bei 250 °C auf InAs(001). Aufgenommen unter Verwendung von Synchrotronstrahlung und einem Diffraktometer ohne Probenrotation. Die Pfeile kennzeichnen die Maxima der Schichtreflexe und sind beschriftet mit den jeweils korrespondierenden Gitterkonstanten. Eine blaue Linie markiert die berechnete (004)-Reflexposition für eine Ni_2MnIn -Heuslerlegierung.

In Abbildung 4.19 sind die hochaufgelösten Beugungsspektren einer 60 nm und einer 100 nm dicken Probe gezeigt, welche beide bei 250 °C gewachsen wurden. Diese Daten wurden mit der Synchrotronquelle und einem Diffraktometer ohne Probenrotation im Winkelbereich um den (004)-InAs-Reflexe aufgenommen. Die blaue Linie im Diagramm kennzeichnet die theoretische Position des (004)-Reflexes einer Ni_2MnIn -Legierung, berechnet für eine Strahlenergie von 8 keV mit dem Literaturwert der Ni_2MnIn -Gitterkonstante von $a = 0,6022$ nm [JCP94, Kur03]. Für beide

250 °C-Proben kann ein breites Beugungsmaximum neben dem intensiven (004)-InAs-Substratreflex klar aufgelöst werden. Die Lage des Maximums verschiebt sich mit zunehmender Schichtdicke in Richtung kleinerer θ -Werte, was einer Vergrößerung der vertikalen Gitterkonstante entspricht. Die beobachtete Veränderung der Reflexlage des Heuslerkristalls mit ansteigender Schichtdicke in Richtung des Literaturwertes für Volumenmaterial lässt sich mit dem klassischen Modell für Spannungsabbau bei gitterangepasstem Wachstum pseudomorph verspannter Schichten erklären. Dieses Ergebnis unterstützt die Beobachtung eines klassischen, bi-axialen Spannungsabbaus für Ni_2MnIn -Schichten auf InAs mit gemeinsamer kristallographischer (001)-Orientierung, welche von Xie in [Xie01, Xie05] berichtet wurde. Aus den Maxima der Schichtreflexe kann für die 60 nm dicke Heuslerschicht eine vertikale Gitterkonstante von $0,5990 \pm 0,001$ nm und für die 100 nm dicke Heuslerschicht von $0,6000 \pm 0,001$ nm berechnet werden. Unter Verwendung des Literaturwertes von 0,6022 nm für die Gitterkonstante und eines Poisson-Koeffizienten von 0,3 ergibt sich für den Fall einer vollständig pseudomorph verspannten Schicht eine vertikale Gitterkonstante von 0,595 nm. Die gemessenen Werte beider 250 °C-Heuslerproben liegen somit zwischen den vertikalen Gitterkonstanten einer verspannten und einer vollständig relaxierten Heuslerlegierung.

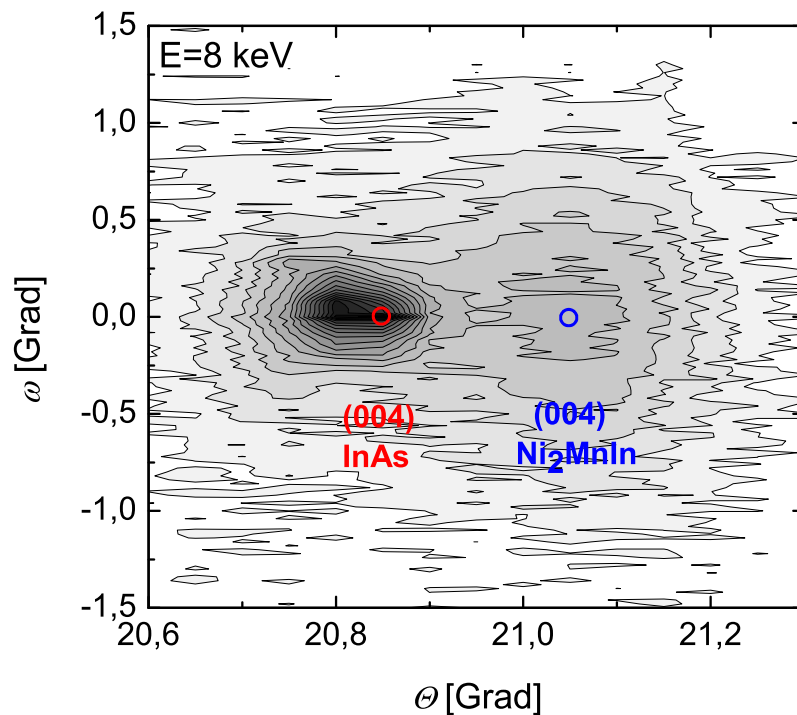


Abbildung 4.20: ω - θ -Karte einer 60 nm dicken $\text{Ni}_2\text{MnIn}(001)/\text{InAs}(001)$ -Probe, gewachsen bei 250 °C. Die gemessene Intensität ist als Grauwert dargestellt mit schwarz als relativem Maximum. Ein vertikaler Schnitt bei konstantem θ -Wert entspricht einer Rocking-Curve im Bereich von $\omega = -1,5^\circ$ bis $1,5^\circ$.

Die Kristallqualität wurde an Substrat- und Schichtreflexen mittels der Rocking-Curve-Methode untersucht. Speziell für die 60 nm dicke 250 °C-Probe wurden Rockingkurven zwischen $\theta = 20,6^\circ$ und $21,3^\circ$ mit einer Schrittweite von $0,05^\circ$ im Bereich von $\omega = -1,5^\circ$ bis $1,5^\circ$ aufgenommen. Aus diesen Messungen wurde eine ω - θ -Karte erzeugt, welche in Abbildung 4.20 dargestellt ist. Ein vertikaler Schnitt bei konstantem θ -Wert entspricht hierbei einer Rocking-Curve. Die gemessenen Intensitäten sind, aufgeteilt in zwanzig Wertbereiche, als Grautöne dargestellt, wobei schwarz die maximale und weiß die minimale Intensität innerhalb der Karte wiedergibt. Deutlich ist im Bereich von $\theta = 21^\circ$ das Signal der verspannten Ni_2MnIn -Schicht zu erkennen. In Abbildung 4.21 ist die Rocking-Curve bei $\theta = 21,05^\circ$ mit der höchsten gemessenen Schichtintensität dargestellt. Die bestimmte Halbwertsbreite von $\Delta\omega \approx 1^\circ$ deutet auf ein einkristallines Wachstum hin. Weitere Messungen an (001)- sowie $(1\bar{1}0)$ -orientierten Schichtreflexen der 60 nm und 100 nm dicken Heuslerschichten zeigten ebenfalls Halbwertsbreiten von $\Delta\omega \approx 1^\circ$. Unter Annahme einer vertikalen Kristallgröße im Bereich der jeweiligen Heuslerschichtdicke kann nach Formel 1.1 eine interne makroskopische Verspannung der Schichten von etwa 1% abgeschätzt werden.

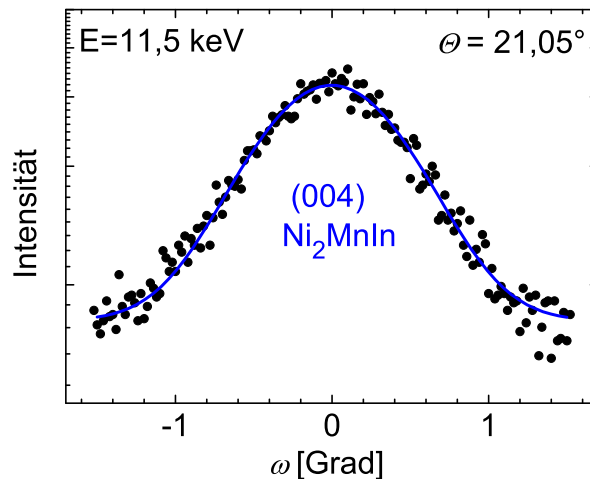


Abbildung 4.21: Rocking-Curve des (004)- Ni_2MnIn -Reflexes bei $\theta = 21,05^\circ$ im Bereich von $\omega = -1,5^\circ$ bis $1,5^\circ$, gemessen an einer 60 nm dicken und bei 250 °C gewachsenen $\text{Ni}_2\text{MnIn}(001)/\text{InAs}(001)$ -Probe. Die Datenpunkte sind als vertikaler Schnitt der in Abbildung 4.20 dargestellten ω - θ -Karte entnommen. Die Anpassung einer Gaußkurve, dargestellt als blaue Linie, ergibt eine Halbwertsbreite von $\Delta\omega \approx 1^\circ$.

4.3.3 Magnetische Eigenschaften

SQUID-Magnetometrie

Die magnetischen Eigenschaften ausgewählter $\text{Ni}_2\text{MnIn}/\text{InAs}$ -Heuslerproben wurden mittels SQUID-Magnetometrie bestimmt. Untersucht wurden sowohl Proben

gleicher Schichtdicke, welche bei verschiedenen Substrattemperaturen deponiert wurden, als auch bei gleicher Wachstumstemperatur präparierte Proben, welche unterschiedliche Schichtdicken aufwiesen. Alle Messungen wurden im remanenten Magnetisierungsmodus des Magnetometers durchgeführt, nachdem die Proben feldlos auf die niedrigste Messtemperatur von 10 K abgekühlt worden waren. Bei dieser Temperatur wurden die untersuchten Proben gesättigt, indem für kurze Zeit ein Magnetfeld von 1500 Oe parallel zur Probenoberfläche angelegt wurde. Danach wurde beim Erwärmen die temperaturabhängige remanente Magnetisierung $M_R(T)$ der Proben ohne ein externes Magnetfeld gemessen. Um eine Vergleichbarkeit der Ergebnisse für Proben verschiedener Schichtdicke zu ermöglichen, wurde aus den Messwerten die spezifische Magnetisierung jeder Probe durch Normieren auf das Volumen der Heuslerschicht bestimmt. Dieses Volumen wird aus der jeweiligen aufgedampften Schichtdicke (20, 60 und 100 nm) sowie der Probengröße (4×4 mm) errechnet.

Proben mit unterschiedlicher Wachstumstemperatur

Die temperaturabhängige Magnetisierung $M_R(T)$ aller 100 nm dicken Heuslerschichten wurde mittels SQUID-Magnetometrie bestimmt. Die Messergebnisse sind in Abbildung 4.22 in zwei Diagramme aufgeteilt, welche zwei unterschiedliche Temperaturbereiche für das Probenwachstum wiedergeben. In Abbildung 4.22(a) ist die temperaturabhängige Magnetisierung für Heuslerproben mit einer Wachstumstemperatur zwischen 80°C und 300°C dargestellt. Abbildung 4.22(b) zeigt die Messergebnisse für Schichten, welche im Bereich zwischen 320°C und 360°C deponiert wurden. Beide Bereiche weisen eine unterschiedliche Abhängigkeit der Curietem-

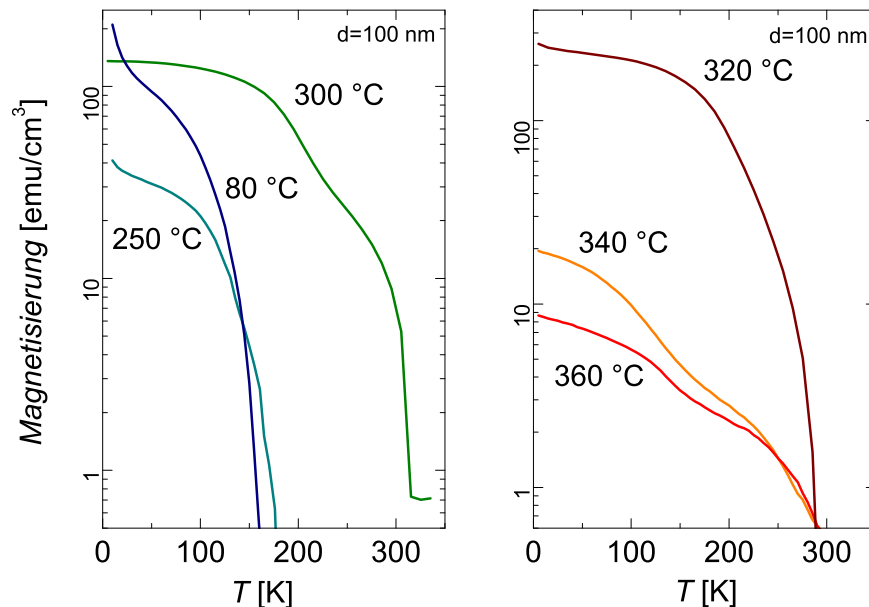


Abbildung 4.22: Remanente Magnetisierung $M_R(T)$ von 100 nm dicken Heuslerschichten, gewachsen bei verschiedenen Wachstumstemperaturen auf $\text{InAs}(001)$. Die Magnetisierung ist normiert auf das Schichtvolumen.

peratur T_C von der Wachstumstemperatur der Proben auf. In Abbildung 4.22(a) nimmt die Übergangstemperatur T_C bei Heuslerschichten, welche zwischen 80 °C und 300 °C gewachsen wurden, mit steigender Wachstumstemperatur zu. Im Gegensatz dazu hat die Wachstumstemperatur bei Proben aus dem zweiten Bereich (320–360 °C) keinen Einfluss auf T_C . Lediglich eine ausgeprägtere Abnahme der maximalen Magnetisierungswerte kann für Proben mit Wachstumstemperaturen oberhalb von 360 °C in Abbildung 4.22(b) beobachtet werden. Dies korrespondiert mit der in Kapitel 4.3.1 beobachteten starken Zunahme der Arsendiffusion für Probenwachstum in diesem Temperaturbereich. Der recht große maximale Magnetisierungswert der 80 °C-Probe liegt möglicherweise in einer geringeren Ausdehnung der durchmischten Reaktionszone im Vergleich zu den übrigen Proben begründet, welche bei der Berechnung des magnetischen Volumens anhand der aufgedampften Schichtdicken nicht berücksichtigt wird. Während mit steigender Wachstumstemperatur die Arsendiffusion zunimmt und zu einer Reduktion der magnetischen Heuslerschichtdicke führt, wird gleichzeitig die Defektdichte innerhalb der Heuslerschicht reduziert, was in einer höheren Dichte an magnetisierbarem Material resultiert und bei der 300 °C und 320 °C-Probe mutmaßlich den Anstieg der Magnetisierung verursacht. Für die 100 nm dicken Heuslerschichten ergeben sich folgende Curietemperaturen: 160 ± 4 K für die 80 °C-Probe, 185 ± 4 K für die 250 °C-Probe, 315 ± 5 K für die 300 °C-Probe und 285 ± 5 K für alle Proben zwischen 320 °C und 360 °C.

Proben mit unterschiedlicher Schichtdicke

Das temperaturabhängige Magnetisierungsverhalten von bei 300 °C gewachsenen Proben unterschiedlicher Schichtdicke wurde mittels SQUID-Magnetometrie untersucht. In Abbildung 4.23 sind die Magnetisierungskurven der 20 nm, 60 nm und 100 nm dicken Heuslerschichten dargestellt. Die Werte der remanenten Magnetisierung $M_R(T)$ wurden wie zuvor auf das Volumen der deponierten Heuslerschicht normiert. Deutlich zu erkennen ist, dass die Curietemperatur mit zunehmender Schichtdicke der Ni_2MnIn -Heuslerschicht ansteigt. Die Curietemperatur der 60 nm und 100 nm dicken Schichten liegt bei 300 °C und 315 °C. Lediglich für die 20 nm dicke Heuslerschicht kann die Übergangstemperatur nicht präzise bestimmt werden. Das magnetische Messsignal der dünnsten Heuslerschicht geht oberhalb von 275 °C langsam in ein Untergrundrauschen über, welches aufgrund der Volumennormalisierung in der gemeinsamen Darstellung mit den anderen Schichten in der dünnsten Schicht stärker ausgeprägt ist. Da die Übergangstemperatur T_C ein intrinsischer Parameter ist, welcher als solcher unabhängig von der makroskopischen Systemgröße ist, muss mit ansteigender Schichtdicke eine Veränderung im strukturellen Aufbau der Heuslerschicht stattfinden. Aus der Literatur ist bekannt, dass Ni_2MnIn -Heuslerschichten in der $L2_1$ -Phase eine höhere Curietemperatur aufweisen als Schichten in der B2-Phase [Xie01, Kur03, Köt06]. Der Anstieg der Curietemperatur ist daher ein Hinweis auf eine schichtdickenabhängige Phasenumwandlung innerhalb der Heuslerschicht hin zur geordneten $L2_1$ -Struktur.

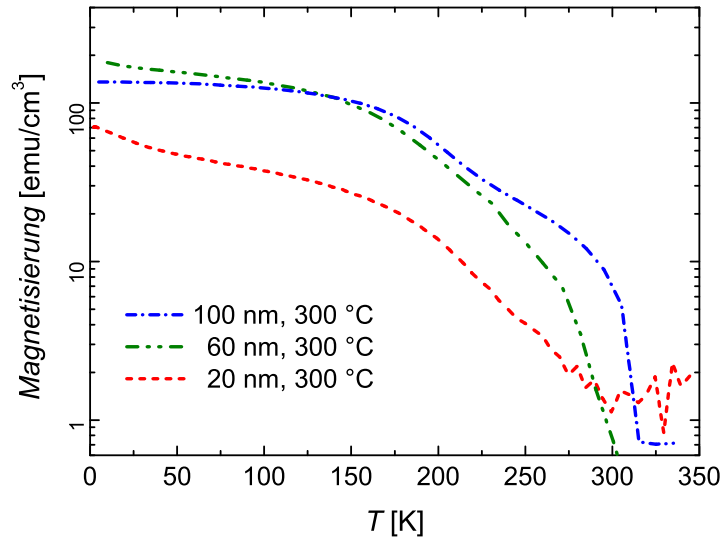


Abbildung 4.23: Remanente Magnetisierung $M_R(T)$ normiert auf das Schichtvolumen der bei 300 °C auf $\text{InAs}(001)$ gewachsenen Heuslerschichten. Die untersuchten Schichtdicken betragen 20 nm , 60 nm und 100 nm .

4.3.4 Elektronische Eigenschaften

Punktkontakt-Andreev-Spektroskopie

Zwei auf InAs gewachsenen Ni_2MnIn -Heuslerschichten wurden von Jan Scholtyssek in der Gruppe von Prof. Merkt mittels PCAR untersucht und ausgewertet. Ausgewählt wurden zwei Proben mit einer Heuslerschichtdicke von je 60 nm , die erste bei einer Substrattemperatur von 300 °C , die zweite bei 320 °C gewachsen.

Bei der Untersuchung der auf InAs gewachsenen Proben war es schwierig, verwertbare sowie reproduzierbare Messdaten zu erhalten. Sowohl die experimentelle Datenaufnahme, welche einen definierten und stabilen supraleitenden Punktkontakt über den gesamten gemessenen Temperaturbereich voraussetzt, als auch die Auswertung nach einer erfolgreichen Messwertaufnahme, die ein konsistentes Ergebnis für alle Leitfähigkeitskurven mittels einer numerischer Anpassungsrechnungen liefern soll, blieben teilweise ergebnislos. Die in Abbildung 4.24 gezeigte Messung und erfolgreiche Auswertung der untersuchten $\text{Ni}_2\text{MnIn}/\text{InAs}$ -Probe gelang erst im dritten Versuch. Die Heuslerschicht dieser Probe ist 60 nm dick und wurde bei einer Substrattemperatur von 320 °C gewachsen. Dargestellt ist die differentielle Leitfähigkeit als Funktion der externen Spannung bei verschiedenen Temperaturen. Die Messdaten wurden mit Hilfe der Datenbankmethode durch einen Vergleich mit vorab simulierten Datensätzen ausgewertet (siehe Abschnitt 3.3.1). Die Spinpolarisation dieser Probe ergibt bei Extrapolation auf $P(Z = 0)$ einen Wert von $P = 0,11 (\pm 0,02)$. Die Spinpolarisation beträgt somit lediglich ein Drittel der bei ähnlichen Prozessparametern gewachsenen polykristallinen $\text{Ni}_2\text{MnIn}/\text{Au}/\text{Si}$ -Proben aus Abschnitt 4.2.3.

Die aufgenommenen Messdaten der bei 300 °C gewachsenen Probe mit gleicher

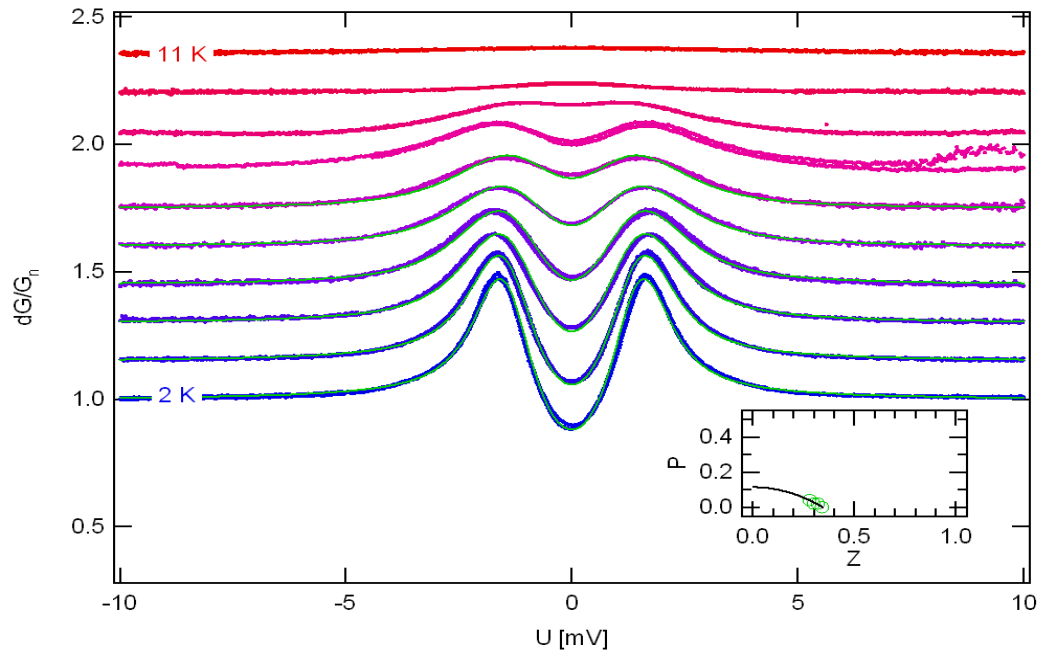


Abbildung 4.24: Leitfähigkeit eines $\text{Ni}_2\text{MnIn}/\text{InAs}$ -Punktkontaktes mit Niob-Spitze. Die durchgehenden grünen Kurven sind die jeweils simulierte Anpassung. Die Heuslerschicht ist 60 nm dick und wurde bei 320°C gewachsen. Inneres Diagramm: für $Z = 0$ ergibt sich eine Polarisation von $P = 0,11$.

Schichtdicke sind als Beispiel einer nicht geglückten Untersuchung in Abbildung A.1 im Anhang A.1 dargestellt. Die Messaufnahme ist oberhalb von 4 K abgebrochen, bereits die bei 3 K bestimmte Leitfähigkeitskurve des Punktkontaktes zwischen Niob und $\text{Ni}_2\text{MnIn}/\text{InAs}$ konnten nicht unter Verwendung der bekannten Modelle angepasst werden. Die Ursache für die beobachteten Schwierigkeiten bei der Bestimmung der Spinpolarisation mit der PCAR-Methode ist derzeit noch unklar. Die Bildung der Reaktionszone durch Arsendiffusion könnte möglicherweise einen noch zu klärenden Einfluss auf die elektrischen Schichteigenschaften haben. Da eine Bewertung der mittels PCAR gewonnenen Ergebnisse schwer fällt, sowie aufgrund der unbefriedigenden Reproduzierbarkeit der PCAR-Messungen an Ni_2MnIn -Schichten auf $\text{InAs}(001)$ -Substraten, wird von einer Einordnung und Bewertung der geringen PCAR-Spinpolarisation in das Gesamtergebnis abgesehen.

Magneto-Optische Ellipsometrie

In der Gruppe von Prof. Rübhausen wurden von Marta Bastian SGME-Messungen an sechs auf InAs gewachsenen Ni_2MnIn -Heuslerschichten durchgeführt. Sowohl Proben mit einer Schichtdicke von 100 nm, hergestellt bei verschiedenen Wachstumstemperaturen, als auch eine Probenserie mit konstanter Wachstumstemperatur von 300°C , aber unterschiedlichen Schichtdicken wurden untersucht. Für jede Probe wurden die nicht-diagonalen Elemente des dielektrischen Tensors bestimmt und da-

nach aus den gemessenen Spektren die integralen ε_{1xy} -Werte ermittelt. Die Messungen wurden bei verschiedenen Temperaturen unterhalb der Curietemperatur T_C der Heuslerschichten durchgeführt. Oberhalb von T_C traten wie erwartet keine Nicht-Diagonalelemente mehr auf. Im Folgenden werden die Ergebnisse der Messungen bei 100 K präsentiert, eine Temperatur welche für alle untersuchten Heuslerproben unterhalb von T_C liegt. In Abbildung 4.25 sind der Imaginärteil ε_{1xy} und der Realteil ε_{2xy} der Nicht-Diagonalelemente für Heuslerschichten mit den Wachstumstemperaturen 360 °C, 320 °C, 250 °C und 80 °C dargestellt. Die relative Spinpolarisation der jeweiligen Heuslerschicht wird durch einen Vergleich der integrierten ε_{1xy} -Werte aus Abbildung 4.25(a) im Verhältnis zueinander ermittelt. Diese integrierten ε_{1xy} -Werte werden durch Aufsummieren von der niedrigsten Energie bei 1,57 eV bis zum jeweiligen Schnittpunkt des Spektrums mit der x-Achse bestimmt (siehe Abschnitt 3.3.2). Die oberen Integrationsgrenzen liegen bei 2,58–2,84 eV für die Schichten mit 80–320 °C Wachstumstemperatur und bei 3,22 eV bei der 360 °C-Probe. Eine Auftragung der so ermittelten integrierten ε_{1xy} -Werte gegen die Wachstumstemperatur ist als inneres Diagramm in Abbildung 4.25(a) dargestellt. Mit ansteigender Wachstumstemperatur kann eine deutliche Veränderung der elektronischen Struktur und der Spinpolarisation der Heuslerschichten innerhalb des untersuchten Energiebereiches beobachtet werden. Die bei 250 °C und 320 °C gewachsenen Proben zeigen in Abbildung 4.25(a)(*innen*) die höchste Spinpolarisation aller 100 nm dicken Heuslerschichten. Dieser Temperaturbereich korrespondiert mit den bei Morphologie- und Strukturuntersuchungen identifizierten Grenztemperaturen, oberhalb derer eine L2₁-Heuslerphase nachweisbar ist und unterhalb derer die Reaktionszone die Probenmorphologie noch nicht dominiert. Im Vergleich zeigt die bei 360 °C gewachsene Probe ein deutlich anderes Spektrum. Bei dieser Substrattemperatur wurde bereits eine vollständige Degradation der deponierten Heuslerschicht in den morphologischen Untersuchungen festgestellt. Offensichtlich manifestiert sich dies auch in den dielektrischen Eigenschaften.

Innerhalb des Temperaturbereiches für optimales Probenwachstum liegt die bei 300 °C auf $\text{InAs}(001)$ präparierte Probenserie mit variierender Heuslerschichtdicke. In Abbildung 4.26 sind der Imaginärteil ε_{1xy} und der Realteil ε_{2xy} der Nicht-Diagonalelemente für diese Heuslerschichten mit Dicken von 20 nm, 60 nm und 100 nm dargestellt. Im inneren Diagramm in Abbildung 4.26(a) sind die errechneten maximalen ε_{1xy} -Werte als Funktion der Heuslerschichtdicke aufgetragen. Integriert wurde von 1,57 eV bis 2,70 eV für die 60 nm-Probe und bis 2,85 eV für die 20 nm und 100 nm dicken Heuslerschichten. Die Messung der 100 nm dicken Schicht erfolgte an einer bei 320 °C gewachsenen Heuslerprobe. Die gegen Ende der vorangegangenen Untersuchungen verbleibende Probengröße der bei 300 °C gewachsenen 100 nm-Probe war zu klein für Messungen mittels SGME. Für diese Probe wäre ein noch größerer Wert der Spinpolarisation bei SGME-Messungen erwartet worden. Im inneren Diagramm von Abbildung 4.26(a) wird ein Anstieg der dargestellten integrierten ε_{1xy} -Werte mit zunehmender Heuslerschichtdicke beobachtet. Die Spinpolarisation der Ni_2MnIn -Schichten steigt mit zunehmender Schichtdicke an.

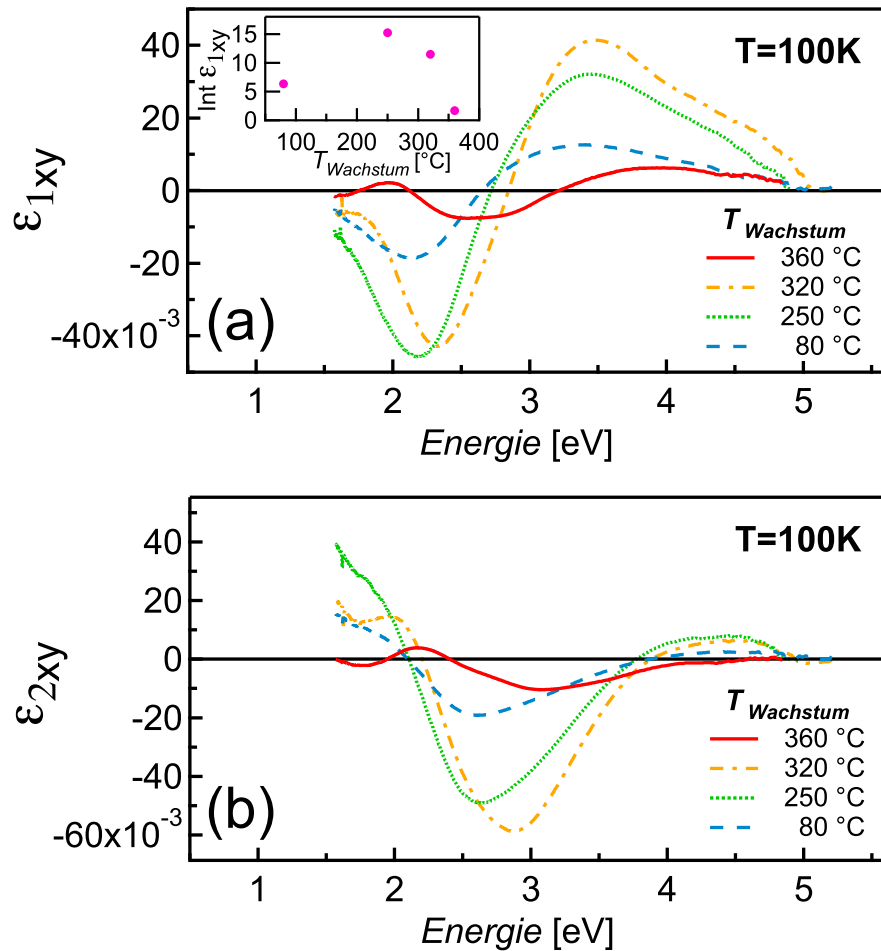


Abbildung 4.25: Nicht-Diagonalelemente des dielektrischen Tensors von vier 100 nm dicken Ni_2MnIn -Schichten, alle hergestellt auf $\text{InAs}(001)$ bei verschiedenen Wachstumstemperaturen. Aus Messungen bei 100 K wurden (a) der Imaginärteil ϵ_{1xy} und (b) der Realteil ϵ_{2xy} bestimmt. (inneres Diagramm) Auftragung der integrierten ϵ_{1xy} -Werte gegen die Wachstumstemperatur. Die Integration erfolgte jeweils durch Aufsummieren von 1,57 eV bis zum Schnittpunkt mit der Nulllinie. Die Spinpolarisation ist für Proben mit einer Wachstumstemperatur von $250\text{ }^\circ\text{C}$ bis $320\text{ }^\circ\text{C}$ am höchsten.

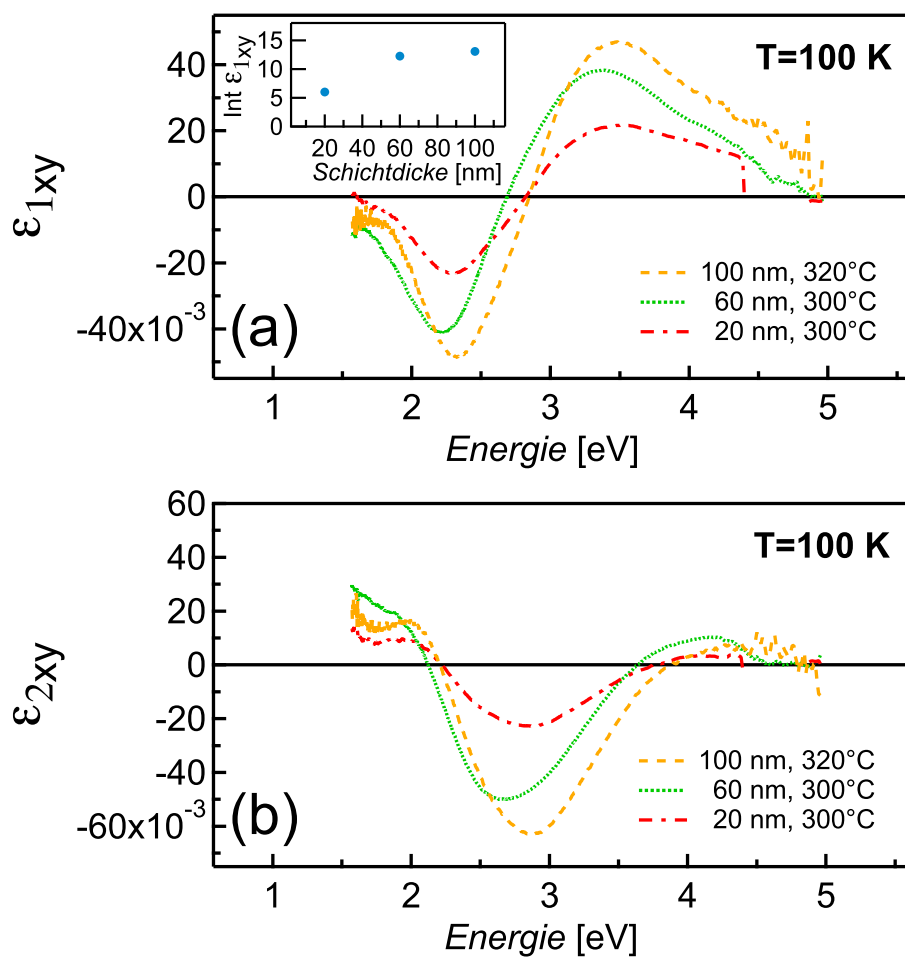


Abbildung 4.26: Nicht-Diagonalelemente des dielektrischen Tensors von 20 nm, 60 nm und 100 nm dicken Ni_2MnIn -Schichten, alle hergestellt bei $300\text{ }^\circ\text{C}$ auf $\text{InAs}(001)$. Aus Messungen bei 100 K wurden (a) der Imaginärteil ϵ_{1xy} und (b) der Realteil ϵ_{2xy} bestimmt. (*inneres Diagramm*) Auftragung der integrierten ϵ_{1xy} -Werte gegen die Heuslerschichtdicke. Die Integration erfolgte jeweils durch Aufsummieren von $1,57\text{ eV}$ bis zum Schnittpunkt mit der Nulllinie. Mit zunehmender Heuslerschichtdicke steigt die Spinpolarisation an.

4.4 Ni₂MnIn auf virtuellen Substraten

4.4.1 Probenmorphologie

Magnetotransport-Untersuchung

Mittels einer Untersuchung der Magnetotransporteigenschaften wurde überprüft, ob bei der Präparation von Heusler/HEMT-Hybridsystemen der Prozess des Ni₂MnIn-Wachstums bei einer Temperatur von 300°C zu einer Degradation der unbedampften Teile einer InAs-HEMT-Heterostruktur führt. Hierfür wurden die elektrischen Eigenschaften des 2D-Elektronengases als Sonde zur Beurteilung der morphologischen Strukturqualität eingesetzt [Bey03]. Das 2D-Elektronengas befindet sich bei der verwendeten Schichtstruktur etwa 50 nm unterhalb der Oberfläche des InAs-HEMTs, welche zu der Grenzfläche zwischen Heuslerlegierung und Halbleiter-Heterostruktur beim Wachstum von Hybridsystemen wird. Aus früheren Untersuchungen ist bekannt, dass die Leitfähigkeit von InAs-HEMT-Strukturen sensitiv auf die Prozessparameter beim Wachstum ist [Löh03, Löh04].

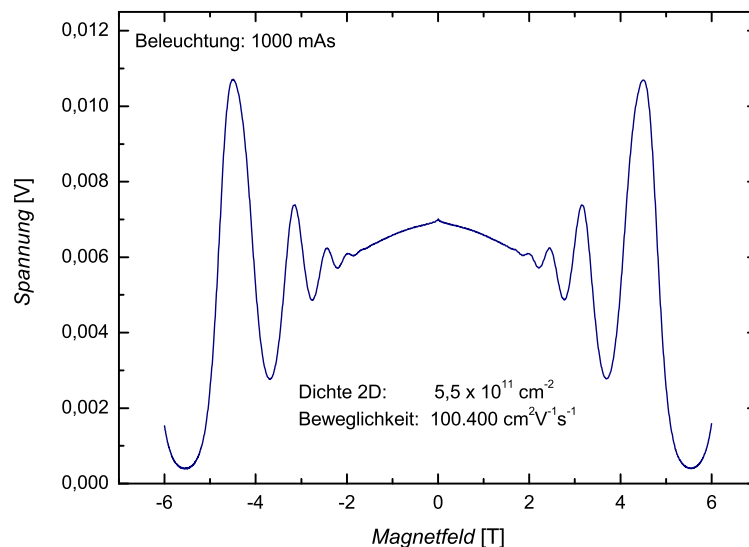


Abbildung 4.27: Magnetotransportmessung an einem InAs-HEMT mit metamorphem Puffer auf GaAs-Substrat. Beim Heuslerwachstum diente eine 10 mm-Lochblende als Maske zur Begrenzung der HEMT-Oberfläche, welche als virtuelles Substrat verwendet wird. Ein unbedampftes Probenstück wurde direkt neben einer der drei deponierten Ni₂MnIn-Schichten herausgebrochen und photolithographisch als Hallbar präpariert. Diese Referenzstruktur ohne magnetische Heuslerelektrode wurde elektrisch charakterisiert.

Ein maskiertes unbedampftes Stück InAs-HEMT, welches direkt neben einer der drei deponierten Heuslerschichten herausgebrochen wurde, diente als Referenzprobe ohne magnetische Heuslerelektrode. Um die Transporteigenschaften dieses Probenstückes bei Heliumtemperatur von 4,2 K definiert zu untersuchen, wurde mit

photolithographischen Methoden ein Hallbar prozessiert. Der Längswiderstand wurde in einer Vierpunktmessung unter Verwendung der Lock-In Technik und eines Helium-Badkryostaten mit der Magnetfeldrichtung senkrecht zur Probenebene bestimmt. In Abbildung 4.27 ist der Längswiderstand als Funktion des Magnetfeldes gemessen bei 4,2 K zu sehen. Aus dem Abstand der SdH-Minima lässt sich eine 2D-Ladungsträgerdichte von $5,5 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ bestimmen, ferner aus dem Nullfeldwiderstand eine Beweglichkeit nach Beleuchtung von $100\,400 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ errechnen. Bei Transportuntersuchungen an InAs-HEMT-Strukturen mit gleicher Schichtabfolge wurde an den besten Proben eine Beweglichkeit von $300\,000 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ bei einer 2D-Ladungsträgerdichte von $N_s = 6,1 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ gemessen [Löh04]. Messungen an Proben mit einer dünneren Deckschicht von lediglich 19,5 nm ergaben Beweglichkeiten von bis zu $160\,000 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ und eine Ladungsträgerdichte von $N_s = 6,3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ [Hey03]. Vor diesem Hintergrund kann davon ausgegangen werden, dass beim zusätzlichen Prozessschritt des Heuslerwachstums die Schichtstruktur des InAs-HEMTs nicht oder nur wenig geschädigt wurde. Die Vermessung von Probenstücken direkt unter einer der Heuslerschichten ist ohne vorherige Entfernung derselbigen nicht möglich, da der Metallfilm einen Kurzschluss darstellt. Hingegen ist ein direkter Vergleich von unbedampftem HEMT und Heusler/HEMT-Hybridproben mittels Beugungsmethoden möglich, die im Folgenden beschrieben werden.

Röntgenreflektometrie

Die Morphologie einer Ni_2MnIn /HEMT-Hybridprobe und einer als virtuelles Substrat verwendeten unbedampften InAs-HEMT-Struktur auf GaAs-Basis mit metamorphem InAlAs-Puffer wurden am Deutschen Elektronen-Synchrotron in Hamburg mittels Röntgenreflektometrie untersucht. Die nominelle Schichtstruktur der Heusler/HEMT-Hybridprobe ist in Abbildung 4.28 dargestellt.

In Abbildung 4.29 sind das XRR-Spektrum der unbedampften HEMT-Referenzprobe in schwarz sowie einer HEMT-Struktur nach dem Aufdampfen einer 50 nm dicken Heuslerschicht in rot dargestellt. Die Wachstumstemperatur beim Deponieren der Heuslerschicht betrug 300°C . Das XRR-Spektrum der unbedampften HEMT-Struktur weist zwei deutlich erkennbare Überstrukturmaxima auf neben weiteren, nur schwach ausgeprägten Schwebungen in der Signalintensität. Diese Merkmale werden hervorgerufen durch die komplexe Probenstruktur mit ihrer Vielzahl von Multilag. Aufgrund der Auslöschung und Überlagerung von Intensitäten können den jeweiligen Schichten keine eindeutigen Frequenzen mehr zugeordnet werden. Eine Simulation des Spektrums unter Verwendung des nominellen Wachstumsmodells kann daher keine schlüssigen Ergebnisse liefern. Das in rot dargestellte Spektrum der Ni_2MnIn /HEMT-Probe weist eine deutlich abweichende Phänomenologie auf. Der Überstrukturefflex bei $2\theta \approx 1,2^\circ$ ist verschwunden, lediglich eine leichte Schulter ist im stark abfallenden Intensitätssignal noch zu erkennen. Ab etwa $2\theta \approx 2^\circ$ geht das Signal bereits in Rauschen über. Hieraus kann man schließen, dass offensichtlich beim Wachstum der Hybridstruktur auf die HEMT-Oberfläche eine qualitative Verschlechterung der hieraus neu gebildeten Grenzfläche zwischen

Ni_2MnIn -Heuslerschicht und Halbleiter-Heterostruktur eintritt.

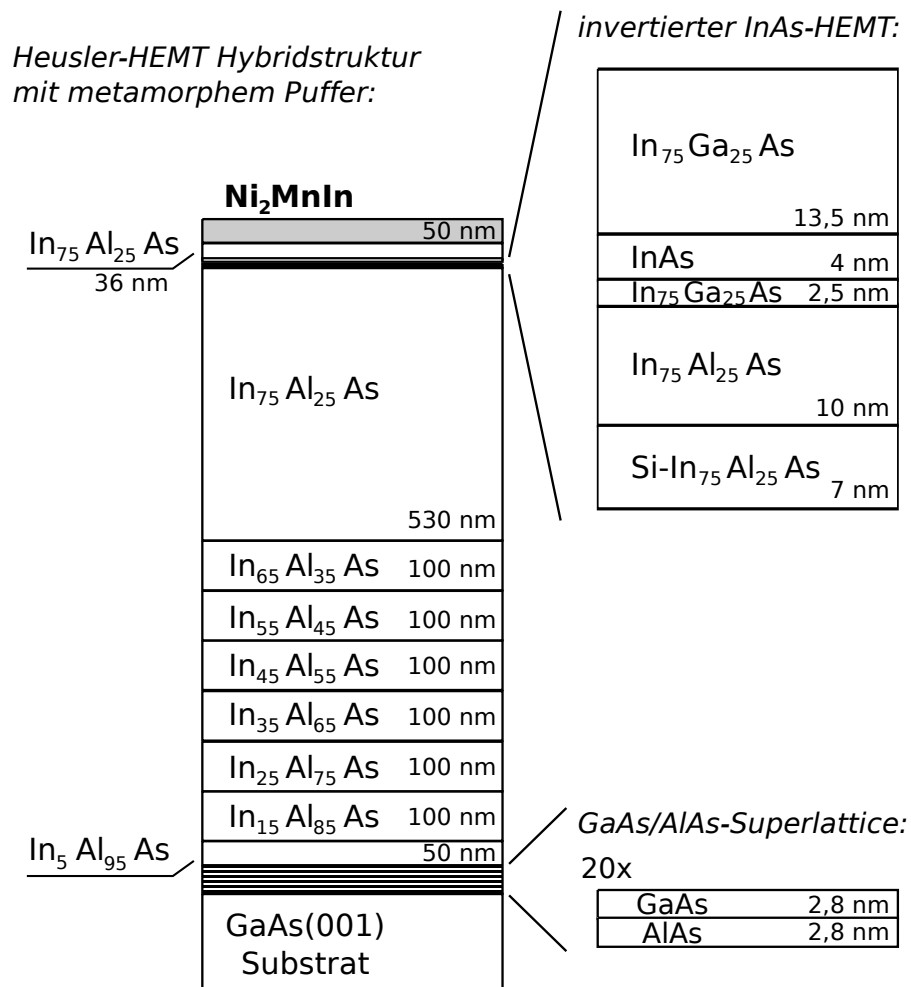


Abbildung 4.28: Schichtmodell der Heusler/InAs-HEMT-Hybridstruktur mit metamorphem Puffer auf GaAs-Substrat. Dargestellt sind nominelle Zusammensetzungen und Schichtdicken. Der verspannte InAs-Kanal (Gitterfehlpassung $\delta = 1,7\%$) ist asymmetrisch in einem $\text{In}_{75}\text{Ga}_{25}\text{As}$ -Quantentopf eingefügt, welcher in $\text{In}_{75}\text{Al}_{25}\text{As}$ eingebettet ist. Die 36 nm dicke Deckschicht aus $\text{In}_{75}\text{Al}_{25}\text{As}$ fungiert als virtuelles Substrat für das gitterangepasste Wachstum einer 50 nm dicken Ni_2MnIn -Heuslerschicht bei einer Substrattemperatur von 300°C . Die Gitterfehlpassung zwischen der Heuslerschicht und dem virtuellen Substrat beträgt $\delta = 1,1\%$.

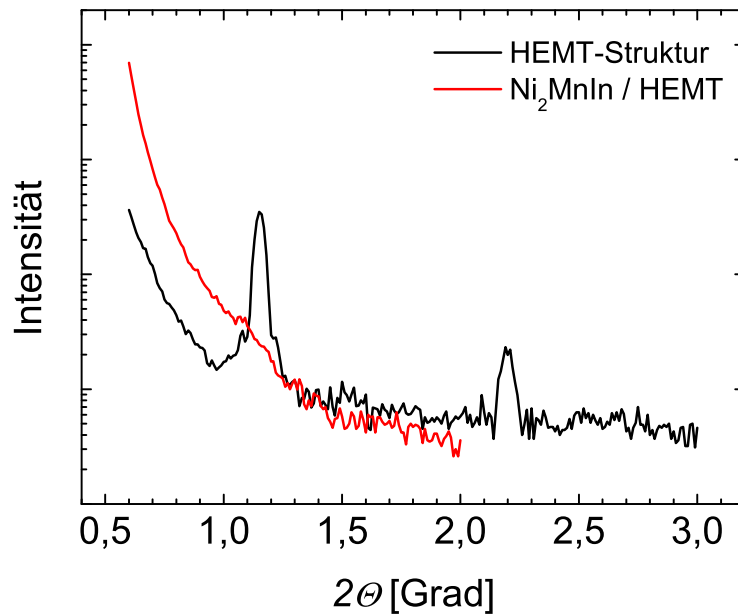


Abbildung 4.29: XRR-Spektrum einer metamorphen HEMT-Struktur und einer Heusler/HEMT-Hybridstruktur, aufgenommen unter der Verwendung von Synchrotronstrahlung ($\lambda = 0,10765$ nm). (Schwarz) Referenzspektrum des InAs-HEMT. (Rot) XRR-Spektrum nach dem Wachstum einer 50 nm dicken Ni_2MnIn -Schicht bei 300°C auf die $\text{In}_{75}\text{Al}_{25}\text{As}$ -Deckschicht des HEMT.

4.4.2 Strukturelle Eigenschaften

Röntgendiffraktometrie

Sowohl die als Substrat verwendete unbedampfte HEMT-Struktur, als auch eine der Ni_2MnIn /HEMT-Proben wurden mit Röntgenbeugung am Deutschen Elektronen-Synchrotron in Hamburg untersucht. Das als Referenz vermessene Probenstück und die mit einer Heuslerschicht bedampfte Probe des InAs-HEMT stammen aus dem gleichen Herstellungsprozess und wurden aus nebeneinanderliegenden Bereichen des Wafers herausgebrochen. Die Justierung der gemessenen Reflexpositionen erfolgte durch eine exakte Ausrichtung der Proben nach dem Einbau ins Diffraktometer auf das Intensitätsmaximum des (004)-GaAs-Reflexes. Für beide Proben wurden in $\theta/2\theta$ -Geometrie Übersichtsspektren im Bereich zwischen dem (002)- und (004)-GaAs-Reflex mit einer Auflösung von $\theta = 0,05^\circ$ und Detailspektren im Bereich des (004)-Reflexes hin zu kleineren Winkeln mit einer Auflösung von $\theta = 0,01^\circ$ aufgenommen.

In Abbildung 4.30 sind die Beugungsspektren der unbedampften sowie der bei 300°C mit einer 50 nm dicken Ni_2MnIn -Schicht bedampften HEMT-Probe dargestellt. Das in klein dargestellte Übersichtsspektrum von 9° bis 25° liefert keine Hinweise auf einen Heusler-Reflex vom Typ (220) im Bereich von $\theta = 14\text{--}15^\circ$, welcher

bei polykristallinen Ni_2MnIn -Schichten die höchste Intensität aufweist (siehe Tabelle 4.1 auf Seite 66). Die Positionen der beobachteten Reflexmaxima sind mit grünen Strichpunktlinien hervorgehoben. Für beide Detailspektren kann anhand des Wachstumsmodells, dargestellt in Abbildung 4.28, die Reflexlage entsprechend der nominalen Stöchiometrie einer jeweiligen Schicht berechnet werden. Die so berechneten (004)-Reflexe der metamorphen $\text{In}_x\text{Al}_{1-x}\text{As}$ -Schichten sind unter Angaben des jeweiligen Indiumanteils des Mischkristalls in Abbildung 4.31 mit schwarzen vertikalen Strichen hervorgehoben. Die beiden Detailspektren aus 4.30 sind hier übereinander angeordnet und vergrößert abgebildet. Die beobachteten Reflexmaxima der Spektren sind wieder mit grünen Strichpunktlinien gekennzeichnet. Der scharfe (004)-Reflex des unterliegenden GaAs-Substrates lässt sich eindeutig identifizieren. Der Scheitelpunkt der kleinen Schulter an der linken Seite des Substrat-Reflexes stimmt exakt mit der Lage des AlAs-(004)-Reflexes überein. Hierbei handelt es sich um ein Signal des 112 nm dicken Übergitters aus AlAs und GaAs unterhalb der metamorphen

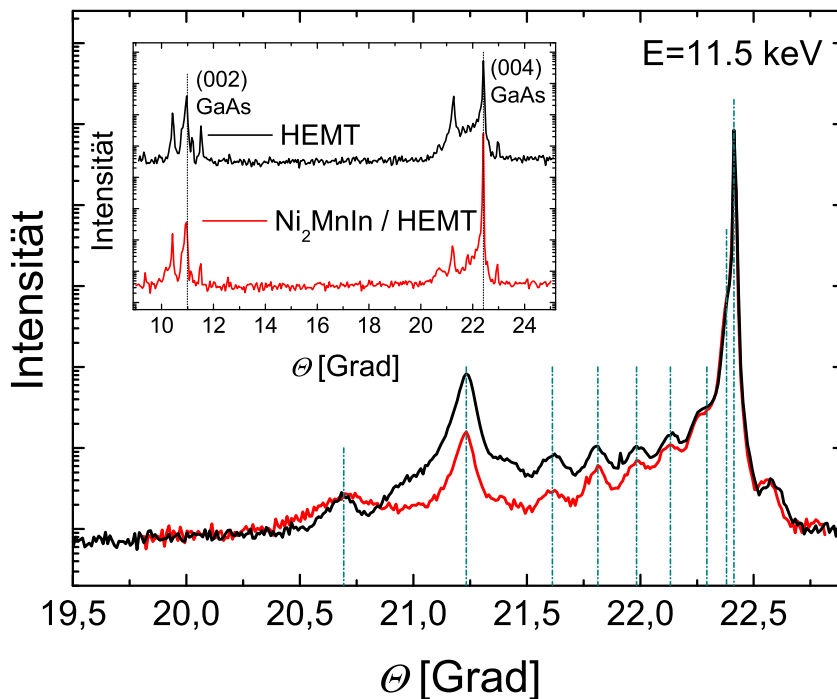


Abbildung 4.30: XRD-Spektren der HEMT-Struktur mit verspanntem InAs-Kanal und metamorphem Puffer auf GaAs-Basis, aufgenommen in koplanarer $\theta/2\theta$ -Geometrie mit Synchrotronstrahlung ($\lambda = 0,10765$ nm). (Schwarz) Referenzspektrum, aufgenommen am unbedampften HEMT. (Rot) XRD-Spektrum, aufgenommen nach dem Wachstum einer 50 nm dicken Ni_2MnIn -Schicht bei 300°C direkt im Anschluss an die HEMT-Präparation. Die grünen Strichpunktlinien kennzeichnen die beobachteten Reflexmaxima. (Übersichtsspektrum, verkleinert dargestellt) Signale eines (220)-Reflexes, der bei polykristallinen Ni_2MnIn -Kristallen im Winkelbereich von $\theta = 14\text{--}15^\circ$ auftritt, können nicht beobachtet werden.

Zwischenschichten. An beiden Flanken des Substratreflexes ist jeweils ein Reflexmaximum erkennbar, welches auf Pendeloszillationen des AlAs/GaAs-Übergitters zurückgeführt wird. Hierbei deutet die Signalhöhe der linken Flanke auf eine Überlagerung mit einem InAlAs-Reflex hin.

Ausgehend vom GaAs-(004)-Reflex werden im Folgenden die in Abbildung 4.31 beobachtbaren Signale des metamorphen $\text{In}_x\text{Al}_{1-x}\text{As}$ -Puffers hin zu kleineren Beugungswinkeln diskutiert. Für alle erkennbaren Signale der $\text{In}_x\text{Al}_{1-x}\text{As}$ -Schichten liegen die gemessenen Intensitätsmaxima im Rahmen der bestehenden Genauigkeit bei kleineren θ -Werten oder auf den berechneten nominellen Reflexpositionen. Bei der Auswertung muss die verwendete Schrittweite von $\theta = 0,01^\circ$ sowie die Annahme einer exakt erreichten nominellen Stöchiometrie für die Berechnung der Reflexlagen berücksichtigt werden. Eine Differenz in θ -Winkeln von $\pm 0,01^\circ$ entspricht hierbei einer Variation des Indiumanteils von $\pm 0,7\%$. Für den Fall einer exakten nominellen Stöchiometrie ergibt sich aus den zu geringeren θ -Werten verschobenen Reflexmaxima die jeweilige pseudomorphe Verspannung der Schicht. Für jede Schicht des metamorphen Puffers kann eine Verspannung von weniger als $\epsilon = 0,5\%$ abgeschätzt werden. Anhand der Lage der gemessenen Beugungssignale können die $\text{In}_x\text{Al}_{1-x}\text{As}$ -Zwischenschichten in drei Bereiche eingeteilt werden. Der erste Bereich umfasst die Schichten mit einem Indiumanteil von 5%, 15% und 25%, deren Reflexe lediglich $\approx 0,03^\circ$ von den berechneten Positionen abweichen und sich diesen mit steigendem Indiumanteil annähern. Die $\text{In}_{25}\text{Al}_{75}\text{As}$ -Schicht nähert sich im Rahmen der Messgenauigkeit bereits der nominellen Reflexlage und ist vermutlich wie beabsichtigt vollständig relaxiert. Bei den Schichten mit einem Indiumanteil von 35% und 45% ist eine stärkere Verschiebung der Reflexlage zu kleineren θ -Werten mit steigendem Indiumanteil zu beobachten. Den Schichten mit 55% und 65% Indiumanteil können im Beugungsspektrum keine Intensitätssignale zugeordnet werden. Diese Beobachtungen korrespondieren mit vorangegangenen TEM-Untersuchungen an Proben mit ähnlichem Schichtaufbau [Hey03]. Diese zeigten in der Hellfeldaufnahme eines InAs-HEMT-Probenquerschnittes für die substratnahen Schichten mit 15% und 25% Indium eine deutlich andere Morphologie als bei den Schichten mit 45–65% Indium. Letztere wiesen im TEM-Bild eine deutlich homogenere Morphologie auf, wobei aber mit steigendem Indiumgehalt eine starke Zunahme von Versetzungen zu erkennen war. Die $\text{In}_{65}\text{Al}_{35}\text{As}$ -Schicht war fast vollständig von Versetzungen durchsetzt und die Schichtstruktur stark gestört. Im Gegensatz zu den Schichten des zweiten Bereiches liegt der Beugungsreflex der 530 nm dicken $\text{In}_{75}\text{Al}_{25}\text{As}$ -Schicht im Rahmen der Messgenauigkeit ebenfalls bei der berechneten Position für eine nominelle Schichtstöchiometrie. Diese Beobachtung ist konsistent mit der Annahme einer vollständigen Relaxation der Schicht aufgrund der großen Dicke von mehr als $0,5 \mu\text{m}$. Diese $\text{In}_{75}\text{Al}_{25}\text{As}$ -Schicht bildet das virtuelle Substrat für den InAs-HEMT und weist aufgrund der Relaxation selber keine Verspannung mehr auf. Auffallend ist eine Verbreiterung des Reflexsignals im Bereich von $\theta = 21,05^\circ$ – $21,35^\circ$, die sich nicht weiter in anteilige Signalmaxima auflösen lässt. Möglicherweise liegt eine Überlagerung mit einem Beugungssignal aus der oberen $\text{In}_{75}\text{Al}_{25}\text{As}$ -Deckschicht vor, welche oberhalb des pseudomorph verspannten InAs-Kanals liegt.

270

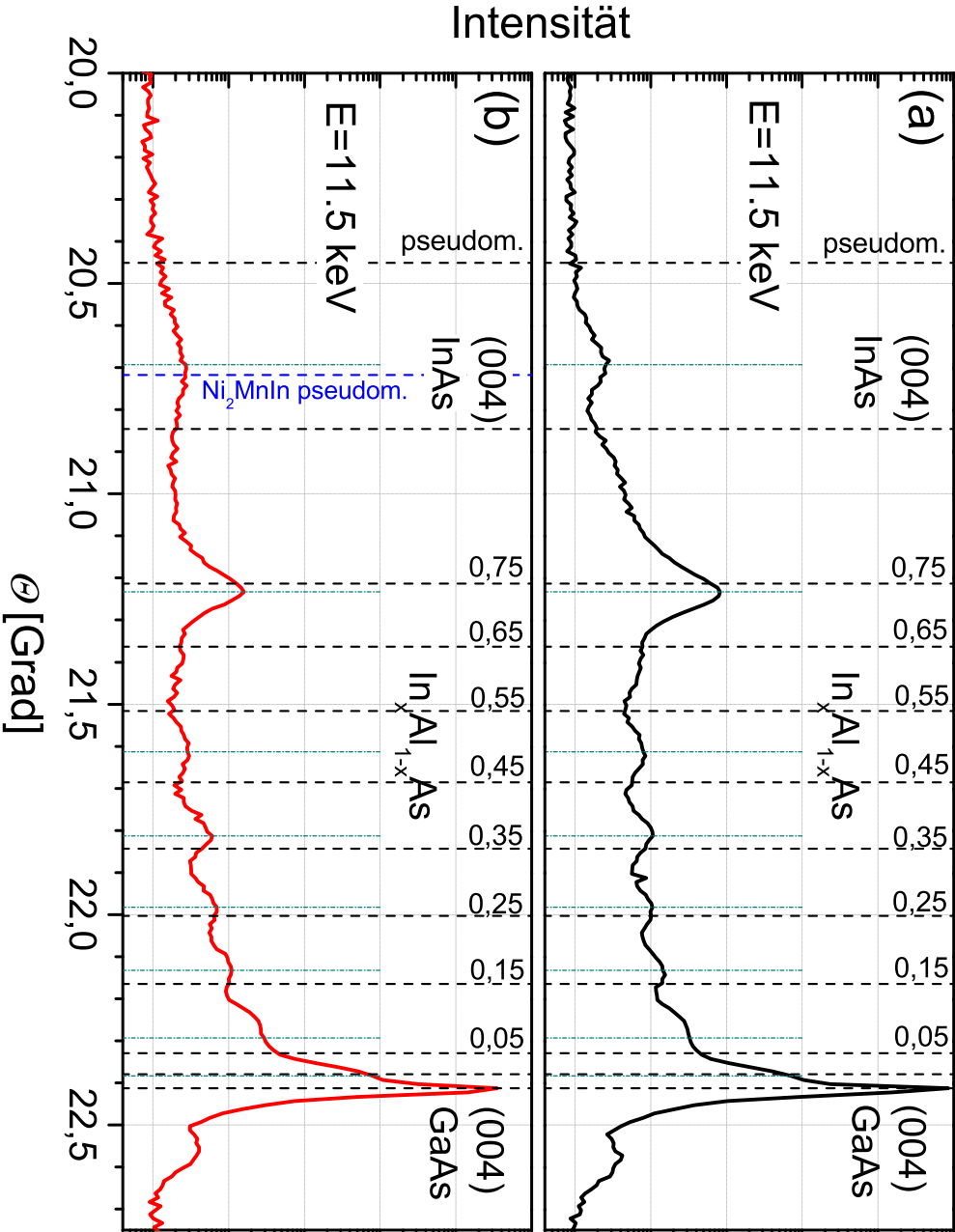


Abbildung 4.31: Vergrößerte Darstellung der XRD-Detailsspektren. (a) Referenzspektrum, aufgenommen am unbedampften InAs-HEMT mit metamorphem Puffer. (b) XRD-Spektrum nach dem Wachstum einer 50 nm dicken Ni_2MnIn -Schicht bei 300°C direkt im Anschluss der HEMT-Präparation. Die berechneten Reflexlagen für den metamorphen $\text{In}_x\text{Al}_{1-x}\text{As}$ -Puffer unter Annahme nomineller Stöchiometrie sind mit schwarzen Strichlinien gekennzeichnet und die gemessenen Signalmaxima mit grünen Strichpunktlinien. Die Position der beobachteten Reflexmaxima ändert sich durch das Heuslerschichtwachstum nicht. Lediglich die Intensität der $\text{In}_x\text{Al}_{1-x}\text{As}$ -Reflexe nimmt stark ab. Das Signal der verspannten InAs-Schicht zeigt hingegen bei konstanter Intensität nur eine starke Zunahme in der Halbwertsbreite. Die berechneten Reflexlagen für pseudomorph verspanntes und vollständig relaxiertes InAs sind links und rechts des beobachteten InAs-Reflexes mit schwarzen Strichlinien markiert. Die berechnete Reflexlage von pseudomorph verspanntem Ni_2MnIn ist mit einer blauen Strichlinie gekennzeichnet.

Der Reflex des 4 nm dicken InAs-Kanals bei $\theta = 20,69^\circ$ liegt zwischen den erwarteten 2θ -Positionen für pseudomorph verspanntes InAs auf $\text{In}_{75}\text{Al}_{25}\text{As}$ -Substrat und relaxiertem InAs. Die Verschiebung der verspannten InAs-Schicht gegenüber seiner ideal pseudomorph verspannten Position bei $\theta = 20,45^\circ$ lässt auf den Einbau von Versetzungen schliessen, deren Anzahl aber noch nicht ausreicht für eine vollständige Relaxation der Schicht. Eine vollständige Relaxation des InAs-Kanals auf den Wert für unverspanntes InAs-Volumenmaterial ließe eine Reflexlage bei $\theta = 20,85^\circ$ erwarten. Die recht hohe Halbwertsbreite des Reflexmaximums von $0,13^\circ$ liegt somit nicht in einer hohen Versetzungsdichte begründet, sondern ist mutmaßlich durch eine hohe Verspannung des gesamten Kristallgitters verursacht. Der InAs-Kanal ist, in Übereinstimmung mit dem Probandesign, pseudomorph verspannt.

Das Beugungsspektrum einer Ni_2MnIn /HEMT-Probe nach dem Aufdampfen einer 50 nm dicken Heuslerschicht ist in Abbildung 4.31(b) dargestellt. Die Probenstruktur entspricht der in Abbildung 4.28 gezeigten Schichtfolge. Der direkte Vergleich mit der HEMT-Referenzmessung ergibt, dass alle am unbedampften HEMT sichtbaren Reflexe bei der Heusler/HEMT-Probe an den gleichen Positionen beobachtet werden können. Kein einziger Reflex ist verschoben. Die Ni_2MnIn -Schicht erzeugt somit weder eine zusätzliche pseudomorphe Verspannung im metamorphen Puffer, noch löst sie eine Relaxation vormals mutmaßlich verspannter $\text{In}_x\text{Al}_{1-x}\text{As}$ -Schichten aus. Die Signalintensität des $\text{In}_{75}\text{Al}_{25}\text{As}$ -(004)-Reflexes sinkt um eine Größenordnung. Dieser Intensitätsverlust ist auch bei den $\text{In}_x\text{Al}_{1-x}\text{As}$ -Reflexen bis zu einem Indiumgehalt von 15% mit abnehmendem Einfluss erkennbar. Die Reflexposition des verspannten InAs-Kanals liegt unverändert zwischen den Werten für pseudomorph verspanntem und relaxiertem InAs. Daher kann eine zusätzliche Relaxation des verspannten InAs-Kanals ebenfalls ausgeschlossen werden. Hingegen ist eine starke Reflexverbreiterung des InAs-Signals zu beobachten, ohne eine erkennbare Abnahme der zuvor beobachteten Signalthöhe. In einkristallinen Materialien wird eine Verbreiterung der Halbwertsbreite bei gleichzeitiger Abnahme des Intensitätsmaximums üblicherweise mit einer Zunahme der Versetzungsdichte assoziiert. Die Versetzungsdichte innerhalb des InAs-Kanals scheint in diesem Fall aber nicht ausreichend, um eine Relaxation des Kristallgitters unter Verlust der durchgängigen Gitteranpassung zum metamorphen Puffer hervorzurufen. Zudem würde eine pseudomorph verspannte Ni_2MnIn -Schicht auf $\text{In}_{75}\text{Al}_{25}\text{As}$ ein Beugungssignal bei $\theta = 20,72^\circ$ erzeugen, welches sich mit dem beobachteten InAs-Reflex nahezu überlagert. Ebenfalls möglich wäre eine zum Probenrand hin leicht abnehmende Heuslerschichtdicke aufgrund der geringen maximalen Probengröße der Metallkammer, welche zu einer inhomogenen Verspannung des InAs-Kanals führen könnte. Die Ursache für die starke Verbreiterung des InAs-Reflexes bei konstanter Signalthöhe ist somit nicht eindeutig. Vermutet wird eine zusätzliche Verspannung der HEMT-Oberfläche beim pseudomorphen Heuslerwachstum, hervorgerufen durch die Gitterfehlpassung von $\delta = 1,1\%$ zwischen Heuslerschicht ($a = 0,6022$ nm) und dem virtuellem Substrat der $\text{In}_{75}\text{Al}_{25}\text{As}$ -Deckschicht ($a = 0,5957$ nm). Diese Verspannung kann zur lokalen Ausbildung von Versetzungen in der HEMT-Struktur führen, deren Versetzungs-

dichte innerhalb der 50 nm-Heusler/HEMT-Probe aber nicht für die Relaxation des verspannten InAs-Kanals ausreicht.

Kapitel 5

Schlussfolgerungen

5.1 Polykristalline Heuslerschichten

Ni₂MnIn-Filme

Beim Wachstum von 30 nm dicken freistehenden Ni₂MnIn-Filmen in einem Temperaturbereich von 80 °C bis 340 °C wird bei allen Proben eine durchschnittliche Korngröße von 20–25 nm beobachtet. Die morphologische Ausbildung des feinkristallinen Gefüges zeigt hierbei keine Abhängigkeit von der Substrattemperatur der unterliegenden Kohlenstoffmembran. In der Arbeit von Kurfiß [Kur05b] wurde für das Ko-Verdampfen von Nickel und einer MnIn-Legierung berichtet, dass beim Wachstum von freistehenden Ni₂MnIn-Filmen mit Substrattemperaturen von 200 °C bis 400 °C die L2₁-Phase auftritt. Die Bildung der L2₁-Phase in Abhängigkeit von der Substrattemperatur kann hier für das MBE-Wachstum von freistehenden Ni₂MnIn-Filmen nicht bestätigt werden. Eine Tendenz zur verstärkten Ausbildung von Fremdphasen oberhalb 300 °C Wachstumstemperatur bei Abweichungen größer einem Atomprozent von der exakten Ni₂MnIn-Stöchiometrie ist ebenfalls nicht erkennbar.

Ni₂MnIn/Au/Si

XRD-Messungen an der 50 nm dicken Ni₂MnIn/Au/Si-Probe bestätigen ein polykristallines Wachstum der auf Au/Si(001)-Substrat deponierten Heuslerschicht. Anhand der XRR-Untersuchungen kann bei einer Wachstumstemperatur von 300 °C die Bildung einer Zwischenschicht nachgewiesen werden, welche mit 20 nm bereits mehr als ein Drittel der Gesamtschichtdicke aufweist. Die Annahme eines Au-Konzentrationsgradienten ist konsistent mit der notwendigen Definition einer Reaktionszone zwischen der Ni₂MnIn- und Goldschicht im XXR-Lagenmodell. Die beobachtete Vergrößerung der Ni₂MnIn-Gitterkonstante im Vergleich zum Literaturwert kann vor diesem Hintergrund mit einer Diffusion der Goldatome in die Heuslerschicht erklärt werden.

Die höchste mittels PCAR gemessene Spinpolarisation der polykristallinen Heuslerschichten auf Gold von 42% wird bei der 60 nm dicken, bei 300 °C gewachsenen Probe beobachtet. Eine Erhöhung der Substrattemperatur auf 320 °C führt bereits

zu einer Abnahme der Spinpolarisation auf 32%. Bei Verringerung der Schichtdicke auf 50 nm, aber konstanter Wachstumstemperatur von 300 °C, weist die Ni₂MnIn-Heuslerschicht ebenfalls eine etwa 10% geringere Spinpolarisation auf. Dies liegt eventuell in einem strukturellen Einfluss der beobachteten Reaktionszone zwischen Ni₂MnIn und Gold begründet, welcher bei den elektrischen Messungen der dünneren 50 nm-Heuslerschicht stärker zum Tragen kommt. Bei einer Erhöhung der Substrattemperatur auf 320 °C lässt sich eine verstärkte Diffusion von Au in Ni₂MnIn erwarten. Bei Untersuchung der polykristallinen Ni₂MnIn/Au/Si-Proben mit SGME zeigt hingegen die 177 nm dicke, bei 320 °C gewachsene Probe eine höhere Spinpolarisation als die 60 nm dicke Probe, welche bei 300 °C hergestellt wurde. Da die Eindringtiefe bei der Magneto-Optischen Ellipsometrie im Bereich von 20 nm liegt, ist möglicherweise das bei SGME-Messungen geprüfte Volumen der 177 nm dicken Ni₂MnIn-Heuslerschicht aufgrund der großen Schichtdicke noch frei von diffundierten Goldatomen. Der Einfluss der Au-Diffusion auf die mittels PCAR und SGME bestimmte Spinpolarisation der polykristallinen Ni₂MnIn-Proben bedarf weiterer systematischer Untersuchungen.

5.2 Epitaktische Heuslerschichten

Ni₂MnIn/InAs

Bei den epitaktischen Heuslerschichten auf InAs(001) bestätigen die hier durchgeführten Experimente die temperaturabhängige Bildung einer durchmischten Reaktionszone an der Schicht/Substrat-Grenzfläche, welche durch Arsendiffusion aus dem Substrat in die Heuslerlegierung hervorgerufen wird [VR01, Xie05, Bra07]. Der Diffusionsprozess besitzt eine Aktivierungsenergie von 0,7 eV und kann als Zwischengitterdiffusion von Arsen identifiziert werden. Dieser Durchmischungsprozess gewinnt bei zunehmenden Temperaturen an Bedeutung und dominiert die Eigenschaften der deponierten Heuslerschichten bei einer Substrattemperatur oberhalb von 300 °C. Aufgrund dieser Grenzflächenreaktion ist der Bereich der optimalen Wachstumstemperatur bei einer direkten Deposition von Ni₂MnIn-Schichten auf InAs(001) auf Temperaturen unterhalb 320 °C begrenzt.

Die kristallographische Orientierung der Heuslerschicht relativ zum Substrat kann mittels der durchgeführten Elektronen- und Röntgenbeugungsexperimente bestimmt werden. Die einkristallinen 60 nm- und 100 nm-Heuslerschichten, welche bei 250 °C gewachsen wurden, zeigen eine optimale Gitterpassung entlang den kristallographischen Achsen des Substrates in Übereinstimmung mit dem klassischen Modell für pseudomorphes Wachstum verspannter Schichten auf InAs(001) [Mat74]. Im Gegensatz dazu sind die Kristallachsen der bei und oberhalb 300 °C gewachsenen Heuslerschichten nicht parallel zu den Achsen der InAs-Elementarzelle des Substrates orientiert. Die Ni₂MnIn-Elementarzelle ist jeweils entlang der [001]- und der [1 $\bar{1}$ 0]-Achse um 45° rotiert, was zu einer <1 $\bar{1}$ 0>-Orientierung der Schicht relativ zum Substrat führt. Bei beiden kristallographischen Orientierungen des Heuslerkristalls liegt die beobachtete Gitterkonstante für Ni₂MnIn nahe dem Literaturwert von

0,6022 nm für die L₂₁-Phase, bzw. 0,3011 nm für die B2-Phase [JCP94, Kur03].

Kristallographische Orientierung

Zur Veranschaulichung der gewonnenen Erkenntnisse ist es hilfreich, ein Modell zu entwickeln, welches die morphologischen Veränderungen und die strukturelle Kristallorientierung in Abhängigkeit von der Substrattemperatur wiedergibt. In Abbildung 5.1 sind die morphologischen und strukturellen Eigenschaften, welche unter dem Einfluss der Wachstumstemperatur bei konstanter nomineller Schichtdicke im Ni₂MnIn/InAs(001)-Materialsystem auftreten, am Beispiel der 20 nm-Serie aufgezeigt. Die Schichtdicken des Modells basieren auf den Daten aus Tabelle 4.2.

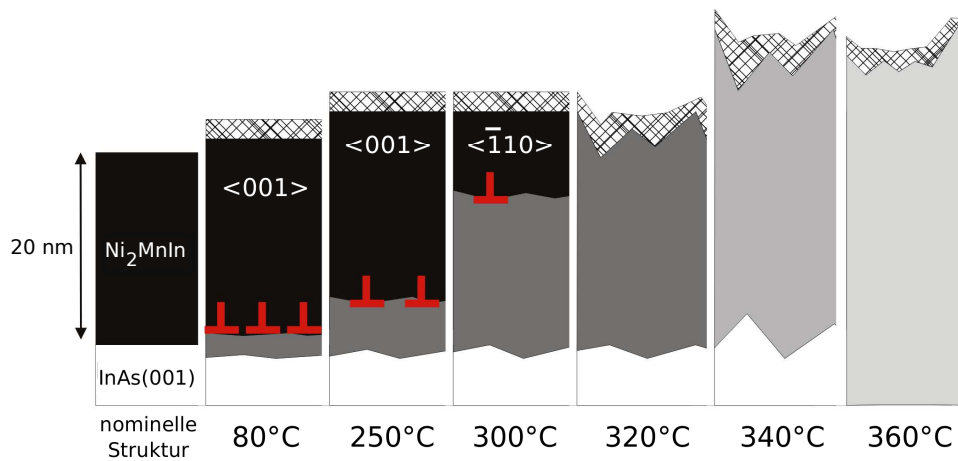


Abbildung 5.1: Modell für 20 nm dicke Ni₂MnIn/InAs-Schichten, welches die morphologischen und strukturellen Umwandlungen in Abhängigkeit von der Wachstumstemperatur grafisch wiedergibt. *Weiß*: InAs(001)-Substrat, *schwarz*: stöchiometrische Heuslerphase (L₂₁ oder B2), *dunkelgrau*: durchmischte Reaktionszone, *grau*: durchmischte Reaktionszone mit höherer Arsenkonzentration, *hellgrau*: vollständig durchmischter Bereich ohne erkennbare Schichtstruktur. Die Deckschicht mit Kreuzschraffur repräsentiert die Oxidschicht und die roten Markierungen geben die Versetzungsdefekte der Heuslerphase wieder. Die dargestellten Schichtdicken sind relativ zu der links dargestellten nominellen Schichtdicke an aufgedampfter Heuslerlegierung skaliert.

Die bei 80 °C hergestellten Heuslerschichten haben eine glatte Oberfläche und weisen aufgrund der geringen Arsendiffusion keine ausgeprägte Reaktionszone auf, dafür aber eine hohe Defektdichte im Kristall. Bei 250 °C erfolgt das Wachstum einer Heuslerschicht auf der nur wenig durchmischten Schicht/Substrat-Grenzfläche mit (001)-Orientierung relativ zum InAs(001)-Substrat. Im Gegensatz dazu tritt eine (1 $\bar{1}$ 0)-Orientierung der Heuslerschicht ab einer Temperatur in Erscheinung, bei welcher die Bildung einer durchmischten Reaktionszone aufgrund erhöhter Arsendiffusion bereits einsetzt. Hierbei scheint die Reaktionszone selber eine Art Wachstumskeim für das gitterangepasste Ni₂MnIn-Wachstum mit rotierter Einheitszelle

darzustellen. Die resultierende kristallographische Verzerrung der $(\bar{1}\bar{1}0)$ -orientierten Ni_2MnIn -Einheitszelle muss sich dabei von dem Fall einer pseudomorph verspannten Schicht unterscheiden. Der zugrundeliegende Mechanismus zum Abbau der Verspannungsenergie ist bisher noch unbekannt. Oberhalb von 300°C Wachstumstemperatur nimmt die Defektdichte weiter ab. Gleichzeitig setzt aber eine starke Arsendiffusion ein, welche zur Ausbildung einer ausgedehnten Reaktionszone führt. Für dünne Schichten, wie im dargestellten Fall einer 20 nm dicken Heuslerschicht, übersteigt die Größe der Reaktionszone bereits bei 320°C die nominelle Heuslerschichtdicke und führt letztendlich ab 360°C zu einer vollkommenen Auflösung jeglicher Schichtstruktur.

Kristallographische Phase

Unabhängig von der kristallographischen Orientierung der Heuslerschicht zum Substrat, dargestellt in Abbildung 5.1 kann beim Heuslerwachstum die B2- oder die L_{2_1} -Phase auftreten. Die Bildung der jeweiligen Phase wird in komplexer Weise von der Wachstumstemperatur und der deponierten Schichtdicke beeinflusst. Ein Nachweis der kristallographischen Phase kann entweder direkt über Untersuchungen mittels Elektronenbeugung im TEM oder indirekt über den Vergleich magnetischer und Magneto-Optischer Eigenschaften mit Literaturwerten erfolgen. Ein direkter Nachweis für die Existenz der kristallographischen L_{2_1} -Phase konnte mittels Elektronenbeugung an einer 60 nm dicken, bei 300°C gewachsenen Heuslerschicht erbracht werden. Bei TEM-Untersuchungen an einer nur 20 nm dicken, ebenfalls bei einer Substrattemperatur von 300°C deponierten Heuslerschicht wurde hingegen die Kristallisation in der B2-Phase beobachtet.

Im Folgenden werden die Curietemperaturen der auf $\text{InAs}(001)$ deponierten 100 nm dicken Ni_2MnIn -Schichten für verschiedene Wachstumstemperaturen verglichen. Die hohe Curietemperatur von $T_C = 315\text{ K}$ der bei 300°C gewachsenen Heuslerschicht liegt im Bereich des Literaturwertes von $T_C = 314\text{--}330\text{ K}$ für Ni_2MnIn in kristallographischer L_{2_1} -Phase [Web69, Hua04, Kur05a]. Dies deutet darauf hin, dass die strukturellen Daten der bei 300°C hergestellten 100 nm-Probe mit dem Auftreten der L_{2_1} -Phase zusammenhängen. Ausgehend von dieser Annahme lassen sich die magnetischen Eigenschaften der oberhalb und unterhalb von 300°C Substrattemperatur gewachsenen Proben entsprechend einordnen. Die Abnahme der Übergangstemperatur T_C der bei 80°C und 250°C gewachsenen Schichten hängt mit einem strukturellen Unterschied zur L_{2_1} -Phase zusammen. Für das MBE-Wachstum von Ni_2MnIn im Bereich von 80°C und 250°C berichteten Xie *et al.* die Bildung der B2-Phase. Die Curietemperatur dieser B2-Phase liegt bei $T_C \approx 170\text{ K}$ [Xie01, Xie05]. Die bei 80°C gewachsene Probe weist ein T_C auf, welches leicht unterhalb dieses Literaturwertes liegt. Als Grund hierfür wird die hohe Defektdichte vermutet (siehe Abbildung 4.14). Die 250°C -Probe zeigt eine Curietemperatur T_C , welche zwischen den $T_C(\text{B2})$ - und $T_C(\text{L}_{2_1})$ -Literaturwerten liegt. Dies deutet auf die Ausbildung einer Mischphase zwischen der B2- und L_{2_1} -Kristallstruktur hin. Alle 100 nm dicken Heuslerschichten, die zwischen 320°C und 360°C hergestellt wurden, liefern einen Wert für die Curietemperatur von $T_C = 285\text{ K}$, der unterhalb des Literaturwertes

der reinen L_{2_1} -Phase liegt. Die morphologischen Untersuchungen ergeben für das Wachstum mit Substrattemperaturen oberhalb von $300\text{ }^\circ\text{C}$ ein starkes Ansteigen der Arsendiffusion vom InAs-Substrat in die Heuslerschicht unter Ausbildung einer Reaktionszone. Mit steigender Substrattemperatur vergrößert sich diese Reaktionszone zu Lasten der Heuslerschicht. Die geringere Curietemperatur beim Probenwachstum im Temperaturbereich oberhalb $300\text{ }^\circ\text{C}$ wird daher auf die Arsendiffusion zurückgeführt.

Die Analyse der magnetischen Eigenschaften korrespondiert mit dem Ergebnis der SGME-Untersuchungen. Die Betrachtung der integrierten ε_{1xy} -Werte erlaubt einen Vergleich der Spinpolarisation für verschiedene Wachstumstemperaturen der 100 nm dicken Heuslerschichten. In der Auftragung der integrierten ε_{1xy} -Werte in Abbildung 4.25 treten die höchsten Werte für Spinpolarisation bei Heuslerproben mit einer Wachstumstemperatur von $250\text{ }^\circ\text{C}$ und $320\text{ }^\circ\text{C}$ auf. Oberhalb $320\text{ }^\circ\text{C}$ nimmt die Spinpolarisation in Übereinstimmung mit dem morphologischen Wachstumsmodell wieder stark ab. Die an einkristallinen Heuslerproben bestimmten integrierten ε_{1xy} -Werte liegen deutlich oberhalb denen, welche an vergleichbaren polykristallinen Ni_2MnIn -Schichten auf $\text{Au/Si}(001)$ ermittelt wurden.

Ein Anstieg der Curietemperatur in Abhängigkeit von der Heuslerschichtdicke wird bei der Untersuchung von 20 nm , 60 nm und 100 nm dicken Heuslerschichten festgestellt, die bei $300\text{ }^\circ\text{C}$ auf $\text{InAs}(001)$ deponiert wurden. Diese Tendenz korrespondiert mit der im TEM beobachteten Phasenumwandlung der Kristallstruktur von B2 zu L_{2_1} für dickere Ni_2MnIn -Schichten. Parallel wird mit zunehmender Heuslerschichtdicke auch ein Anstieg der Spinpolarisation in SGME-Messungen festgestellt. Auffallend ist, dass die Curietemperatur und die Spinpolarisation mit der Schichtdicke schrittweise ansteigen, während die Magnetisierung der Filme, abgesehen vom dünnsten (20 nm) Film, nahezu konstant bei $\sim 175\text{ emu/cm}^3$ liegt. Der Anstieg von Curietemperatur und Spinpolarisation kann mit einer unterschiedlichen Phase je nach Schichtdicke der Ni_2MnIn -Heuslerschichten erklärt werden. Bei der Schichtdickenabhängigkeit der kristallographischen Phase, der Curietemperatur und der Spinpolarisation wird ein Zusammenhang mit dem Phänomenen des Abbaus der elastischen Verspannung von einkristallinen Heuslerschichten vermutet. Der Einfluss der elastischen Verspannungsenergie als mögliche Triebkraft für die beobachtete B2-zu- L_{2_1} -Phasenumwandlung bei dickeren Heuslerschichten bedarf noch weiterer Untersuchungen.

Als Ergebnis der strukturellen, magnetischen und elektrischen Untersuchungen kann für die optimale Wachstumstemperatur von Ni_2MnIn -Schichten auf $\text{InAs}(001)$ in der erwünschten L_{2_1} -Phase ein Bereich zwischen $250\text{ }^\circ\text{C}$ und $300\text{ }^\circ\text{C}$ eingegrenzt werden. Unterhalb dieses Temperaturfensters liegt die Heuslerlegierung ausschließlich in der mit ungünstigeren magnetischen und elektrischen Eigenschaften behafteten B2-Phase vor. Lediglich die geringere Interdiffusion ist ein Vorteil kleinerer Wachstumstemperaturen, aber verbunden mit einer hohen Defektdichte im Kristall. Oberhalb der Grenztemperatur von $300\text{ }^\circ\text{C}$ beginnt die Degradation der Schichten aufgrund stark zunehmender Grenzflächenreaktion, wie in Abbildung 5.1 dargestellt. Hohe Sub-

strattemperaturen bei der Deposition von Heuslerschichten bewirken eine relativ geringe Defektdichte; gleichzeitig setzt aber eine starke Arsendiffusion ein, welche zur Ausbildung einer ausgedehnten Reaktionszone führt. Daher wird eine optimale Wachstumstemperatur in einem Fenster zwischen 250 °C und 300 °C erwartet, in dem die Temperatur hoch genug ist, um bei ausreichender Schichtdicke die Entstehung der gewünschten L₂₁-Phase zu ermöglichen, zugleich aber niedrig genug, um die Arsendiffusion zu minimieren. Eine Diffusionsbarriere zwischen InAs-Substrat und Heuslerschicht könnte dazu beitragen, die Bildung einer Reaktionszone zu unterdrücken, um das Temperaturfenster hin zu höheren Temperaturen zu erweitern. So wurde zum Beispiel MgO als Diffusionsbarriere beim Wachstum der Heuslerlegierung Co₂MnSi auf GaAs bereits erfolgreich eingesetzt [Uem08]. Ebenfalls untersucht werden sollten die Auswirkungen des Wachstums mit einer Substrattemperatur, welche im Verlauf des Wachstumsprozesses von einer niedrigeren Wachstumstemperatur hin zu dem optimalen Temperaturfenster für die Bildung der L₂₁-Phase ansteigt.

Ni₂MnIn/HEMT

Das Wachstum einer 50 nm dicken Ni₂MnIn-Schicht auf der Oberfläche eines InAs-HEMT mit metamorphem InAlAs-Puffer auf GaAs hat keine Verschlechterung der morphologischen und strukturellen Eigenschaften der Halbleiter-Heterostruktur zur Folge, welche hier als virtuelles Substrat dient. Untersuchungen mittels XRD an der Heusler/HEMT-Hybridprobe ergeben, dass die Schichtstruktur des HEMT mit verspanntem InAs-Kanal und metamorphem Puffer intakt ist. Alle sichtbaren Reflexe können im Rahmen der berechneten nominellen Reflexlagen zugeordnet werden und treten sowohl in der Referenzprobe als auch bei der Heusler/InAs-HEMT-Hybridstruktur an identischen Positionen und ohne erkennbare zusätzliche Relaxation auf. Lediglich eine Verringerung der Signalintensität der In_xAl_{1-x}As-Schichten ist erkennbar. Der beobachtete (004)-Reflex des verspannten InAs-Kanals liegt zwischen den Werten für pseudomorph auf In₇₅Al₂₅As verspanntem und vollständig relaxiertem InAs(001). Die Ursache für eine Verbreiterung dieses InAs-Reflexes bei gleichzeitig konstanter Signalintensität nach der Ni₂MnIn-Deposition ist derzeit noch unbekannt. An der Grenzfläche zwischen Ni₂MnIn-Schicht und In₇₅Al₂₅As-Deckschicht weist ein Vergleich der XRR-Messungen mit einem unbedampften Referenzprobenstück auf eine Verschlechterung der Qualität hin. Transportmessungen an der Referenzprobe, die ebenfalls für die Dauer des Heuslerwachstums einer Substrattemperatur von 300 °C ausgesetzt war, ergeben Beweglichkeiten im Bereich von 100 400 cm²V⁻¹s⁻¹ und eine 2D-Ladungsträgerdichte von 5,5 × 10¹¹ cm⁻². Dieses Ergebnis liegt in der erwarteten Größenordnung für InAs-HEMTs und zeigt, dass die zusätzliche Temperaturbehandlung keinen negativen Einfluss auf die elektrisch aktiven Schichten der HEMT-Struktur ausübt.

In den XRD-Spektren der Heusler/InAs-HEMT-Hybridstruktur findet sich kein Hinweis auf ein polykristallines Wachstum von Ni₂MnIn. Dies wird daraus geschlossen, dass ein Signal des bei polykristallinem Wachstum stärksten (220)-Reflexes nicht beobachtet wird. Ein Beugungsreflex, wie er für (001)-orientiertes, aber voll-

ständig relaxiertes Ni_2MnIn bei $\theta = 20,98^\circ$ erwartet wird, ist ebenfalls nicht erkennbar. Bei einem pseudomorph verspannten Wachstum der Heuslerschicht auf der $\text{In}_{75}\text{Al}_{25}\text{As}$ -Deckschicht wird es im XRD-Spektrum zu einer Überlagerung mit dem breiten Beugungsreflex des ebenfalls pseudomorph verspannten InAs-Kanals kommen. Aufgrund der großen Breite des InAs-Signals ist ein möglicherweise vorhandener Ni_2MnIn -Reflex daher nicht auflösbar. Die Gitterfehlpassung von $\delta = 1,1\%$ für $\text{Ni}_2\text{MnIn}/\text{In}_{75}\text{Al}_{25}\text{As}$ und die Schichtdicke der deponierten Heuslerschicht von $d = 50$ nm liegen in einem Bereich, in welchem pseudomorph verspanntes Wachstum noch ohne Relaxation durch Versetzungsbildung möglich ist [Mat74, Edi95, Peo85]. Vor dem Hintergrund eines möglicherweise nicht auflösbaren Ni_2MnIn -Beugungsreflexes erscheint eine definitive Schlussfolgerung schwierig. Dennoch wird aufgrund aller Beobachtungen ein epitaktisches Wachstum der Heuslerschicht vermutet.

In ersten Untersuchungen der Probenmagnetisierung M in Abhängigkeit vom externen Magnetfeld H mittels SQUID-Magnetometrie wurde eine große Squareness der gemessenen Hysteresekurve beobachtet. Diese stark rechteckige Kurvenform der Magnetisierung einhergehend mit einer hohen Koerzitivfeldstärke wird durch einen abrupten Wechsel der magnetischen Domänenausrichtung hervorgerufen. Im Allgemeinen wird ein solches Verhalten mit einer hohen Kristallanisotropie assoziiert. Diese Anisotropie ist ein weiterer Hinweis auf ein möglicherweise verspanntes epitaktische Wachstum, verbunden mit einem anisotropen lateralem Spannungsabbau innerhalb der Ebene, wie er bereits für SiGe/Si- und $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Strukturen nachgewiesen wurde [Löh03, Jon96, Ram95]. Eine erste Abschätzung der Curietemperatur lieferte einen Wert von $T_C \approx 265$ K, was auf eine Mischung von B2- und L2₁-Phase hindeutet. Zukünftige Untersuchungen mittels TEM sind notwendig, um die kristallographische Phase und Orientierung der deponierten Ni_2MnIn -Schicht eindeutig zu bestimmen. Die Verwendung eines energiegefilterten TEMs würde zudem die Überprüfung der nominellen Stöchiometrie von Heuslerschicht und Puffer ermöglichen, sowie Aufschluss über mögliche Diffusionsprozesse geben.

Kapitel 6

Technische Weiterentwicklung

Im weiteren Verlauf des Dissertationsprojektes entstand der Wunsch nach optimierter Umsetzung einer speziell für die Herstellung metallischer Legierungen entwickelten Wachstumskammer. Neben der Integration der bereits etablierten *in-vacuo* Untersuchungsmethoden in den Rezipienten sollten die technischen Voraussetzungen für die Adaption einer *in-situ* Analytik geschaffen werden. In diesem Kapitel wird zuerst die Motivation für die Neukonstruktion näher erläutert. Im Anschluss werden Konzeption und Konstruktion der neuen Metall-MBE detailliert beschrieben. Danach wird die Realisierung der selbstgefertigten Vakuumkomponenten kurz vorgestellt. Die bei der Planung eines speziell angepassten MBE-Probenmanipulators berücksichtigten Ziele und dafür gewählten Lösungen runden die angestoßene technische Weiterentwicklung zur Erforschung metallischer Legierungen ab.

6.1 Metall-MBE

6.1.1 Motivation und Anforderungen

Die Möglichkeit parallel zum derzeitig ausgewählten Materialsystem Ni_2MnIn eine weitere Heuslerlegierung aus anderen Legierungskomponenten ohne Wechsel der Quellenmaterialien herzustellen ist eine der grundlegenden Anforderung bei der Planung der neuen Metall-MBE. Zudem sollen Diffusionsbarrieren sowie Deckschichten innerhalb der Metall-Wachstumskammer aufgedampft werden können. Daher wird eine Erhöhung der Anzahl der Verdampferquellen auf mindestens acht individuelle Effusionszellen angestrebt. Zusätzlich wird als neunte Verdampferzelle die Verwendung eines Elektronenstoßverdampfer für eine hochschmelzende Legierungskomponente in Betracht gezogen. Mit diesem lässt sich eine höhere Flussrate erzielen als mit einer konventionellen Hochtemperatur-Effusionszelle. Dies ermöglicht eine zeitliche Verkürzung des Aufdampfprozesses zusammen mit grundlegenden Wachstumsuntersuchungen bei höheren Gesamtflussraten. Neben weiteren konstruktiven Merkmalen wie eine Wasserkühlung aller Zellenports und eine bessere Vakuumherzeugung mittels zusätzlicher Ionenpumpe und Stickstoffkühlfalle soll durch die Verwendung pneumatischer Linearshutter ein automatisierter und programmgesteuerter Wachs-

tumsprozess realisiert werden. Eine wichtige Motivation für die Neuentwicklung war die Erweiterung und Optimierung der Analysemöglichkeiten. So sollen bereits vorhandene Systeme wie LEED-Optik und Augerelektronenspektrometer direkt in die Wachstumskammer integriert werden, während gleichzeitig der Rezipient um neue *in-situ* Analytik bestehend aus einem RHEED-System sowie einem Crossbeam-Massenspektrometer erweitert wird. Die parallele Flussratenbestimmung aller Legierungskomponenten mittels des Crossbeam-Massenspektrometers soll die notwendige Vorbereitungszeit für das Probenwachstum von derzeit 4–5 Stunden deutlich minimieren. Durch die Möglichkeit der *in-situ* Flussratenkontrolle von vier Effusionszellen und dem Elektronenstoßverdampfer während des Wachstumsprozesses wird zudem eine Optimierung beim Erzielen der nominellen Probenstöchiometrie erwartet. Zur Sicherstellung eines großen stöchiometrisch homogenen Bereiches muss eine Probenrotation implementiert werden. Im bisherigen Aufbau war die erzielbare Probengröße durch Kammergeometrie und Blendenmechanismus stark eingeschränkt. Eines der Entwicklungsziele ist eine bedampfte Probengröße von mindestens 20 cm^2 , um die Ausbeute an Probenmaterial je Wachstumsprozess für eine nachgelagerte lithographische Herstellung von Bauelementen zu erhöhen. Gleichzeitig ist ein ungewünschtes Bedampfen der MBE-Probenträger zu verhindern, damit auch bei wiederholten Heusler/Halbleiter-Hybrid-Präparationsprozessen eine Verschleppung der aufgedampften Materialien in die III/V-Wachstumskammer ausgeschlossen werden kann. Maßgeblich bei der Planung der MBE ist zudem eine Optimierung der Technik in dem Sinne, dass eine Wartung möglichst leicht erfolgen kann, d.h. ohne umfangreiche Demontage von Einzelteilen und ohne innerhalb des Rezipienten auszuführende Arbeiten. Hierfür werden als Ganzes demontierbare Baugruppen vorgesehen, deren Einzelteile auf großen Flanschen aufgebaut sind. Um eine möglichst lange Betriebsdauer zwischen den notwendigen Wartungsintervallen zu erzielen, wird bei der Auslegung beweglicher Teile auf eine solide Mechanik mit möglichst geringer Komplexität Wert gelegt.

6.1.2 CAD-Konstruktion

In Abbildung 6.1 ist die digitale Attrappe (DMU¹) der Metall-MBE dargestellt. Planung und Konstruktion erfolgten mit der 3D-CAD-Software *SolidWorks 2005* der Firma *Dassault Systèmes*, mit deren Hilfe bereits im frühen Entwicklungsstadium verschiedene Konzepte für die Integration von Anbauelementen und Geräten getestet werden konnten. Ein Ziel beim Entwurf des Rezipienten war ein kompakter Aufbau, resultierend in ein möglichst geringes zu pumpendes Kammervolumen. Mit einer Höhe von 575 mm und einem Durchmesser von 350 mm konnte für die MBE-Hauptkammer ein Volumen mit Flanschen von ca. 60 l erreicht werden. Zur Vakuumversorgung sollen, wie in Abbildung 6.1(a) dargestellt zwei Pumpensysteme Verwendung finden. Eine Turbopumpe *TMU 260* mit Steuergerät *TCP 121* der Firma *Pfeifer Vacuum*² ermöglicht aufgrund eines eigenen Vorvakuumsystems die

¹engl.: Digital Mock-Up

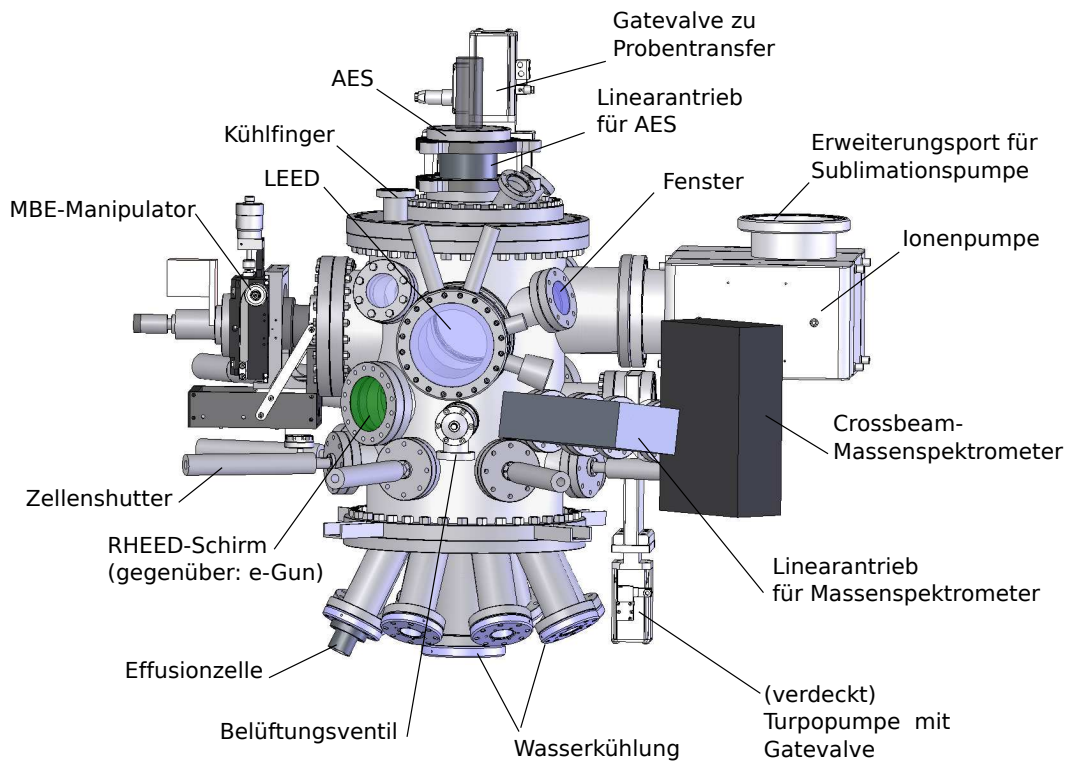
²ehemals: Balzers

autarke Evakuierung der MBE-Kammer vom Atmosphärendruck bis in den UHV-Bereich. Ein automatisch schließendes Gatevalve zwischen Kammer und Turbopumpe trennt im Falle eines Stromausfalls die MBE-Kammer von diesem Vakuumsystem, um eine unkontrollierte rückwärtige Belüftung beim Ausfall der Pumpen zu vermeiden. Im UHV-Bereich wird die Hauptkammer zusätzlich mit einer edelgasstabilen *Titan 300T* Ionenpumpe der Firma *Gamma Vacuum* gepumpt, welche zukünftig um eine *BoostiVac* Turbosublimationspumpe mit wasser- oder stickstoffgekühltem Cryoschild erweitert werden kann. Der geringe Betriebsstrom der Ionenpumpe nach Erreichen des UHV-Bereiches kann leicht durch eine Notstromversorgung abgesichert werden, um bei Stromausfall einen Erhalt des UHV trotz möglicherweise noch heißer Zellen zu gewährleisten. Abgesehen von der hohen Saugleistung liefert die Kombination der beiden komplementären Pumpsysteme die Möglichkeit, für einen Betriebszustand lediglich die geeignetere der beiden Pumpe zu verwenden. So ist, falls gewünscht, eine spätere Erweiterung der Augeruntersuchungen um die Tiefenanalyse von Oberflächen durch die Integration von Edelgas-Sputtern mittels einer rasternden Ionenstrahl-optik denkbar.

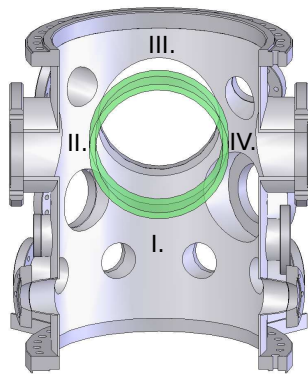
Der Zellenflansch mit acht kreisförmig angeordneten und einem zentralen Zellenport erlaubt den parallelen Betrieb von bis zu neun Verdampferquellen. Jede der Verdampferquellen sitzt hierbei in einem Kühlflansch, welcher mit dem MBE-Kühlkreislauf verbunden ist. Das Kühlmedium besteht aus einem Wasser/Glykolgemisch, welches durch einen Umwälzkühler der Firma *Huber* mit 1,6 kW (0°C) Leistung auf bis zu -10°C temperiert werden kann. Im mittleren CF63 Zellenport soll ein Elektronenstoßverdampfer *EBVV 63-4* der Firma *MBE-Komponenten* betrieben werden. Dieser ist mit einem integrierten manuellen Zellen shutter und einer xy-Ablenkung des Elektronenstrahls ausgestattet. Das Verdampfen der hochschmelzenden und reaktiven Materialien wie z.B. Nickel erfolgt aus 4 cm^3 BeO-Tiegeln, die in einem wassergekühlten Kupferofen eingelassen sind. Als Hochspannungsquelle findet ein 3 kW Netzteil der Firma *Thermionics* Verwendung, welches in einem werksseitigen Umbau auf das aktuelle Modell *150-0040* aufgerüstet wurde. Der Emissionsstrom kann extern über einen Analogeingang geregelt werden, über den eine aktive Steuerung der Aufdampftrate in Verbindung mit einem Massenspektrometer angestrebt wird. Ein gleichzeitig erworbener *XY S Sweepcontroller* ermöglicht ein gleichmäßiges Aufschmelzen metallischer Quellenmaterialien. Aufgrund der beschränkten Länge der Hochspannungsleitungen soll das Netzteil direkt unterhalb der MBE im Gestell eingebaut werden. Die Kondenswasserbildung an allen äußeren Kaltflächen der Metall-MBE sowie den Kühlmittelzuleitungen machen hierfür den sorgfältigen Aufbau einer Drainage sowie die sichere Abdichtung der unter der MBE liegenden Elektronik notwendig. Die Dampfstrahlen der acht Effusionszellen werden über pneumatisch betriebene Linear shutter ein- oder ausgeblendet. Die Shutterbleche selbst bestehen aus Tantal und sind zur Verminderung von Shuttertransienten beim Öffnen jeweils 30 mm oberhalb der Zellenöffnung angeordnet. Jeder Zellen shutter ist auf einem CF63 Flansch montiert und lässt sich zur Justage oder beim Ersatz des Shutterblechs leicht als gesamte Baugruppe demontieren. Das thermische Übersprechen der Zellen sowie Materialverschleppung soll durch den Einsatz

von Trennblechen aus Tantal zwischen den einzelnen Zellen minimiert werden.

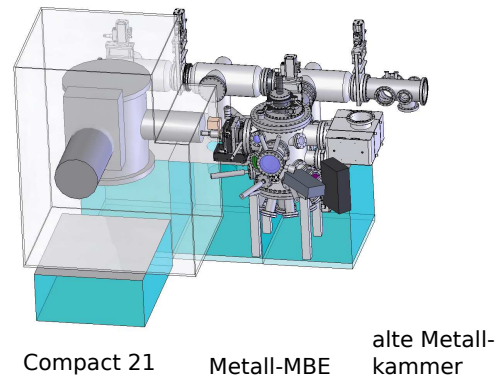
In Abbildung 6.1(b) ist ein Querschnitt durch die Metall-MBE dargestellt. Ausgehend von der Aufdampfposition kann die Probe in einem Kreissegment von -90° bis $+180^\circ$ rotiert werden. Dieser Manipulationskreis, den die Probenoberfläche auf einem Molyblock beschreibt, ist in Abbildung 6.1(b) als grüner, transparenter Ring dargestellt. Auf der Außenfläche dieses Rings ist für alle Analytik der Focus definiert, welcher bei der Geräteintegration zugrunde gelegt wurde. Einen Sonderfall stellt das wassergekühlte Crossbeam-Massenspektrometer *HAL XBS-114* von *Hiden* dar, welches 40 mm unterhalb in zwei hiervon abweichenden Positionen betrieben wird. Die Ansteuerung der Positionen geschieht über einen Linearvorschub *BLT45S-6* der Firma *McAllister*, der werkseitig mit einem Schrittmotor ausgestattet wurde. Die Ansteuerung soll mit der bereits in Betrieb genommenen Schrittmotorensteuerung erfolgen (siehe Abschnitt 2.1.2). Hierbei ersetzt der Antrieb des Massenspektrometers in Zukunft den des bisher eingesetzten Schwingquarzes. Für die Flussratenbestimmung der acht Effusionszellen und des Elektronenstoßverdampfers wird das Massenspektrometer genau mittig unterhalb der Probe positioniert (Blende und Hauptshutter liegen oberhalb des Massenspektrometers). Nach Einstellung der gewünschten stöchiometrischen Aufdampfraten wird das Massenspektrometer 75 mm zurückgefahren und neben der Probe positioniert. An dieser Stelle können immer noch die Flussraten von je zwei Effusionszellen links und rechts des Massenspektrometerskopfes sowie die des zentral angeordneten Elektronenstoßverdampfers erfasst werden. Das Steuergerät des Massenspektrometers weist 16 Analogausgänge auf, welchen per Software jeweils die Signalintensität eines spezifischen m/q -Verhältnisses als Partialdruck zugewiesen werden können. Hiermit soll unter anderem die in-situ Steuerung des Elektronenstrahl-Emissionsstroms aufgebaut werden. Während des Probenwachstums findet in Position I. die in-situ Analyse der Oberfläche mittels RHEED statt. Die LEED-Optik muss während des Probenwachstums zurückgefahren und mit einem Segmentshutter gegen unbeabsichtigtes Bedampfen geschützt sein. Bei geschlossenem Hauptshutter können in Position II. LEED-Untersuchungen durchgeführt werden. Ähnliches gilt für das Augerspektrometer auf Position III., welches beim Aufdampfen durch einen Shutter geschützt ist. Das Augerspektrometer selbst ist nicht direkt am COF 350 Deckelflansch sondern an einem hierauf aufliegendem CF250 Flansch montiert, welcher als Standardbauteil leicht gegen neue Modifikationen ausgetauscht werden kann. In der derzeit geplantem Adaption weist dieser CF250 Analytikflansch noch drei zusätzliche CF40 Ports auf, welche unter einem Winkel von 41° zur Mittelachse des CF100 AES-Befestigungsfanges auf den fokalen Punkt des Spektrometers ausgerichtet sind. Diese erlauben eine direkte Beobachtung der analysierten Probenoberfläche durch ein Fenster und bieten Platz für zukünftige Erweiterungen z.B. mit einer Ionenstrahl-optik. Zur exakten Einstellung des Abstandes zwischen Probenoberfläche und Augerspektrometer wird bereits jetzt ein Linearvorschub mit Schrittmotor mittels der selbst entwickelten Schrittmotorsteuerung verwendet. Am COF 350 Deckel ist neben den Drehdurchführungen für den AES-Shutter noch ein Kühlfinger zur Verwendung mit flüssigem Stickstoff integriert. Dieser soll während AES-Untersuchungen am Ort der Probe das Vakuum



(a)



(b)



(c)

Abbildung 6.1: (a) CAD-3D-Modell der neuen Metall-MBE mit geplanter Adaption von Analytik und Anbauteilen. (b) Querschnitt durch den Rezipienten der Metall-MBE: Die Probe kann in einem Kreissegment auf Positionen I. bis IV. rotiert werden. Der Manipulationskreis (*grün*) beschreibt die Probenoberfläche bei Rotation des Molybblocks. Die Außenfläche dieses Rings ist grundlegend für die Geräteintegration. (c) Integration der Metall-MBE in die bestehende UHV-Infrastruktur. Die Metall-MBE soll zwischen III/V-Halbleiter-MBE *Riber Compact 21* (*links*) und bisheriger Metallkammer (*rechts*) an ein freies *Riber Modutrack* Transfermodul adaptiert werden.

lokal verbessern. Auf Position IV. erfolgt der manuelle Proben transfer, bei welchem eine Probe mittels einer Transferstange in die Metall-MBE ein- oder ausgeschleust werden kann. Dieser Vorgang wird durch die vier hierfür ausgerichteten CF63 Fenster kontrolliert. Die mechanischen Durchführungen für den Hauptshutter und die Blende zum Schutz des Probenträgers sind gemeinsam auf einem CF100 Flansch als Baugruppe montiert. Die Blende weist einen Durchmesser von 114 mm auf, der ausreichend ist, den 3"-Probenträger (~ 76 mm) inklusive Probenhalter effektiv vor einer Kontamination durch den Dampfstrahl zu schützen. Der Aufdampfbereich ist durch eine 1" große kreisförmige Öffnung in der Mitte der Blende definiert und resultiert in einem technisch begrenzten homogenen Bereich bei Verwendung der üblicherweise eingesetzten 2"-Substrate. Der Hauptshutter liegt unterhalb der Blende und weist einen Durchmesser von 100 mm auf, welcher genügt um im geschlossenen Zustand die exponierte 1" Substratoberfläche abzuschirmen. Sowohl Blende als auch Shutterbleche werden aus Tantal gefertigt. Die Montage der Blende- und Shutter-Baugruppe erfolgt auf Seite der Wachstumskammer an einem Rohrstutzen mit 150 mm Innendurchmesser, welcher von einem CF100 Gewindeflansch für Stehbolzen abgeschlossen wird. Dieser Gewindeflansch ist in den Rohrstutzen eingesetzt und am Außenrand verschweißt. Durch den großen Innendurchmesser wird ein weites Zurückziehen der Blende aus der Kammermitte bis in den Rohrstutzen hinein ermöglicht, so dass ausreichend Raum für eine Probenrotation auf die Positionen II.– IV. vorhanden ist. Der unterhalb der Blende angeordnete Hauptshutter kann dabei geschlossene bleiben. Für den Antrieb des Hauptshutters ist ein pneumatisch betriebener Linearantrieb vorgesehen. Die Manipulation der Blende soll hingegen über eine kurze Transferstange des Typs *LPPL35-250* der Firma *UHV Design* realisiert werden. Die Verwendung einer Transferstangen ist von Vorteil, wenn keine schnellen Positionswechsel und gleichzeitig ein größerer Hub als bei einem pneumatischen Linearantrieb notwendig sind. Die Justage der beiden mechanischen Durchführungen für Blende und Shutter relativ zueinander kann ausserhalb der Wachstumskammer an der Baugruppe vorgenommen werden. Die Montage des Blendenblechs muss aber im Gegensatz zum Shutterblech innerhalb des Rezipienten erfolgen, aufgrund der begrenzten Öffnungsgröße des CF100 Flansches.

Die Integration der Metall-MBE in die bestehende UHV-Infrastruktur wurde in der DMU überprüft. In Abbildung 6.1(c) ist die Metall-MBE am vorgesehenen Ort über ein 300 mm langes Zwischenstück an ein *Riber Modutrack* Transfermodul adaptiert. Das *VAT Gatevalve* ist direkt an der Seite der MBE-Kammer montiert, um eine unnötige Vergrößerung des Kammervolumens zu vermeiden. Das Zwischenstück ist dasselbe, welches derzeit als Interimslösung mit dem Augerspektrometer betrieben wird. Die am Zwischenstück vorhandenen Flansche können im dargestellten Endausbau zur Aufnahme eines Wobbelsticks und einer Maskenablage dienen. Hiermit könnte eine zukünftige Integration von Schattenmasken im Aufdampfprozess unter Verwendung speziell hierfür modifizierter Probenträger erfolgen. Eine 700 mm Transferstange ist bei der gezeigten Anordnung für einen Proben transfer zwischen Modutrack und Metall-MBE ausreichend. Der geringe Abstand zur links neben der geplanten Metall-MBE vorhandenen *Riber Compact 21 III/V*-Halbleiter-MBE führ-

te während der Konzeption des MBE-Manipulators zur Wahl einer mittels eines Schrittmotors angetriebenen Drehdurchführung zur Probenpositionierung.

6.1.3 Fertigung und Aufbau

Der gesamte Rezipient, die Wasserkühlung der Effusionszellen sowie die COF Deckel- und Zellenflansche wurden in der mechanischen Werkstatt des Instituts für Angewandte Physik, Hamburg, aus V2A-Stahl der Werkstoffnummer 1.4301 (AISI 304) angefertigt. Die beim Bau verwendeten Anschweiß- und Adapterflansche weisen eine Güte von 1.4306 (AISI 304L, ebenfalls V2A) oder adäquat auf und wurden bei verschiedenen Lieferanten zugekauft. In Abbildung 6.2(a) ist der fertiggestellte Rezipient abgebildet. Links ist der CF160 Flansch für die Ionenpumpe mit seitlich ange-setztem CF40 Flansch für die Druckmessröhre zu sehen, darunter der CF100 Flansch für die Turbopumpe mit Gatevalve. In der Mitte des Bildes, in direkter Draufsicht, befindet sich der CF100 Flansch für die Adaption der RHEED-Kannone. Oberhalb dessen liegt einer der vier schräg ausgerichteten CF63 Flansche für Fenster mit Blick auf den Probenmanipulator. Rechts ist der CF160 Flansch für den Probentransfer zu der Transferkammer zu erkennen, an dem direkt ein Gatevalve montiert werden soll. Der in gleicher Linie darunter angeordnete CF63 Reserveflansch ist derzeit ungenutzt, steht aber mit seiner Position zwischen Probe und Zellenshuttern für zukünftige Erweiterungen zur Verfügung. In der untersten Ebene des Rezipienten sind drei der acht kreisförmig angeordneten CF63 Flansche für die Zellenshutter zu sehen. Auf dem Rezipienten ist der COF 350 Deckelflansch gelagert. Der fertiggestellte untere COF 350 Zellenflansch ist in Abbildung 6.2(d) abgebildet. Der Zellenflansch besteht aus acht auf einem Kreis von 127 mm (Innenseite) angeordneten und um 27° geneigten CF63 Flanschen für spezielle Zellenkühleinsätze mit CF40 Schneidkanten zur Aufnahme von MBE-Effusionszellen. Zentral ist ein neunter Zellenport vorhanden, der einen CF100 Flansch aufweist. In diesem kann wahlweise ein auf CF63 oder ein auf CF40 reduzierender Zellenkühlflansch für einen Elektronenstoßverdampfer oder eine weitere Effusionszelle angebaut werden. Auf dem Zellenflansch in 6.2(b) liegen zwei der CF63/CF40 Zellenkühlflansche, im Hintergrund sind die restlichen sechs sowie die beiden alternativen CF100/CF63 und CF100/CF40 Zellenkühleinsätze zu erkennen.

Abgesehen von den Verdampfernetzteilen und der Pumpenansteuerung in Abbildung 6.2(c) ist die Steuer- und Regelelektronik von Metall-MBE und Analytik in einem eigenen 19"-Rack untergebracht, welches in Abbildung 6.2(b) abgebildet ist. Dieses ist mit einem Grainville-Phillips Druckmeßröhrenmonitor, zwei *Eurotherm 2400* zur Zellen- und Heizertemperaturregelung, Steuergeräten für LEED-Optik, Augerspektrometer und einem *Quadrex 200* Massenspektrometer ausgestattet und wurde bereits für den Betrieb der Metallkammer aufgebaut. Die Steuerelektronik der Metall-MBE wird für den zukünftigen Betrieb noch mit den Steuergeräten für die RHEED-Optik und das Crossbeam-Massenspektrometer erweitert. Zudem muss die Auswertung der bis zu 16 analogen Steuersignale des Massenspektrometers zur partialdruckabhängigen Flussratensteuerung in die existierende Steuer-Software

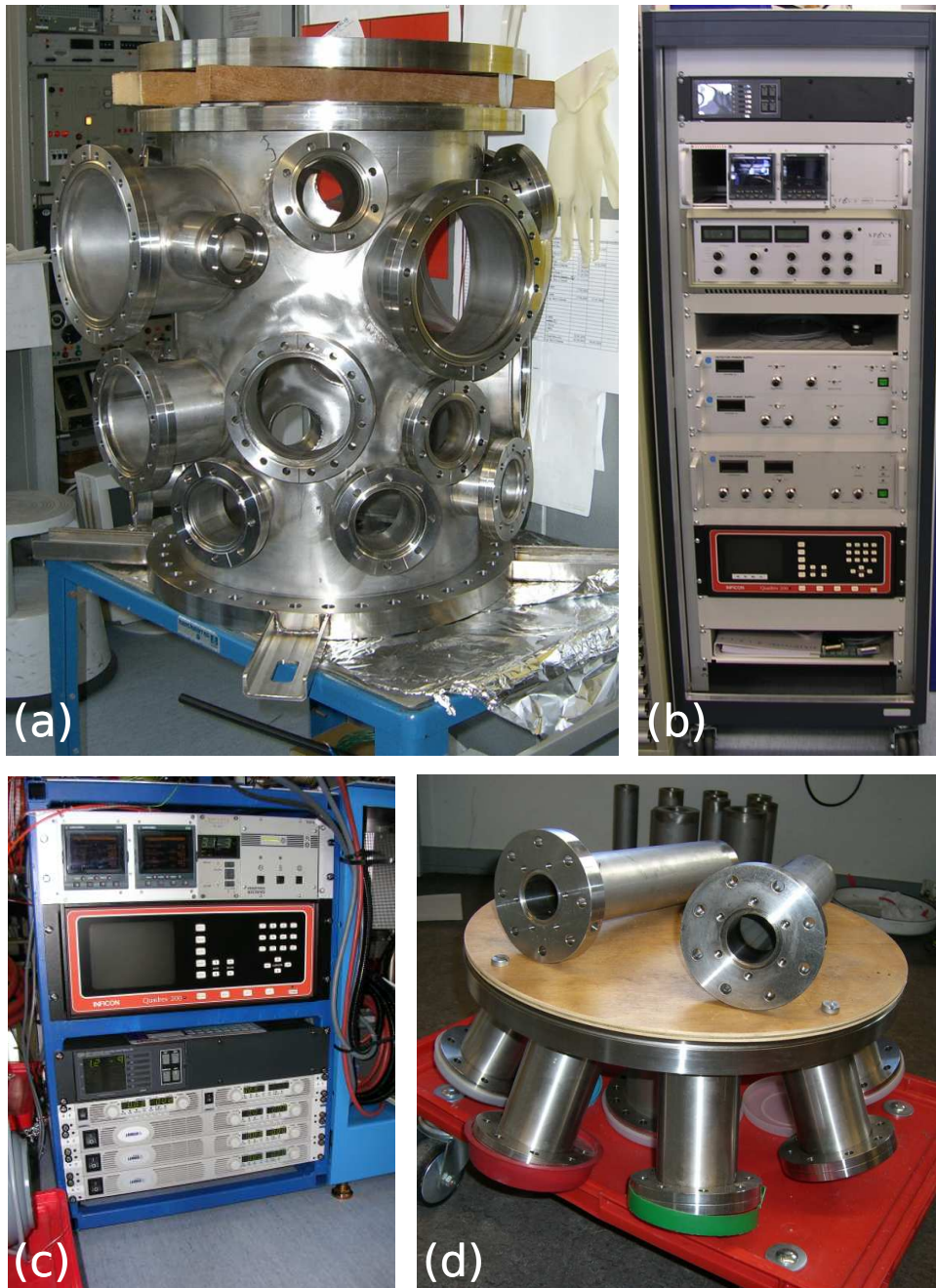


Abbildung 6.2: Fertigestellte Bauteile und Komponenten der Metall-MBE: (a) Wachstumskammer der neuen Metall-MBE. Auf dem Rezipienten ist der COF 350 Deckflansch gelagert. (b) Steuer- und Regelelektronik von Metall-MBE und Analytik, (c) Verdampfernetzteile und Pumpenansteuerung unterhalb der derzeitigen Metall-Kammer, (d) COF 350 Zellenflansch mit zwei CF63/CF40 Zellenkühlflanschen. Im Hintergrund sind die restlichen sechs sowie die beiden alternativen CF100/CF63 und CF100/CF40 Zellenkühlinsätze erkennbar.

EpiControl implementiert werden.

Alle im Rahmen dieser Arbeit konstruierten UHV-Bauteile sind mittlerweile von den Werkstätten im Hause fertiggestellt und die ausgewählte Analytik angeschafft worden. Eine vorläufige Grobreinigung der angefertigten UHV-Komponenten soll mittels der üblichen organischen Lösungsmittel vorgenommen werden zum lokalen Entfernen von Produktionsmarkierungen wie Filzstiftstriche. Für die vakuumgerechte Endreinigung ist im Anschluss die Nutzung einer in Reinraumklasse 100 installierten UHV-Reinigungsanlage für Beschleunigerkomponenten des DESY/Hamburg geplant [Hah04]. Der Aufbau der Metall-MBE wird im MBE-Labor der Gruppe Wachstum (IAP) im abgetrennten Klasse-100 Reinraumbereich unter einem *Laminar Flow* erfolgen. Der Zusammenbau und die Inbetriebnahme der neuen Metall-MBE werden von Sascha Bohse im Rahmen seines Dissertationsprojektes ausgeführt werden. Die Ableitung technischer Zeichnungen für einige kleinere Komponenten erfolgt ebenfalls im Rahmen dieses Projektes.

6.2 MBE-Manipulator

6.2.1 CAD-Konstruktion

Die vielfältigen Anforderungen bei der Probenpositionierung von Seiten der integrierten in-situ Analytik und der Molekularstrahlepitaxie resultierten in Planung und Konstruktion eines speziell angepassten MBE-Probenmanipulators. Die hierbei berücksichtigten Ziele und gewählten Lösungen werden im Folgendem erläutert: Die Basis des Manipulators ist ein CF200 Flansch, an dem alle notwendigen elektrischen und mechanischen Durchführungen integriert sind. Hier finden sich eine Typ-C-Thermoelement-, zwei Strom- und eine BNC-Durchführung sowie drei weitere ungenutzte und mit Blinddeckeln versehene CF16 Flansche für zukünftige Erweiterungen. Für ein kombiniertes sequentielles Halbleiter- und Heuslerschichtwachstum ist eine kompatible Probenaufnahme der neuen Metall-MBE zu der vorhandenen III/V-Halbleiter-MBE notwendig. Das Aufnahmesystem des Manipulators besteht aus einer Probenaufnahme aus Molybdän, welche kompatibel ist zum 3"-Standardprobenhalter für Molybdänprobenträger (Molyblöcke) der Firma *Riber*. Hierbei sind die Standard-Molyblöcke für eine Verwendung von 2"-Wafern ausgelegt. Als Substratheizer wird ein original *Riber* 3"-Probenheizer mit PBN-Diffusor passend für den *Model 32* Manipulator (Typ *ARM*) verwendet, um eine große Homogenität bei der Temperaturverteilung im Bereich der 2"-Wafer zu gewährleisten sowie die Ersatzteilversorgung in der Zukunft sicherzustellen. Der Austausch des Substratheizers ist ohne eine komplette Demontage des Manipulators durch Befestigungsschrauben auf der Rückseite der unteren Befestigungsplatte leicht möglich.

Ein Hauptziel der Eigenentwicklung war eine hohe Stabilität der Mechanik im Hinblick auf Positioniergenauigkeit und Reproduzierbarkeit bei gleichzeitig minimalem Verschleiß der mechanisch und thermisch belasteten Komponenten. Dies soll unter Beachtung des zu erwartenden Gesamtgewichtes durch möglichst große Durchmesser der eingesetzten Rohre, Hohlwellen und Lager erreicht werden. Um das

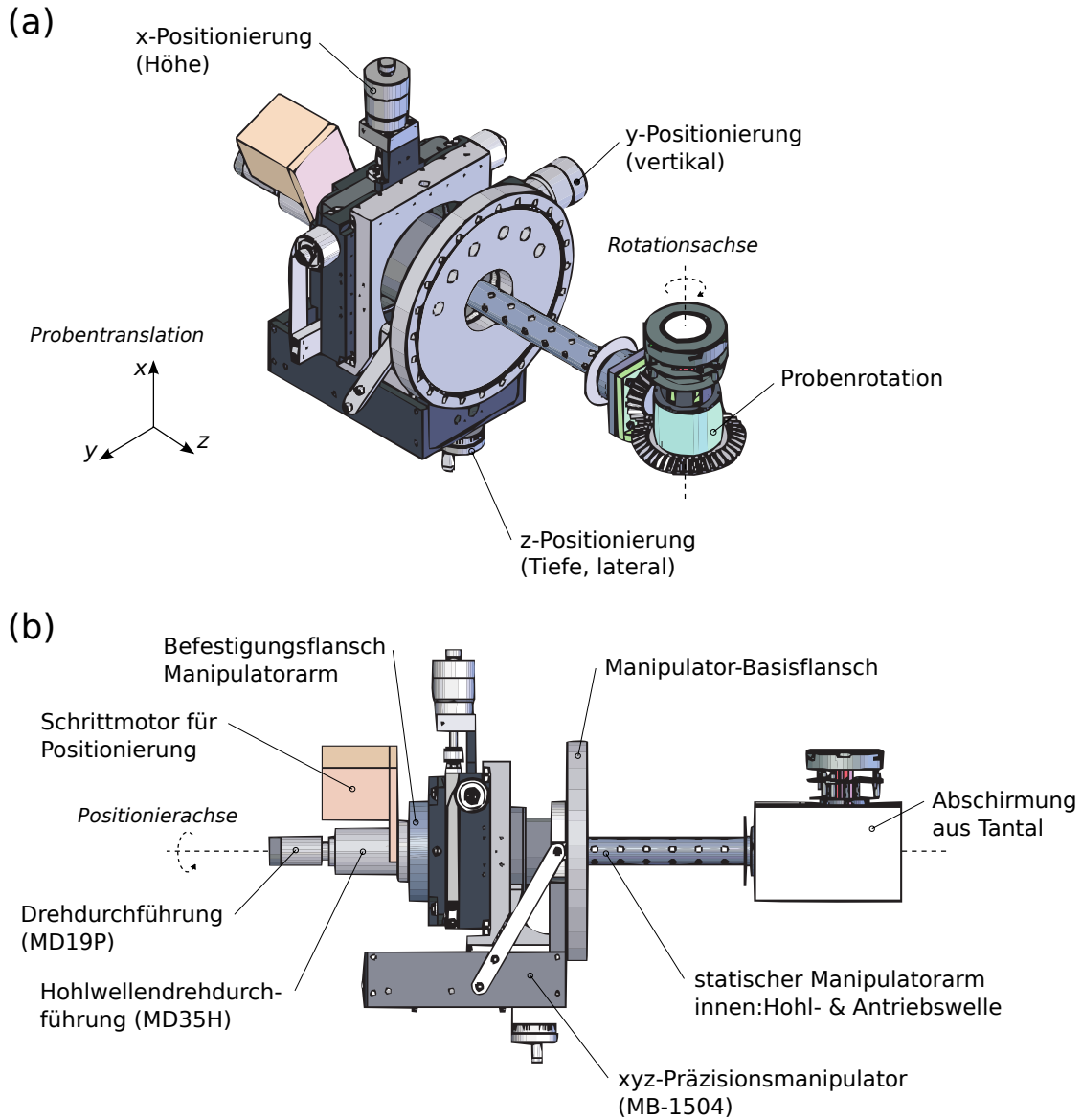


Abbildung 6.3: CAD-3D-Modell des MBE-Manipulators: (a) Iso-Ansicht des MBE-Manipulators mit Kennzeichnung der Translationsrichtungen und Rotationsachsen. Der Manipulatorvorbau ist ohne die umgebenden Abschirmbleche aus Tantal dargestellt. (b) Seitenansicht des MBE-Manipulators mit Blickrichtung in die vertikale y -Translationsrichtung. Die beiden Drehdurchführungen sowie der xyz-Präzisionsmanipulator auf der linken Seite des Manipulator-Basisflansches wurden als fertige Komponenten zugekauft. Der Manipulatorarm ist fest mit dem Befestigungsflansch verschweißt und enthält innenliegend eine Hohlwelle für die Probenpositionierung, sowie darin eine weitere Antriebswelle zur Probenrotation.

Durchbiegen oder Schwingen des statischen Manipulatorarms zu minimieren, wurde bei der Konstruktion der maximal mögliche äußere Rohrdurchmesser von 32 mm gewählt, bei einer Wandstärke von 1,5 mm. Hiermit ergibt sich, begrenzt durch die Größe des Membranbalgs des xyz-Präzisionsmanipulators, eine maximale horizontale x- und vertikale y-Translation der Probe von ± 20 mm (siehe Abbildung 6.3). Die maximale z-Translation senkrecht zur Mittelachse der MBE-Wachstumschamber beträgt ± 50 mm relativ zur Mitte des Rezipienten. Als xyz-Manipulator kommt der Präzisionsmanipulator *MB1504* der Firma *McAllister* zum Einsatz, welcher zusätzlich mit 50 mm großen Mikrometerschrauben für die xy-Translation des Manipulators ausgestattet wurde. Neben seiner stabilen Bauart zeichnet sich dieser xyz-Manipulator über einen großen xy-Translationsbereich bei gleichzeitig hoher Genauigkeit bei der Positionierung von $2,5 \mu\text{m}$ aus. Hiermit wird eine präzise Justierung der Probenoberfläche bei Elektronenbeugungs- und Spektroskopieuntersuchungen ermöglicht. Die Drehung des gesamten Manipulatorvorbaus (siehe Abbildung 6.4) um die vertikale Drehachse des Manipulatorarms auf die verschiedenen Position für Transfer, Wachstum, LEED oder Augerspektroskopie wird durch eine außen gelagerte Hohlwelle realisiert. Deren passende magnetisch gekoppelte Hohlwellendurchführung *MD35H* der Firma *UHV Design* ist mit einem Schrittmotor zur präzisen Ansteuerung von zuvor eingespeicherten Winkelpositionen ausgestattet. Der Schwerpunkt des gesamten rotierbaren Manipulatorvorbaus liegt abhängig vom Gewicht des verwendeten Molybdoms im Bereich der vertikalen Drehachse des Manipulatorarms. Diese ausgeglichene Gewichtsverteilung soll das Auftreten ungünstiger Drehmomente von mehr als 4,5 Nm am außen liegenden Positionierantrieb sowie eine übermäßige Belastung des Zylinderrollenlagers vermeiden.

Die erwünschte homogene Stöchiometrie der Proben im Aufdampfbereich sowie ein konstanter Schichtdickegradient von der Probenmitte zum Rand ist nur unter Verwendung einer azimuthalen Probenrotation während des Wachstums zu erreichen. Dies wird in vielen kommerziell erhältlichen MBE-Manipulatoren über einen mit Radiallagern versehenen Kegelantrieb realisiert. Aufgrund der starken thermischen Belastung dieser Mechanik beim MBE-Wachstum ist ein Festfressen der üblicherweise ohne Schmiermittel eingesetzten Lager ein häufig auftretender Defekt. Unter der tatkräftigen Mithilfe der studentischen Hilfskraft Daniel Demiss wurde ein alternatives Lagerkonzept entwickelt, welches auf der Verwendung von zwei Kegelrollenlagern basiert und konstruktiv ähnlich einem Radlager im Automobilbau aufgebaut ist. Ein großer Innendurchmesser der Kegelrollenlager bei gleichzeitig kompakter Manipulatorbauweise wird durch einen Aufbau um die Fassung der Substratheizerbefestigung herum bei gleichzeitig großem Außenschafft auf dem angetriebenen Kegelrad erreicht. Die Kegelrollenlager selbst bestehen aus Edelstahl und sind schwimmend befestigt mit einstellbarem Lagerspiel, welches über einen Schraubring innerhalb des Außenschaffts angepasst werden kann. Der große Abstand von Kegelrad und Lager zum Substrat sowie die schwimmende Lagerung dienen einer Minimierung der thermischen Belastung. Die komplette Abschirmung der Mechanik mittels Tantalblechen zur Vermeidung einer Metallbeschichtung der Antriebskomponenten während des Wachstums wirkt ebenfalls als zusätzliches Hitzeschild. Die

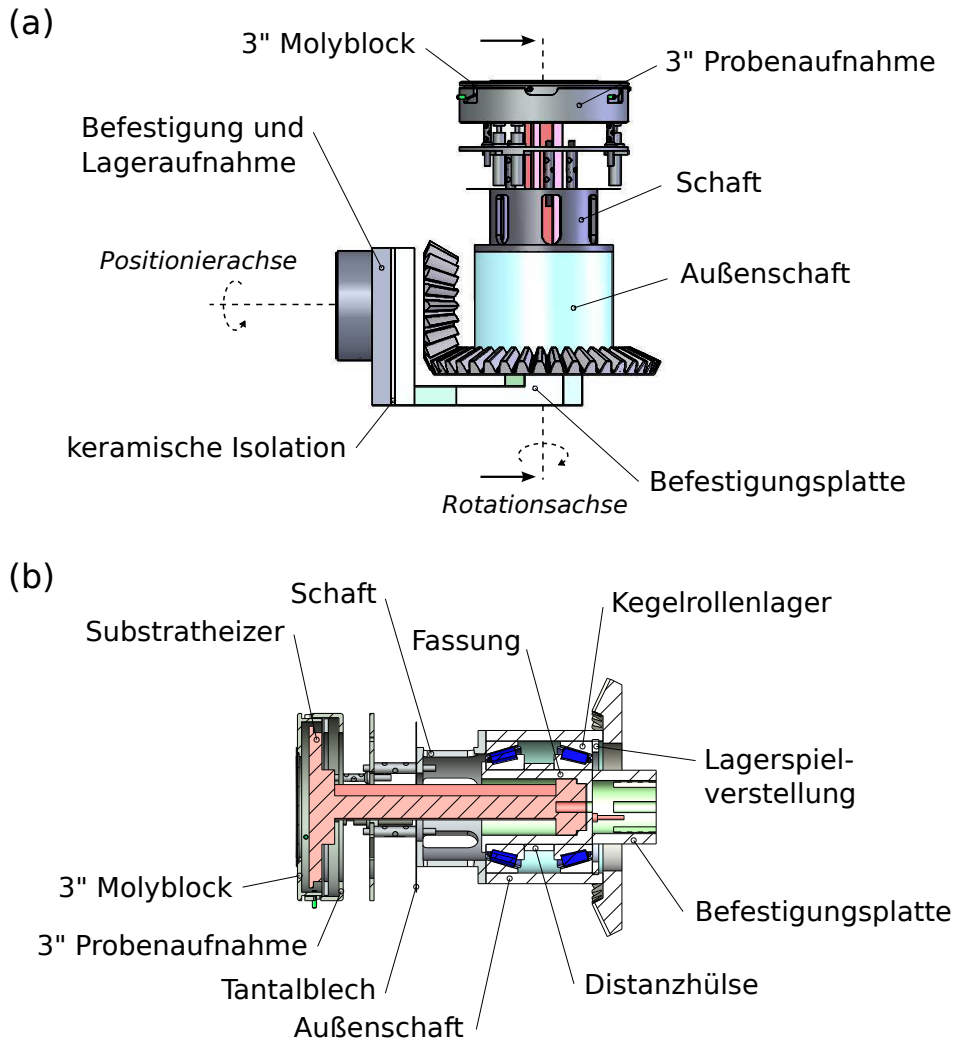


Abbildung 6.4: CAD-3D-Modell des Manipulatorvorbaus. (a) Seitenansicht des um die Positionierachse beweglichen Manipulatoraufbaus. Die Befestigungsplatte sowie das kleine Kegelrad sind durch keramische Isolationsscheiben von Befestigung und Lageraufnahme der Hohlwelle, bzw. der innenliegenden Antriebswelle isoliert. (b) Schnitt durch den Manipulatorvorbau entlang der Probenrotationsachse mit Blick in Pfeilrichtung. Auf der Befestigungsplatte (*grün*), sind der Substratheizer (*rot*, hier nur dargestellt als Volumenmodell) sowie die innere statische Lagerschale für die azimuthale Probenrotation aufgeschraubt. Der bewegliche Außenschaft mit Kegelrad (*hellblau*) dient als äußere Lagerschale für die beiden Kegelrollenlager (*dunkelblau*), welche durch eine lose Distanzhülse separiert sind. Die Einstellung des Lagerspiels erfolgt über einen Einschraubring mit zwischenliegender Federscheibe im eingearbeiteten Innengewinde des Außenschaftes. Probenaufnahme und Stehbolzen links des Tantalabschirmblechs sind aus Molybdän, alle weiteren Bauteile aus V2A-Stahl gefertigt.

Kraftübertragung zu den Kegelrädern erfolgt über eine Antriebsstange innerhalb der Hohlwelle zur Probenpositionierung. Die Wahl eines großen, mit vierfacher Untersetzung angetriebenen Kegelrades ist zusammen mit der zukünftigen Verwendung eines Schrittmotors und einer noch zu erwerbenden Schnittstelle geeignet, eine mit der Probendrehung synchronisierte Bildaufnahme durch die Software *Safire* für die RHEED-Analyse bei Substratrotation zu ermöglichen.

Aufgrund der Anforderung seitens der Augerspektroskopie, eine Probenstromabbildung der Substratoberfläche zur Auswahl des Messgebietes durchführen zu können, wird die komplette elektrische Isolation des Probenträgers notwendig. Hierfür ist der gesamte Manipulatorvorbau durch eine Keramikzwischenplatte großflächig elektrisch vom Manipulatorarm getrennt. Die mechanische Befestigung zwischen Manipulatorvorbau und Manipulatorarm erfolgt mit normalen Edelstahlschrauben unter Verwendung von isolierenden keramischen Split-Buchsen. Die zur Isolation eingesetzten Keramikscheiben sollen selbst keine mechanischen Konstruktionselemente sein, vielmehr darf der Riss einer Keramikplatte oder Split-Buchse die Funktion des elektrisch isolierten Manipulatorvorbaus nicht grundlegend beeinträchtigen. Zwischen kleinem Kegelrad und Antriebswelle wird ein Keil mit einer Verzahnung auf der einen und einer quaderförmigen Passung zum Kegelrad auf der anderen Seite eingesetzt. Durch eine geschlitzte keramische Distanzscheibe und mehreren Isolationsplättchen, mit denen die eingelassenen Seiten der Passung ausgekleidet werden, sind auch Welle und Kegelrad elektrisch isoliert. Die keramischen Isolierstücke werden hierbei lediglich auf Druck belastet. Die elektrische Kontaktierung mit der BNC-Vakuumdurchführung erfolgt durch ein UHV-Kabel mit einer Isolation aus Kapton. Zur exakten Bestimmung des Strahlstroms der Elektronenkanone des Augerspektrometers ist die Montage eines Kupferblocks mit einer Bohrung zur Verwendung als Faraday-Cup an der Rückseite der unteren Befestigungsplatte vorgesehen. Der Schwerpunkt des vollständigen Manipulatorvorbaus mit Abschirmung aus Tantalblech kann über die Größe dieses als Gegengewicht fungierenden Kupferblocks angepasst werden.

Ein Vorteil der vorliegenden Konstruktion eines neuen MBE-Manipulators ist neben der konsequenten Auslegung auf Stabilität und Langlebigkeit eine Reduktion der Anzahl der Bauteile im Vergleich zu manchem kommerziell erhältlichen Manipulator. Dies gelang durch eine sorgfältige Konzeption, die sich strikt an die spezifischen Anforderungen orientierte und basierend auf Erfahrungen mit ähnlichen UHV-Systemen zu einer längeren Standzeit und einer weniger aufwändigen Wartung beitragen wird.

Kapitel 7

Zusammenfassung und Ausblick

7.1 Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit wurde untersucht, wie sich Veränderungen der Substrattemperatur und der Schichtdicke beim Wachstum von Ni_2MnIn -Schichten mittels MBE auf morphologische, strukturelle, magnetische und elektrische Eigenschaften auswirken. Hierbei stand insbesondere die Klärung des optimalen Temperaturbereiches für ein epitaktisches Wachstum von Ni_2MnIn auf $\text{InAs}(001)$ in der geordneten $L2_1$ -Phase im Vordergrund. Die Probenpräparation erfolgte in einer hierfür neu aufgebauten Wachstumskammer unter Verwendung von MBE-Effusionszellen. Dieser Rezipient, Metallkammer genannt, wurde an ein Transfermodul des bestehenden Vakuumverbundsystems adaptiert. Das Wachstum stöchiometrischer Ni_2MnIn -Heuslerschichten auf frisch gewachsenen Halbleiteroberflächen wurde durch einen in-vacuo Probentransfer zu einer kommerziellen III/V-Halbleiter-MBE ermöglicht. Die Kalibration der Aufdampftraten der jeweiligen Effusionszellen erfolgte mit einem Schwingquarz unter Verwendung von EDX-Untersuchungen zur Bestimmung der spezifischen Kalibrationsfaktoren. Die Stöchiometrie wurde jeweils an TEM-Netzchen, die als Referenzproben einer Probenserie dienten, mit EDX bestimmt. Die stöchiometrische Homogenität der hergestellten Schichten wurde durch ortsaufgelöste Augerelektronenspektroskopie nachgewiesen. Für das Kristallwachstum kamen amorphe Kohlenstofffilme, polykristalline Goldschichten, einkristalline $\text{InAs}(001)$ -Substrate und hochbewegliche Halbleiter-Heterostrukturen auf $\text{InAs}/\text{InAlAs}$ -Basis zum Einsatz. Rasterkraft- und Elektronenmikroskopie sowie Röntgen- und Elektronenbeugungsmethoden wurden verwendet, um die strukturellen Eigenschaften der hergestellten Heusler/Halbleiter-Hybridsysteme zu untersuchen. Die Curietemperatur der Proben wurde von Ole Albrecht mittels SQUID-Magnetometrie in der Gruppe von Prof. Nielsch bestimmt. Die Spinpolarisation der Ni_2MnIn -Heuslerschichten wurde von Jan Scholtysseek und Marta Bastjan mittels PCAR und SGME in der Gruppe von Prof. Merkt und Prof. Rübhausen untersucht.

Als ein wichtiges Ergebnis lassen sich die Erkenntnisse aus morphologischen und strukturellen Untersuchungen der Korngröße und Phase an polykristallinen Heuslerfilmen, welche mittels MBE auf TEM-Netzchen gewachsen wurden, nicht auf das

epitaktische Wachstum von Ni_2MnIn auf Halbleitersubstrate übertragen. Morphologische Untersuchungen an polykristallinen Ni_2MnIn -Schichten auf Au/Si-Substraten lieferten Hinweise auf die Ausbildung einer $\text{Ni}_2(\text{Au})\text{MnIn}$ -Diffusionszone, welche möglicherweise einen Einfluss bei PCAR-Messungen ausübt.

Eine Serie von 18 Proben wurde bei Substrattemperaturen von 80, 250, 300, 320, 340 und 360 mit je 20, 60 und 100 nm dicken Heuslerschichten auf $\text{InAs}(001)$ hergestellt. TEM-Untersuchungen zeigten, dass bei Temperaturen oberhalb 80°C eine Reaktionszone zwischen Ni_2MnIn und InAs -Substrat ausgebildet wird, deren Dicke mit zunehmender Substrattemperatur ansteigt. Als Ursache der Reaktion konnte eine Zwischengitter-Diffusion von Arsen aus dem InAs -Substrat in die Ni_2MnIn -Heuslerlegierung nachgewiesen werden. Bei Temperaturen von 320°C und höher dominiert diese Reaktionszone die Grenzflächenmorphologie, bei gleichzeitiger Zunahme der Oberflächenrauigkeit. Die bei 80°C bzw. 300°C hergestellten 100 nm dicken Heuslerschichten weisen jeweils eine Curietemperatur auf, welche mit den Literaturwerten für Ni_2MnIn in der B2- bzw. der $L2_1$ -Phase vergleichbar ist. Die bei 250°C deponierte Probe liegt zwischen diesen beiden Werten, während Proben oberhalb 320°C durchgehend unterhalb von $T_{C,L2_1}$ liegen. Die Phasenanalyse der 60 nm dicken 300°C -Probe lieferte den Nachweis für eine Kristallisation in der $L2_1$ -Phase. Hingegen wurde bei der lediglich 20 nm dicken, bei gleicher Substrattemperatur von 300°C gewachsenen Heuslerschicht ausschließlich die Bildung der B2-Phase beobachtet. Hierfür wird als Ursache eine Abhängigkeit der Phasenumwandlung von der Verspannung der Schichten aufgrund unterschiedlicher Schichtdicken vermutet. Die Ausdehnung der Reaktionszone ist bei Proben mit identischer Wachstumstemperatur gleich groß. Sowohl Substrattemperatur als auch Schichtdicke zeigten in Messungen einen Einfluss auf Spinpolarisation und Curietemperatur der ferromagnetischen Ni_2MnIn -Heuslerschichten.

Während bei 250°C hergestellte Proben ein klassisches pseudomorphes Wachstum unter Spannungsabbau durch tetragonale Verzerrung aufweisen, wird für Probenwachstum oberhalb 300°C eine $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ -Orientierung der Ni_2MnIn -Elementarzelle relativ zum $\text{InAs}(001)$ -Substrat beobachtet. Der hier zugrundeliegende Mechanismus des plastischen Spannungsabbaus ist derzeit noch unklar. Die optimale Wachstumstemperatur für Ni_2MnIn auf $\text{InAs}(001)$ in der $L2_1$ -Phase liegt in einem Fenster zwischen 250°C und 300°C . Unterhalb 250°C liegt die Heuslerschicht in der B2-Phase vor, oberhalb 300°C setzt eine starke Zunahme der Grenzflächenreaktion ein. Die höchste Curietemperatur von $T_C = 315\text{K}$ wurde bei der 100 nm dicken 300°C -Probe beobachtet. Heuslerschichten mit optimaler Wachstumstemperatur und 100 nm Schichtdicke weisen die höchste Spinpolarisation der auf $\text{InAs}(001)$ gewachsenen Proben auf.

Beim Wachstum von Ni_2MnIn auf einer modulationsdotierten Heterostruktur mit metamorphem $\text{In}_{75}\text{Al}_{25}\text{As}$ -Puffer auf $\text{GaAs}(001)$ wurde keine Relaxation des pseudomorph verspannten InAs -Kanals beobachtet. Abgesehen von einer Abnahme der Intensität sind keine Veränderungen bei den Reflexen des metamorphen Puffers im Vergleich zu einer Referenzprobe ohne Heuslerschicht erkennbar. Die Ursache für eine Verbreiterung des InAs -Reflexes bei konstanter Signalintensität liegt mög-

licherweise in einer Überlagerung mit einem Reflex von pseudomorph verspanntem Ni_2MnIn begründet, bedarf aber noch weiterer Untersuchungen.

Basierend auf den Erfahrungen mit der Metallkammer wurde eine neue Metall-MBE konstruiert, welche sich derzeit im Aufbau befindet. Bei der Planung waren eine Integration von Oberflächen- und Strukturanalytik, Erhöhung der Zahl möglicher Effusionszellen und eine Vergrößerung des homogen beschichteten Probenbereiches maßgeblich. Die Erweiterung des Aufdampfkonzepes mit einem Elektronenstoßverdampfer für hochschmelzende Quellenmaterialien sowie einem Crossbeam-Massenspektrometer ermöglicht eine höhere Gesamtflussrate sowie eine beschleunigte parallele Flussratenbestimmung von bis zu neun Verdampferquellen. Das Konzept der Metall-MBE ermöglicht eine deutlich effizientere Probenpräparation, bei gleichzeitig größerer Ausbeute von Probenmaterial innerhalb eines spezifischen Wachstumsvorgangs.

7.2 Ausblick

In zukünftigen Wachstumsuntersuchungen soll eine Reduzierung der Arsendiffusion vom InAs -Substrat in die Ni_2MnIn -Heuslerschicht erreicht werden. Hierbei könnte die Verwendung von Diffusionsbarrieren wie MgO hilfreich sein. Die Deposition geeigneter Anti-Diffusionsschichten muss hierfür erprobt werden. Ein anderer Ansatz wäre eine weitere Prozessoptimierung zur Verbesserung der Grenzflächenqualität. So könnte ein variabler Verlauf der Substrattemperatur, welche erst mit zunehmender Schichtdicke auf die optimale Wachstumstemperatur von $250\text{--}300^\circ\text{C}$ ansteigt, zu einer verminderten Grenzflächendiffusion während des initialen Wachstumsprozesses beitragen und für die Herstellung von defektfreien Ni_2MnIn -Schichten mit $L2_1$ -Phase hilfreich sein.

An den bereits hergestellten $\text{Ni}_2\text{MnIn}/\text{HEMT}$ -Hybridproben sind weitere Untersuchungen zur kristallographischen Struktur und Grenzflächenmorphologie notwendig. Derzeit ist die Präparation von TEM-Schnitten an der 50 nm dicken, bei 300°C gewachsenen $\text{Ni}_2\text{MnIn}/\text{HEMT}$ -Probe geplant. Da keine Kenntnis über die kristallographische Orientierung der mutmaßlich epitaktischen Heuslerschicht relativ zum Substrat vorliegt, sind für einen direkten Nachweis der Phase zwei Querschnittspräparationen notwendig, zum einen entlang der $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ - sowie entlang der $\langle 110 \rangle$ -Richtung des Substrates. Eine Untersuchung dieser TEM-Querschnitte mittels energiegefilterter TEM-Mikroskopie wäre hilfreich, um die reale Stöchiometrie der Schichten des metamorphen Puffers zu bestimmen und eine mögliche Grenzflächendiffusion zu quantifizieren.

Eine Untersuchung der magnetischen Eigenschaften der $\text{Ni}_2\text{MnIn}/\text{HEMT}$ -Proben ist geplant. Erste Transportmessungen in nichtlokaler Geometrie setzen eine lithographische Definition der ferromagnetischen Heuslerkontakte voraus. Eine Bedingung hierfür ist die Kenntnis selektiver Ätztechniken für Ni_2MnIn .

Die neue Metall-MBE bietet mit ihrem flexiblen Zellenkonzept die Möglichkeit, parallel zu Ni_2MnIn das Wachstum weiterer Heuslerlegierungen zu untersuchen. In-

interessante Kandidaten im Hinblick auf das Fernziel eines Spin-FETs auf Basis der metamorphen InAs-HEMTs sind die Heuslerlegierungen Cu_2MnAl und Co_2MnSn , für welche Curietemperaturen von $T_C = 600\text{ K}$ bzw. $T_C = 829\text{ K}$ berichtet werden [Web69]. Die Heuslerlegierung Cu_2MnAl weist mit einer Gitterkonstanten von $a = 0,595\text{ nm}$ eine nahezu perfekte Gitterpassung an das virtuellen Substrat des InAs-HEMTs ($\text{In}_{75}\text{Al}_{25}\text{As}$: $a = 0,5957$) auf, ist aber kein halbmetallischer Ferromagnet [Gei03, Küb83]. Die Möglichkeit einer effizienten Spininjektion mit Cu_2MnAl unter Verwendung einer Tunnelbarriere ist derzeit unerforscht. Die Heuslerlegierung Co_2MnSn besitzt eine Gitterkonstante von $a = 0,5984\text{ nm}$ und weist, ähnlich wie Ni_2MnIn , beim Fermi-niveau eine nahezu vollständige Spinpolarisation von 100% auf [Hem07, Küb83]. Die Stabilität der Spinpolarisation an der Grenzfläche bedarf hingegen weiterer Untersuchungen [Lee04]. Die Gitterfehlpassung von Co_2MnSn zum virtuellen Substrat des InAs-HEMT beträgt 0,5% und ist somit um 0,6% geringer als die von Ni_2MnIn . Die Dampfdruckkurve von Kobalt ist vergleichbar mit der von Nickel. Der Einsatz des Elektronenstoßverdampfers der neuen Metall-MBE mit Kobalt als Quellenmaterial kann das Verdampfen mit hohen Aufdampfraten ermöglichen.

Veröffentlichungen

Zeitschriftenartikel

- A. Zolotaryov, A. Volland, D. Novikov, G. Stryganyuk, C. Heyn, und W. Hansen, *Interfacial reactions in Ni₂MnIn / InAs(0 0 1) system*. HASYLAB annual report, (2008).
- A. Zolotaryov, A. Volland, C. Heyn, D. Novikov, G. Stryganyuk, A. Kornowski, T. Vossmeier, O. Albrecht, E. Coric und W. Hansen, *Influence of growth temperature on phase and intermixing in Ni₂MnIn Heusler films on InAs(0 0 1)*. Journal of Crystal Growth **311** (8), 2397–2404 (2009).
- A. Volland, M. Bastjan, O. Albrecht, A. Zolotaryov, S. Bohse, D. Görlitz, C. Heyn, M. Rübhausen und W. Hansen, *Spin polarization and magnetic properties of Ni₂MnIn Heusler alloys grown on InAs(0 0 1)*. Unveröffentlicht (2009).
- S. G. Singer, M. Bastjan, A. Volland, A. Kotlov, A. I. Lichtenstein, W. Hansen, A. Rusydi and M. Rübhausen, *Spectroscopic study of the spin-polarized electronic structure of the full Heusler alloy Ni₂MnIn and simulations within the spin density functional framework*. Eingereicht bei Applied Physics Letters (2009).
- A. Zolotaryov, O. Albrecht, M. Bastjan, A. Volland, S. Bohse, D. Görlitz, C. Heyn und W. Hansen, *Strain and magnetic properties of Ni₂MnIn Heusler thin films grown on an InAs HEMT with metamorphic buffer*. Unveröffentlicht (2009).

Tagungsbeiträge

- A. Volland und C. Heyn, *Preparation of Heusler alloys - Evaporation chamber design and results*. DPG Frühjahrstagung (2006).
- C. Heyn, A. Volland, S. Dastjani, A. Zolotaryov, J. M. Scholtyssek, O. Albrecht, W. Hansen und D. Heitmann, *MBE von Heusler-Legierungen auf Halbleiteroberflächen*. BMBF Statusseminar, Projekt 01BM 467 (2007).

- S. Bohse, A. Zolotaryov, A. Volland, C. Heyn und W. Hansen, *MBE growth and characterisation of Heusler Alloy Ni_2MnIn on (001) InAs*. DPG Frühjahrstagung (2009).

Anhang A

Probendaten

A.1 PCAR-Messungen

Heuslerprobe	T_{meas} [K]	T_{fit} [K]	χ^2	P	Z	Δ [meV]
300 °C 50 nm	2	7,4	0,00474	0,42	0,12	0,78
	3	7,5	0,00191	0,38	0,20	0,78
	4	7,7	0,00548	0,40	0,14	0,72
	5	8,0	0,00156	0,40	1e-15	0,68
	6	9,0	0,00134	0,14	1,28	0,46
	300 °C 60 nm	1,8	7,8	0,01700	0,32	0,12
2,8		8,0	0,01618	0,32	0,14	1,00
3,8		8,2	0,01350	0,32	0,18	0,94
4,8		8,2	0,02406	0,32	0,14	0,94
6,3		8,4	0,02230	0,32	0,12	0,86
7,3		8,7	0,01397	0,32	0,16	0,74
11,3			über $T_{C_{Niob}}$			
320 °C 177 nm	2	7,7	0,00764	0,3	0,04	1,00
	3	7,4	0,00704	0,3	0,14	0,92
	4	8,2	0,01019	0,3	0,12	0,92
	5	8,3	0,00325	0,3	0,12	0,90
	6	8,2	0,00829	0,3	0,12	0,80
	7	8,7	0,00328	0,32	0,02	0,72
	8	9,0	0,00317	0,28	0,26	0,60

Tabelle A.1: Parameter der simulierten PCAR-Kurven für polykristalline Ni₂MnIn-Schichten auf Au/Si-Substrat: Temperatur T_{fit} , Polarisation P , Grenzflächenparameter Z , Energielücke des Supraleiters Δ und Fehlerquadrat χ^2 . Insgesamt wurden drei Heuslerschichten mit Dicken von 50 nm, 60 nm und 177 nm untersucht, welche bei einer Substrattemperatur von 300 °C und 320 °C gewachsen worden waren.

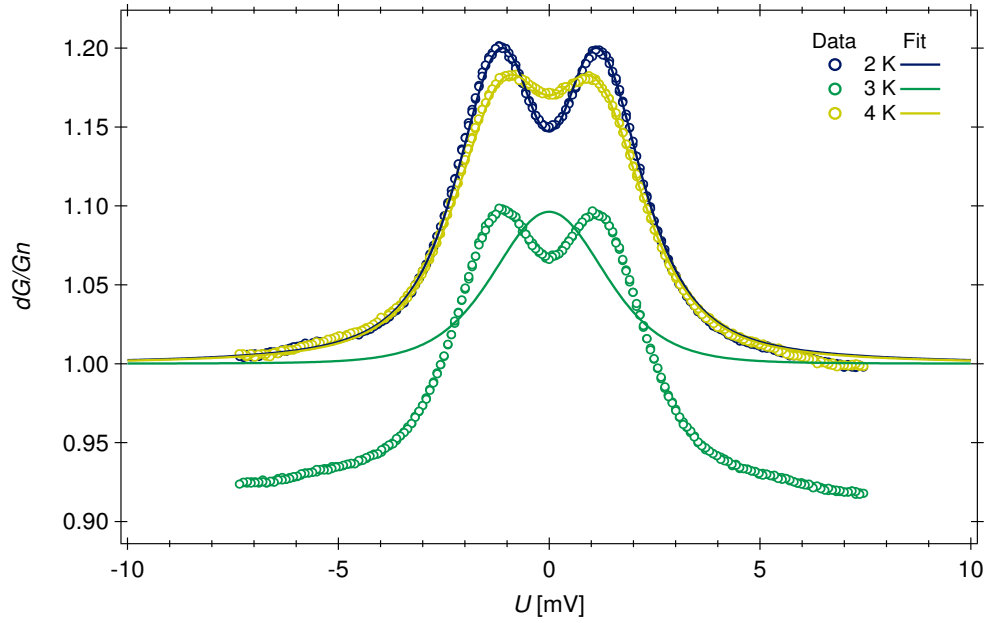


Abbildung A.1: Messung eines $\text{Ni}_2\text{MnIn}/\text{InAs}(001)$ -Punktkontaktes mit Niob-Spitze. Die Heuslerschicht ist 60 nm dick und wurde bei 300°C gewachsen. Eine Anpassung der Daten an ein Modell war nicht möglich.

T_{meas} [K]	T_{fit} [K]	χ^2	P	Z	Δ [meV]
2	6,6	0,00167	0,06	0,20	0,94
3		$> 0,5$	<i>Daten mit Modell nicht auswertbar</i>		
4	7,5	0,00147	0,08	0,10	0,88

Tabelle A.2: Parameter der simulierten PCAR-Kurven für einkristalline Ni_2MnIn -Schichten auf $\text{InAs}(001)$ -Substrat. Die Heuslerschicht ist 60 nm dick und wurde bei einer Substrattemperatur von 300°C gewachsen. Eine Anpassung aller Messkurven war nicht möglich.

A.2 Probenübersicht

$T_{Substrat}$ [°C]	Stöchiometrie		Heuslerschichtdicke auf Substraten:			
	[at.%]	Prozess	InAs(001)	Au/Si(001)	InAs-HEMT	TEM-Netz
80	Ni ₄₇ Mn ₂₆ In ₂₇	a	20 nm			
	"	a	60 nm			
	"	a	100 nm			
	Ni ₄₄ Mn ₂₄ In ₃₂	d				30 nm
200	Ni ₄₃ Mn ₂₃ In ₃₄	e				30 nm
250	Ni ₄₇ Mn ₂₆ In ₂₇	a	20 nm			
	"	a	60 nm			
	"	a	100 nm			
	Ni ₄₅ Mn ₂₄ In ₃₁	f				30 nm
270	Ni ₄₅ Mn ₂₄ In ₃₁	f				30 nm
300	Ni ₄₇ Mn ₂₆ In ₂₇	a	20 nm	60 nm		† 30 nm
	"	a	60 nm			
	"	a	100 nm			
	Ni ₄₈ Mn ₂₆ In ₂₆	b		50 nm	33 nm	† 30 nm
	"	b			50 nm	
	"	b			66 nm	
320	Ni ₅₀ Mn ₂₅ In ₂₅	c	20 nm	177 nm		† 30 nm
	"	c	60 nm			
	"	c	100 nm			
340	Ni ₅₀ Mn ₂₅ In ₂₅	c	20 nm			
	"	c	60 nm			
	"	c	100 nm			
	Ni ₄₈ Mn ₂₅ In ₂₇	g				30 nm
360	Ni ₅₀ Mn ₂₅ In ₂₅	c	20 nm			
	"	c	60 nm			
	"	c	100 nm			

Tabelle A.3: Übersicht der verwendeten Ni₂MnIn-Heuslerproben. Wachstumstemperatur, aufgedampfte Heuslerschichtdicke und Stöchiometrie sind je Probe angegeben. Die Aufdampftrate betrug 1,6 nm/min (0,027 nm/s). Die Genauigkeit der mittels EDX bestimmten Stöchiometrie liegt bei ±1 at% je Legierungskomponente. Proben mit identischer Stöchiometrie wurden jeweils im gleichen Prozesslauf hergestellt und sind mit dem gleichen Kleinbuchstaben gekennzeichnet.

† Anhand dieser TEM-Proben wurde die Zusammensetzung der im jeweiligen Prozesslauf auf Halbleitersubstraten aufgedampften Heuslerschichten bestimmt.

Abbildungsverzeichnis

1.1	Kristallstruktur von Ni_2MnIn	6
1.2	Bandstruktur von einem halbmetallischen Ferromagnet	7
1.3	Bandstruktur von Ni_2MnIn	8
1.4	Zustandsdichte für Ni_2MnIn und dessen Grenzfläche	9
1.5	Wachstumsarten beim Aufdampfen	12
1.6	Gitterfehlpassung und kritische Schichtdicke	13
1.7	Auger-Prozess und Emissionswahrscheinlichkeit	16
1.8	Strahlengang bei Bragg-Brentano-Geometrie	19
1.9	Schichtdickenbestimmung mittels Röntgenreflektometrie	20
1.10	Strahlengang im TEM	22
1.11	Gradiometer 2. Ordnung bei Messungen im SQUID	26
1.12	Andreev-Reflexion an Normalleiter-Supraleiterkontakten	28
1.13	Prinzip eines Magneto-Optischen Ellipsometers	30
2.1	Querschnitt der Metalldepositions-kammer	32
2.2	Metalldepositions-kammer und Substratheizer	34
2.3	Adaption der in-vacuo Analytik	37
2.4	InAs-Wafer mit neun Ni_2MnIn -Schichten	42
2.5	MBE-Probenhalter aus Molybdän für TEM-Netzchen	44
2.6	SAM-Bild einer $\text{Ni}_2\text{MnIn}/\text{Si}$ -Probe	46
2.7	XRR-Spektren: Untersuchung zur Probenstabilität (Oxidation)	47
2.8	Schichtmodell für metamorphen InAs-HEMT	51
3.1	TEM-Probenpräparation	55
3.2	PCAR-Anordnung für Vierpunktmessung	57
4.1	TEM-HF-Bilder von freistehenden Ni_2MnIn -Filmen	62
4.2	TEM-SAD an freistehenden Ni_2MnIn -Filmen	63
4.3	XRR-Spektrum einer $\text{Ni}_2\text{MnIn}/\text{Au}/\text{Si}$ -Probe ($d_{\text{Heu}} = 50 \text{ nm}$)	64
4.4	Morphologie einer polykristallinen $\text{Ni}_2\text{MnIn}/\text{Au}/\text{Si}$ -Probe	65
4.5	XRD-Spektrum einer $\text{Ni}_2\text{MnIn}/\text{Au}/\text{Si}$ -Probe ($d_{\text{Heu}} = 50 \text{ nm}$)	67
4.6	PCAR-Messung an $\text{Ni}_2\text{MnIn}/\text{Au}/\text{Si}$ ($d_{\text{Heu}} = 50 \text{ nm}$, $T_{\text{Sub}} = 300^\circ\text{C}$)	68
4.7	PCAR-Messung an $\text{Ni}_2\text{MnIn}/\text{Au}/\text{Si}$ ($d_{\text{Heu}} = 60 \text{ nm}$, $T_{\text{Sub}} = 300^\circ\text{C}$)	69
4.8	PCAR-Messung an $\text{Ni}_2\text{MnIn}/\text{Au}/\text{Si}$ ($d_{\text{Heu}} = 60 \text{ nm}$, $T_{\text{Sub}} = 320^\circ\text{C}$)	70
4.9	SGME-Messung an $\text{Ni}_2\text{MnIn}/\text{Au}/\text{Si}$ -Proben	71

4.10	AFM-Messung an 60 nm dicken Ni ₂ MnIn-Schichten auf InAs	72
4.11	ORS-Messungen von Ni ₂ MnIn/InAs ($d_{Heu} = 20 \text{ nm}$)	73
4.12	XRR-Spektren von Ni ₂ MnIn/InAs-Proben ($d_{Heu} = 20 \text{ nm}$)	74
4.13	Aktivierungsenergie aus $d_{Reaktz} = f(T_{Subst})$	76
4.14	TEM-HF-Bilder von Ni ₂ MnIn/InAs-Querschnitten ($d_{Heu} = 60 \text{ nm}$) . .	77
4.15	TEM-SAD am Ni ₂ MnIn/InAs-Querschnitt ($d_{Heu} = 60 \text{ nm}$)	79
4.16	TEM 60 nm- <i>plan view</i> -Präparation und 20 nm- <i>cross-section</i> -HF-Bild .	80
4.17	TEM-SAD an 20 nm und 60 nm dicken Ni ₂ MnIn-Schichten	81
4.18	XRD-Spektren von Ni ₂ MnIn($1\bar{1}0$)/InAs(001)	83
4.19	XRD-Spektren von Ni ₂ MnIn(001)/InAs(001)	84
4.20	XRD- ω - θ -Karte für Ni ₂ MnIn(001)/InAs(001)	85
4.21	Rocking-Curve bei $\theta = 21,05^\circ$ an Ni ₂ MnIn(001)/InAs(001)	86
4.22	SQUID-Messung an Ni ₂ MnIn/InAs-Proben ($d_{Heu} = 100 \text{ nm}$)	87
4.23	SQUID-Messung an Ni ₂ MnIn/InAs-Proben ($T_{Sub} = 300^\circ \text{C}$)	89
4.24	PCAR-Messung an Ni ₂ MnIn/InAs ($d_{Heu} = 60 \text{ nm}$, $T_{Sub} = 320^\circ \text{C}$) . .	90
4.25	SGME-Messung an Ni ₂ MnIn/InAs-Proben ($d_{Heu} = 100 \text{ nm}$)	92
4.26	SGME-Messung an Ni ₂ MnIn/InAs-Proben ($T_{Sub} = 300^\circ \text{C}$)	93
4.27	Magnetotransportmessung an einer InAs-HEMT-Referenzprobe	94
4.28	Schichtmodell der Heusler/InAs-HEMT-Hybridstruktur	96
4.29	XRR-Spektrum von Ni ₂ MnIn/HEMT ($d_{Heu} = 50 \text{ nm}$, $T_{Sub} = 300^\circ \text{C}$) .	97
4.30	XRD-Übersichtsspektrum von Ni ₂ MnIn/HEMT	98
4.31	XRD-Detailsspektrum von Ni ₂ MnIn/HEMT	100
5.1	Modell für Morphologie und Struktur von Ni ₂ MnIn/InAs	105
6.1	CAD-3D-Modell der neuen Metall-MBE	115
6.2	Bauteile und Komponenten der Metall-MBE	118
6.3	CAD-3D-Modell des MBE-Manipulators	120
6.4	CAD-3D-Modell des Manipulatorvorbaus	122
A.1	PCAR-Messung an Ni ₂ MnIn/InAs ($d_{Heu} = 60 \text{ nm}$, $T_{Sub} = 300^\circ \text{C}$) . .	132

Tabellenverzeichnis

4.1	XRD-Literaturwerte für Ni_2MnIn	66
4.2	XRR-Modellparameter für $\text{Ni}_2\text{MnIn}/\text{InAs}$ ($d_{\text{Heu}} = 20 \text{ nm}$)	75
A.1	PCAR-Parameter aus Messungen an $\text{Ni}_2\text{MnIn}/\text{Au}/\text{Si}$	131
A.2	PCAR-Parameter für $\text{Ni}_2\text{MnIn}/\text{InAs}$ ($d = 60 \text{ nm}$, $T_{\text{Sub}} = 300^\circ\text{C}$) . . .	132
A.3	Übersicht der Ni_2MnIn -Heuslerproben	133

Literaturverzeichnis

- [And64] A. F. Andreev. *The thermal conductivity of the intermediate state in superconductor*. Soviet Physics - JETP **19**, 1228 (1964).
- [Art02] J. R. Arthur. *Molecular beam epitaxy*. Surface Science **500** (1-3), 189 (2002).
- [Aws02] D. D. Awschalom, M. E. Flatte and N. Samarth. *SPINTRONICS*. Scientific American **286** (6), 66 (2002).
- [Bac03] P. Bach, C. Rüster, C. Gould, C. R. Becker, G. Schmidt and L. W. Mollenkamp. *Growth of the half-Heusler alloy NiMnSb on (In,Ga)As/InP by molecular beam epitaxy*. Journal of Crystal Growth **251** (1-4), 323 (2003).
- [Bai88] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friederich and J. Chazelas. *Giant Magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr Magnetic Superlattices*. Physical Review Letters **61** (21), 2472 (1988).
- [Bar57] J. Bardeen, L. N. Cooper and J. R. Schrieffer. *Theory of Superconductivity*. Physical Review **108** (5), 1175 (1957).
- [Ben65] H. S. Bennett and E. A. Stern. *Faraday Effect in Solids*. Physical Review **137** (2A), A448 (1965).
- [Ber97] A. Berger and M. R. Pufall. *Generalized magneto-optical ellipsometry*. Applied Physics Letters **71** (7), 965 (1997).
- [Bey03] S. Beyer, S. Löhr, C. Heyn, D. Heitmann and W. Hansen. *Electronic properties of etched-regrown heterostructure interfaces*. Journal of Crystal Growth **251** (1-4), 96 (2003).
- [Bin86] G. Binnig, C. F. Quate and C. Gerber. *Atomic Force Microscope*. Physical Review Letters **56** (9), 930 (1986).
- [Bin89] G. Binasch, P. Grünberg, F. Saurenbach and W. Zinn. *Enhanced magnetoresistance in layered magnetic structures with antiferromagnetic interlayer exchange*. Physical Review B **39** (7), 4828 (1989).

- [Blo82] G. E. Blonder, M. Tinkham and T. M. Klapwijk. *Transition from metallic to tunneling regimes in superconducting microconstrictions: Excess current, charge imbalance, and supercurrent conversion*. Physical Review B **25** (7), 4515 (1982).
- [Boc07] L. Bocklage, J. M. Scholtyssek, U. Merkt and G. Meier. *Spin polarization of Ni_2MnIn and $Ni_{80}Fe_{20}$ determined by point-contact Andreev spectroscopy*. Journal of Applied Physics **101** (9), 09J512 (2007).
- [Bra07] W. R. Branford, L. J. Singh, Z. H. Barber, A. Kohn, A. K. Petford-Long, W. Van Roy, F. Magnus, K. Morrison, S. K. Clowes, Y. V. Bugoslavsky and L. F. Cohen. *Temperature insensitivity of the spin-polarization in Co_2MnSi films on $GaAs(001)$* . New Journal of Physics (2), 42 (2007).
- [Bri83] D. Briggs and M. P. Seah. *Practical Surface Analysis by Auger and X-ray Photoelectron Spectroscopy*. John Wiley & Sons (1983).
- [Bri03] D. Briggs and J. T. Grant. *Surface Analysis by Auger and X-ray Photoelectron Spectroscopy*. IM Publications (2003).
- [Bus83] K. H. J. Buschow, P. G. van Engen and R. Jongebreur. *Magneto-optical properties of metallic ferromagnetic materials*. Journal of Magnetism and Magnetic Materials **38** (1), 1 (1983).
- [Che76] J. R. Chelikowsk and M. L. Cohen. *Nonlocal pseudopotential calculations for the electronic structure of eleven diamond and zinc-blende semiconductors*. Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics) **14** (2), 556 (1976).
- [Che84] J. R. Chelikowsk and M. L. Cohen. *Erratum: Nonlocal pseudopotential calculations for the electronic structure of eleven diamond and zinc-blende semiconductors*. Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics) **30** (8), 4284 (1984).
- [Cho95] A. Y. Cho. *Twenty years of molecular beam epitaxy*. Journal of Crystal Growth **150** (1-4), 1 (1995).
- [Cho99] A. Y. Cho. *How molecular beam epitaxy (MBE) began and its projection into the future*. Journal of Crystal Growth **201-202**, 1 (1999).
- [Dat90] S. Datta and B. Das. *Electronic analog of the electro-optic modulator*. Applied Physics Letters **56** (7), 665 (1990).
- [Edi95] S. P. Edirisinghe, A. Staton-Bevan, P. N. Fawcett and B. A. Joyce. *Transmission electron microscopy study of $In_{0.25}Ga_{0.75}As$ epilayers grown on $GaAs(001)$ by molecular beam epitaxy: The effect of epilayer thickness*. Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures **13** (3), 967 (1995).

- [Fai08] N. Fairley. *CasaXPS*. Casa Software Ltd. <http://www.casaxps.com> (2008).
- [Fel07] C. Felser, G. H. Fecher and B. Balke. *Spintronik: eine Herausforderung für Materialwissenschaften und Festkörperchemie*. *Angewandte Chemie* **119** (5), 680 (2007).
- [Fie99] R. Fiederling, M. Keim, G. Reuscher, W. Ossau, G. Schmidt, A. Waag and L. W. Molenkamp. *Injection and detection of a spin-polarized current in a light-emitting diode*. *Nature* **402** (6763), 787 (1999).
- [Fra49] F. C. Frank and J. H. van der Merwe. *One-Dimensional Dislocations. I. Static Theory*. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences* **198** (1053), 205 (1949).
- [Fri94] G. Friedbacher, T. Prohaska and M. Grasserbauer. *Surface analysis with atomic force microscopy through measurement in air and under liquids*. *Microchimica Acta* **113** (3), 179 (1994).
- [Gal06] I. Galanakis, P. Mavropoulos and P. H. Dederichs. *Electronic structure and Slater-Pauling behaviour in half-metallic Heusler alloys calculated from first principles*. *Journal of Physics D-Applied Physics* **39** (5), 765 (2006).
- [Gei03] U. Geiersbach, A. Bergmann and K. Westerholt. *Preparation and structural properties of thin films and multilayers of the Heusler compounds Cu_2MnAl , Co_2MnSn , Co_2MnSi and Co_2MnGe* . *Thin Solid Films* **425** (1-2), 225 (2003).
- [Gib00] A. Gibaud and S. Hazra. *X-ray reflectivity and diffuse scattering*. *Current Science* **78** (12), 1467 (2000).
- [Gro83] R. A. de Groot, F. M. Mueller, P. G. van Engen and K. H. Buschow. *New Class of Materials: Half-Metallic Ferromagnets*. *Physical Review Letters* **50** (25), 2024 (1983).
- [Hah04] U. Hahn, M. Hesse, H. Remde and K. Zapfe. *A new cleaning facility for particle-free UHV-components*. *Vacuum* **73** (2), 231 (2004).
- [Hed95] C. L. Hedberg, K. D. Childs, B. A. Carlson, L. A. Vanier, J. F. Moulder, D. F. Paul, W. F. Stickle and D. G. Watson. *Handbook of Auger Electron Spectroscopy*. Physical Electronics, Eden Prairie, MN, 3rd edition (1995).
- [Hem07] C. K. Hem, H. F. Gerhard and F. Claudia. *Calculated electronic and magnetic properties of the half-metallic, transition metal based Heusler compounds*. *Journal of Physics D: Applied Physics* (6), 1507 (2007).
- [Her03] J. Herfort, H. P. Schonherr and K. H. Ploog. *Epitaxial growth of $Fe_3Si/GaAs(001)$ hybrid structures*. *Applied Physics Letters* **83** (19), 3912 (2003).

- [Heu03] Fr. Heusler. *Über magnetische Manganlegierungen*. Verh. d. Deutschen Physikalischen Gesellschaft **5**, 219 (1903).
- [Hey01] C. Heyn. *Critical coverage for strain-induced formation of InAs quantum dots*. Physical Review B **64** (16), 165306 (2001).
- [Hey03] C. Heyn, S. Mendach, S. Löhr, S. Beyer, S. Schnüll and W. Hansen. *Growth of shallow InAs HEMTs with metamorphic buffer*. Journal of Crystal Growth **251** (1-4), 832 (2003).
- [Hey06] C. Heyn, A. Schramm and H. Welsch. *Indium flux calibration applying RHEED* (2006).
- [Hir05] A. Hirohata, H. Kurebayashi, S. Okamura, M. Kikuchi, T. Masaki, T. Nozaki, N. Tezuka and K. Inomata. *Structural and magnetic properties of epitaxial $L2_1$ -structured $Co_2(Cr,Fe)Al$ films grown on GaAs(001) substrates*. Journal of Applied Physics **97** (10), 103714 (2005).
- [Hor07] I. Horcas, R. Fernandez, J. M. Gomez-Rodriguez, J. Colchero, J. Gomez-Herrero and A. M. Baro. *WSXM: A software for scanning probe microscopy and a tool for nanotechnology*. Review of Scientific Instruments **78** (1), 013705 (2007).
- [Hu01] C. M. Hu and T. Matsuyama. *Spin Injection Across a Heterojunction: A Ballistic Picture*. Physical Review Letters **87** (6), 066803 (2001).
- [Hua04] M. D. Huang, N. N. Lee, B. J. Kim, Y. P. Lee and Y. V. Kudryavtsev. *Magnetic and structural properties of Ni_2MnIn films*. Magnetics, IEEE Transactions on **40** (4), 2757 (2004).
- [Jah98] B. Jahnen, M. Albrecht, W. Dorsch, S. Christiansen, H. P. Strunk, D. Hanser and R. F. Davis. *Pinholes, Dislocations and Strain Relaxation in InGaN*. MRS Internet Journal of Nitride Semiconductor Research **2** (1998).
- [JCP94] JCPDS. *File no. 40-1208 (Ni_2MnIn)* (1994).
- [Jon96] D. E. Jones, J. P. Pelz, Y. Hong, I. S. T. Tsong, Y. H. Xie and P. J. Silverman. *Strain field imaging on Si/SiGe(001)-(2 × 1) surfaces by low-energy electron microscopy and scanning tunneling microscopy*. Applied Physics Letters **69** (21), 3245 (1996).
- [Kie31] H. Kiessig. *Interferenz von Röntgenstrahlen an dünnen Schichten*. Annalen der Physik **402** (7), 769 (1931).
- [Kil00] K. A. Kilian and R. H. Victora. *Electronic structure of Ni_2MnIn for use in spin injection*. Journal of Applied Physics **87** (9), 7064 (2000).

- [Kil01] K. A. Kilian and R. H. Victora. *Electronic structure of the $Ni_2MnIn/InAs$ (100) interface relevant to spin injection*. IEEE Transactions on Magnetics **37** (4), 1976 (2001).
- [Kle90] W. Kleber. *Einführung in die Kristallographie*. Verlag Technik, Berlin München, 17. stark bearbeitete Auflage (1990).
- [Kno32a] M. Knoll and E. Ruska. *Beitrag zur geometrischen Elektronenoptik. I*. Annalen der Physik **404** (5), 607 (1932).
- [Kno32b] M. Knoll and E. Ruska. *Beitrag zur geometrischen Elektronenoptik. II*. Annalen der Physik **404** (6), 641 (1932).
- [Köt06] J. Kötzler, D. Görlitz, M. Kurfiß, L. von Sawilski and E. Y. Vedmedenko. *Vortex fluctuations and freezing of dipolar-coupled granular moments in thin ferromagnetic films*. Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics) **73** (22), 224425 (2006).
- [Kov05] A. Koveshnikov, G. Woltersdorf, J. Q. Liu, B. Kardasz, O. Mosendz, B. Heinrich, K. L. Kavanagh, P. Bach, A. S. Bader, C. Schumacher, C. Ruster, C. Gould, G. Schmidt, L. W. Molenkamp and C. Kumpf. *Structural and magnetic properties of $NiMnSb/InGaAs/InP(001)$* . Journal of Applied Physics **97** (7), 073906 (2005).
- [Küb83] J. Kübler, A. R. William and C. B. Sommers. *Formation and coupling of magnetic moments in Heusler alloys*. Physical Review B **28** (4), 1745 (1983).
- [Kur03] M. Kurfiß and R. Anton. *Structural and magnetic properties of vapour deposited thin films of the Heusler alloy Ni_2MnIn* . Journal of Alloys and Compounds **361** (1-2), 36 (2003).
- [Kur05a] M. Kurfiß, F. Schultz, R. Anton, G. Meier, L. von Sawilski and J. Kötzler. *Structural and magnetic properties of Ni_2MnIn Heusler alloy films*. Journal of Magnetism and Magnetic Materials Proceedings of the Joint European Magnetic Symposia (JEMS' 04) **290-291** (Part 1), 591 (2005).
- [Kur05b] M. A. Kurfiß. *Präparation und Charakterisierung von Ni_2MnIn -Filmen*. Dissertation (2005).
- [Láb05] J. L. Lábár. *Consistent indexing of a (set of) single crystal SAED pattern(s) with the ProcessDiffraction program*. Ultramicroscopy **103** (3), 237 (2005).
- [Láb08] J. L. Lábár. *Electron Diffraction Based Analysis of Phase Fractions and Texture in Nanocrystalline Thin Films, Part I: Principles*. Microscopy and Microanalysis **14** (04), 287 (2008).

- [Láb09] J. L. Lábár. *Electron Diffraction Based Analysis of Phase Fractions and Texture in Nanocrystalline Thin Films, Part II: Implementation*. Microscopy and Microanalysis **15** (01), 20 (2009).
- [LB88] Landolt-Börnstein. *Heusler Alloys - 1.5.5.2.2 Ferromagnets X_2MnZ with $X = 3d$ element (Group III Volume 19 Subvolume C)*. In Ziebeck Webster, editor, *Landolt-Börnstein - Group III Condensed Matter*, volume Volume 19 / Subvolume C / 1988: Alloys and Compounds of d-Elements with Main Group Elements. Part 2, 87–95. Springer-Verlag, Heidelberg (1988).
- [Lee04] G. Lee, I. G. Kim, J. I. Lee and Y. R. Jang. *Magnetic properties of a ferromagnetic Heusler alloy Co_2MnSn* . physica status solidi (b) **241** (7), 1435 (2004).
- [Löh03] S. Löhr, S. Mendach, T. Vonau, C. Heyn and W. Hansen. *Highly anisotropic electron transport in shallow InGaAs heterostructures*. Physical Review B **67** (4), 045309 (2003).
- [Löh04] S. Löhr, C. Heyn and W. Hansen. *Nonplanar two-dimensional electron gases in InAs heterostructures on GaAs*. Applied Physics Letters **84** (4), 550 (2004).
- [Lon90] K. F. Longenbach, R. Beresford and W. I. Wang. *A complementary heterostructure field effect transistor technology based on InAs/AlSb/GaSb*. Electron Devices, IEEE Transactions on **37** (10), 2265 (1990).
- [Lou07] X. Lou, C. Adelman, S. A. Crooker, E. S. Garlid, J. Zhang, K. S. M. Reddy, S. D. Flexner, C. J. Palmstrom and P. A. Crowell. *Electrical detection of spin transport in lateral ferromagnet-semiconductor devices*. Nat Phys **3** (3), 197 (2007).
- [Mat74] J. W. Matthews and A. E. Blakeslee. *Defects in epitaxial multilayers: I. Misfit dislocations*. Journal of Crystal Growth **27**, 118 (1974).
- [Mat00] T. Matsuyama, R. Kürsten, C. Meißner and U. Merkt. *Rashba spin splitting in inversion layers on p-type bulk InAs*. Physical Review B **61** (23), 15588 (2000).
- [Mea63] C. A. Mead and W. G. Spitzer. *Fermi Level Position at Semiconductor Surfaces*. Physical Review Letters **10** (11), 471 (1963).
- [Men05] S. Mendach. *InGaAs-Mikro- und Nanoröhrchen*. Dissertation (2005).
- [Par54] L. G. Parratt. *Surface Studies of Solids by Total Reflection of X-Rays*. Physical Review **95** (2), 359 (1954).
- [Par98] S. S. P. Parkin. *The magic of magnetic multilayers*. IBM Journal of Research & Development **42** (1), 3 (1998).

- [Peo85] R. People and J. C. Bean. *Calculation of critical layer thickness versus lattice mismatch for Ge_xSi_{1-x}/Si strained-layer heterostructures*. Applied Physics Letters **47** (3), 322 (1985).
- [Ram95] K. Rammohan, D. H. Rich, R. S. Goldman, J. Chen, H. H. Wieder and K. L. Kavanagh. *Study of μm -scale spatial variations in strain of a compositionally step-graded $In_xGa_{1-x}As/GaAs(001)$ heterostructure*. Applied Physics Letters **66** (7), 869 (1995).
- [Ras00] E. I. Rashba. *Theory of electrical spin injection: Tunnel contacts as a solution of the conductivity mismatch problem*. Physical Review B **62** (24), R16267 (2000).
- [Ras09] W. S. Rasband. *ImageJ*. U. S. National Institutes of Health, Bethesda, Maryland <http://rsb.info.nih.gov/ij/> (1997-2009).
- [Rau05] R. Rauer, G. Neuber, J. Kunze, J. Backstrom and M. Rubhausen. *Temperature-dependent spectral generalized magneto-optical ellipsometry for ferromagnetic compounds*. Review of Scientific Instruments **76** (2), 023910 (2005).
- [Ros05] H. Rose. *Prospects for aberration-free electron microscopy*. Ultramicroscopy **103** (1), 1 (2005).
- [Sas04] E. Sasioglu, L. M. Sandratskii and P. Bruno. *First-principles calculation of the intersublattice exchange interactions and Curie temperatures of the full Heusler alloys Ni_2MnX ($X=Ga, In, Sn, Sb$)*. Physical Review B **70** (2), 024427 (2004).
- [Sch00] G. Schmidt, D. Ferrand, L. W. Molenkamp, A. T. Filip and B. J. van Wees. *Fundamental obstacle for electrical spin injection from a ferromagnetic metal into a diffusive semiconductor*. Physical Review B **62** (8), R4790 (2000).
- [Sch04] J. M. Scholtyssek. *Punktkontakt-Andreev-Spektroskopie an der Heusler-Legierung Ni_2MnIn* . Diplomarbeit (2004).
- [Sch07] J. M. Scholtyssek, L. Bocklage, R. Anton, U. Merkt and G. Meier. *Point-contact Andreev spectroscopy on thin Ni_2MnIn Heusler films*. Journal of Magnetism and Magnetic Materials **316** (2), e923 (2007).
- [Sea98] M. P. Seah and I. S. Gilmore. *Quantitative AES. VIII: analysis of auger electron intensities from elemental data in a digital auger database*. Surface and Interface Analysis **26** (12), 908 (1998).
- [Sie93] Siemens. *Diffraktometer D5000 – Betriebsanleitung* (1993).

- [Sin09] S. G. Singer, M. Bastjan, A. Volland, A. Kotlov, A. I. Lichtenstein, W. Hansen, A. Rusydi and M. Rübhausen. *Spectroscopic study of the spin-polarized electronic structure of the full Heusler alloy Ni_2MnIn and simulations within the spin density functional framework*. persönliche Mitteilung, unveröffentlicht (2009).
- [Sou98] R. J. Soulen, J. M. Byers, M. S. Osofsky, B. Nadgorny, T. Ambrose, S. F. Cheng, P. R. Broussard, C. T. Tanaka, J. Nowak, J. S. Moodera, A. Barry and J. M. D Coey. *Measuring the Spin Polarization of a Metal with a Superconducting Point Contact*. *Science* **282** (5386), 85 (1998).
- [Spi09] L. Spiess. *Moderne Röntgenbeugung*. Vieweg+Teubner, Wiesbaden, 2. überarbeitete u. erweiterte Auflage (2009).
- [Sti] A. Stierle. *FEWLAY*. The FEWLAY code can be obtained from Andreas Stierle (stierle@mf.mpg.de) .
- [Str39] I. N. Stranski and L. Krastanow. *Abhandlungen der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Klasse*. Akad. Wiss. Lit. Mainz Math.-Natur. Kl. Iib **146**, 797 (1939).
- [Tho85] M. Thompson, M.D. Baker, A. Christie and J. Tyson. *Auger Electron Spectroscopy (Chemical Analysis)*. John Wiley & Sons, Chichester (1985).
- [Tra09] M. Tran, H. Jaffres, C. Deranlot, J. M. George, A. Fert, A. Miard and A. Lemaitre. *Enhancement of the Spin Accumulation at the Interface between a Spin-Polarized Tunnel Junction and a Semiconductor*. *Physical Review Letters* **102** (3), 036601 (2009).
- [Uem08] T. Uemura, Y. Imai, S. Kawagishi, K. Matsuda and M. Yamamoto. *Epitaxial growth and characterization of Co_2MnSi thin films on GaAs with MgO interlayer*. *Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures* **40** (6), 2025 (2008).
- [Urb08] K. W. Urban. *Studying Atomic Structures by Aberration-Corrected Transmission Electron Microscopy*. *Science* **321** (5888), 506 (2008).
- [Urb09] K. W. Urban. *Is science prepared for atomic-resolution electron microscopy?* *Nat Mater* **8** (4), 260 (2009).
- [vO05] S. von Oehsen, J. M. Scholtyssek, C. Pels, G. Neuber, R. Rauer, M. Rübhausen and G. Meier. *Electronic properties of thin Ni_2MnIn Heusler films*. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* **290-291** (Part 2), 1371 (2005).
- [Vol26] M. Volmer and A. Weber. *Keimbildung in übersättigten Gebilden*. *Zeitschrift für Physikalische Chemie* **119**, 277 (1926).

- [Vol09] A Volland, M Bastjan, O Albrecht, A Zolotaryov, S Bohse, D Görlitz, C Heyn, M Rübhausen and W Hansen. *Spin polarization and magnetic properties of Ni₂MnIn Heusler alloys grown on InAs(001)*. unpublished (2009).
- [VR01] W. Van Roy, G. Borghs and J. De Boeck. *Epitaxial growth of the half-metallic ferromagnet NiMnSb on GaAs(001)*. Journal of Crystal Growth **227-228**, 862 (2001).
- [War90] B. E. Warren. *X-Ray Diffraction*. Addison-Wesley, New York, Neuauflage (1990).
- [Wea89] R. C. Weast. *Handbook of Chemistry and Physics*. CRC Press, inc. Boca Raton, Florida (1989).
- [Web69] P. J. Webster. *Heusler alloys*. Contemporary Physics **10** (6), 559 (1969).
- [Web84] P. J. Webster, K. R. A. Ziebeck, S. L. Town and M. S. Peak. *Magnetic order and phase transformation in Ni₂MnGa*. Philosophical Magazine Part B **49** (3), 295 (1984).
- [Woj02] M. Wojcik, W. Van Roy, E. Jedryka, S. Nadolski, G. Borghs and J. De Boeck. *NMR evidence for MnSb environments within epitaxial NiMnSb films grown on GaAs(001)*. Journal of Magnetism and Magnetic Materials **240** (1-3), 414 (2002).
- [Wol01] S. A. Wolf, D. D. Awschalom, R. A. Buhrman, J. M. Daughton, S. von Molnar, M. L. Roukes, A. Y. Chtchelkanova and D. M. Treger. *Spintronics: A Spin-Based Electronics Vision for the Future*. Science **294** (5546), 1488 (2001).
- [Xie01] J. Q. Xie, J. W. Dong, J. Lu, C. J. Palmstrøm and S. McKernan. *Epitaxial growth of ferromagnetic Ni₂MnIn on (001) InAs*. Applied Physics Letters **79** (7), 1003 (2001).
- [Xie05] J. Q. Xie, J. Lu, J. W. Dong, X. Y. Dong, T. C. Shih, S. McKernan and C. J. Palmstrom. *Effects of growth temperature on the structural and magnetic properties of epitaxial Ni₂MnIn thin films on InAs (001)*. Journal of Applied Physics **97** (7), 073901 (2005).
- [Yan97] Z. Yang, K. Zhang, S. Ke and X. Xie. *Electronic structure of Mn on the GaAs(001) surface*. Physical Review B **56** (11), 6727 (1997).
- [Zhu01] H. J. Zhu, M. Ramsteiner, H. Kostial, M. Wassermeier, H. P. Schonherr and K. H. Ploog. *Room-temperature spin injection from Fe into GaAs*. Physical Review Letters **87** (1), 016601 (2001).

- [Zol09] A. Zolotaryov, A. Volland, C. Heyn, D. Novikov, G. Stryganyuk, A. Kornowski, T. Vossmeier, O. Albrecht, E. Coric and W. Hansen. *Influence of growth temperature on phase and intermixing in Ni₂MnIn Heusler films on InAs(001)*. Journal of Crystal Growth **311** (8), 2397 (2009).

Danksagung

Herzlich bedanken möchte ich mich bei:

Prof. Dr. Wolfgang Hansen für die Möglichkeit, in seinem Fachgebiet diese Arbeit anzufertigen und hierfür auf diesem umfangreichen Gebiet weitgehend freizügig forschen zu dürfen, sowie für seine immer offen stehende Tür und die sehr gute Zusammenarbeit.

Dr. Andriy Zolotaryov für seine intensive und engagierte Unterstützung während der Analyse der Proben, seinem stetigen Interesse an fachlichen wie fachfremden Diskussionen, für die gemeinsam am DESY durchgeführten Messungen und die Nächte am TEM.

Dr. Christian Heyn für seine experimentelle Betreuung beim Aufbau der Metallkammer und die Einblicke in die Molekularstrahlepitaxie und Vakuumtechnik, welche mir bei der Konstruktion der neuen Metall-MBE sehr nützten.

Prof. Dr. Ulrich Merkt für die Übernahme des Zweitgutachtens der Dissertation.

Andrea Stemmann für die guten MBE-Proben, das Proben-Transferieren, die AFM-Messungen und die gute Atmosphäre im Labor.

Daniel Demiss für seine ausgezeichnete Mithilfe bei der Konstruktion des Manipulators, dem Verlöten von ungezählten Kabeln und dem Aufbau des Metallkammer-Kühlkreislaufes.

Ole Albrecht für die vielen SQUID-Messungen und die gute Zusammenarbeit, Dr. Tobias Vossmeier und Almut Bark für ihren Einsatz bei den Messungen am Labordiffraktometer, Andreas Kornowski für seine TEM-Untersuchungen, Dr. Marta Bastjan für die SGME-Messungen, Dr. Jan Scholtyssek und Hauke Lehmann für die PCAR-Untersuchungen sowie Dr. Gregory Stryganyuk für die ORS-Messungen und Analysen am DESY.

Dr. Dmitri Novikov vom HASYLAB/DESY für die Ermöglichung der Röntgenuntersuchungen und der Unterstützung an der Beamline E2, Emica Coric und Dr. Christoph Deneke für die FIB-Präparation der TEM-Lamellen, Dr. Stefan Singer für die

Diskussion der SGME-Ergebnisse und Prof. Dr. Michael Rübhausen für die Ermöglichung der SGME-Messungen.

Der Feinmechanischen Werkstatt unter der Leitung von Rolf-Peter Benecke für die zielorientierte Hilfestellung bei der Umsetzung der Konstruktionszeichnungen sowie dem persönlichen Einsatz beim komplexen und arbeitsintensiven Bau des neuen MBE-Rezipienten, ohne den eine Realisierung nicht möglich gewesen wäre.

Der Elektronischen Werkstatt unter der Leitung von Horst Biedermann für die vielfältige Verkabelung, den Bau von Interlocks und Stromverteilern, Hilfe bei Schaltungsfragen und der Reparatur von Geräten.

Dr. Malte Kurfiß für die vielen Gespräche und ‘Heusler’-Tips zu Beginn meiner Arbeit, Prof. Dr. Rainer Anton für den Zugang zu Interferenzmikroskop und REM, Wolfgang Pfützner für seine unermüdliche Unterstützung und Hilfe am TEM und am REM, Brigitte Muhlack für die Einweisung in die Entwicklung von TEM-Aufnahmen, Dr. Detlef Görlitz für die fachliche Unterstützung, Dr. Robert Frömter und Dr. Sabine Pütter für die Hilfe in AES und LEED, Karen Peters für die VAT-Schalterbastelei, Jannik Bolz für das Korrekturlesen der Arbeit sowie bei allen Mitgliedern und Stammtischmitbesuchern der Gruppen H, N und W für die angenehme Arbeitsatmosphäre.

Prof. Dr. Detlef Heitmann für die Leitung dieses BMBF Forschungsprojektes, dem Bundesministerium für Bildung und Forschung für die finanzielle Unterstützung durch das BMBF-Projekt 01BM467/nanoQUIT.

Nicht zuletzt möchte ich mich herzlich bei meiner Familie bedanken und insbesondere bei meinen Eltern für die Unterstützung meiner beruflichen Ziele während meiner gesamten Studienzeit sowie für das eifrige Korrekturlesen der Arbeit. Ich schätze mich glücklich, dass ich in allen bisherigen Lebenssituationen immer auf einen solchen Beistand und solche selbstlose Hilfe setzen konnte.