

Inaugural-Dissertation zur Erlangung des
Doktorgrades der Naturwissenschaften im Fach Physik

**Magnetotransport in
heterogenen
Zwei-Phasen-Systemen
am Beispiel der
Silberchalkogenide**

vorgelegt von

Gertrud Lembke

aus Mediasch / Rumänien

Institut für Angewandte Physik der Justus-Liebig-Universität Gießen

— Oktober 2007 —

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	5
2	Theoretische Grundlagen	7
2.1	Elektrischer Transport in Metallen	8
2.1.1	Elektrische Leitfähigkeit	14
2.2	Elektrischer Transport in Halbleitern	14
2.3	Streuprozesse	18
2.3.1	Streuung an atomaren Störstellen	18
2.3.2	Streuung an Phononen	20
2.3.3	Size-Effekt: Streuprozesse in dünnen Schichten	21
2.3.4	Quanteninterferenz bei tiefen Temperaturen: Schwache Lokalisierung	23
2.4	Magnetowiderstand	35
2.4.1	Der Normale Magnetowiderstand (OMR)	35
2.4.2	Magnetowiderstandseffekte in ferromagnetischen Systemen	38
2.4.3	Der Kolossale Magnetowiderstand (CMR)	43
2.4.4	Size-Effekt im Magnetfeld	46
2.4.5	Schwache Lokalisierung im Magnetfeld	47
2.4.6	Der Lineare Magneto-resistive Effekt (LMR)	51
2.4.7	Erklärungsversuch des LMR mittels Effective Medium Approximation	52
2.4.8	Erklärungsversuch des LMR anhand der Theorie von Parish und Littlewood	65
2.4.9	Erklärungsversuch des LMR als Spezialfall des Außergewöhnlichen Magneto-resistiven Effekts (EMR)	73
3	Experimentelle Grundlagen	77
3.1	Silberselenid $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$	77
3.1.1	Kristallstruktur und elektrische Eigenschaften	78
3.1.2	Magneto-resistive Eigenschaften	79
3.2	Silber	83
3.3	Silbergoldtellurid Ag_3AuTe_2	85

4	<i>Inhaltsverzeichnis</i>
3.4	Aufbau des Messplatzes 86
3.4.1	Hochfeldmagnet 86
3.4.2	Probenhalter 87
3.4.3	Messprogramm 91
3.5	Hall-Messungen 92
3.6	Probenherstellung und Charakterisierung 94
4	Messungen und Ergebnisse 99
4.1	Messungen an Silberselenid $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ 99
4.1.1	Hall-Messungen an den Silberselenid-Schichten 101
4.1.2	Magnetoresistive Messungen an den Silberselenid-Schichten 104
4.1.3	Auswertung der Schwachen Lokalisierung 110
4.1.4	Modellierung und Erklärung zur Mikrostruktur in dünnen $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ - Schichten 121
4.1.5	Auswertung des LMR 134
4.1.6	Messungen bei Raumtemperatur 138
4.2	Messungen an Silbergoldtellurid Ag_3AuTe_2 139
5	Zusammenfassung und Ausblick 143
	Abbildungsverzeichnis 146
	Tabellenverzeichnis 149
	Literaturverzeichnis 150
	Danksagung 159

Kapitel 1

Einleitung

Die Nutzung der Elektrizität beeinflusst seit etwa zwei Jahrhunderten immer mehr unser Leben und ist aus unserem heutigen Alltag nicht mehr wegzudenken. Je genauer die elektrischen Transporteigenschaften eines Materials sowie deren mögliche Beeinflussung verstanden werden, desto vielfältiger wird sein Einsatzbereich. Eine grundlegende und sehr einfache Möglichkeit der Beeinflussung dieser Eigenschaften ist ein magnetisches Feld, das durch die Veränderung der Elektronenbewegung je nach Material unterschiedliche Auswirkungen auf den spezifischen Widerstand hat. Einer der Höhepunkte der Erforschung dieser sogenannten „magnetoresistiven Effekte“ war die Entdeckung des GMR (gigantischer magnetoresistiver Effekt) 1986 durch Grünberg [1], was den Weg für eine Reihe wirtschaftlich und gesellschaftlich relevanter Anwendungen ebnete (Festplattenleseköpfe, magnetische Speicher, Magnetosensoren). Diverse MR-Effekte werden heutzutage bereits in der Sensorik ausgenutzt, dennoch existieren im Bereich der Hochfeldmagnetometrie für die Messung von Feldern bis zu 100 T keine geeigneten Sensoren.

1997 entdeckten Xu et al. [2] in den nicht-magnetischen Silberchalkogeniden einen ungewöhnlichen linearen MR-Effekt, der bereits bei wenigen Oersted (0.1 mT) linear verläuft, bei Feldern von 5.5 T und Raumtemperatur Werte von über 100 % annimmt und auch bei Feldstärken von 60 T noch nicht sättigt. Dieses Verhalten elektrisierte die Fachwelt und löste zahlreiche Untersuchungen bezüglich eines Einsatzes als Sensormaterial für die Detektion sowohl hoher als auch schwacher Felder aus [3, 4, 5, 6, 7, 8, 9].

Abrikosov schlug zur Erklärung dieses ungewöhnlichen Verhaltens als theoretisches Modell den sogenannten Quanten-Magnetowiderstand vor. Dieser tritt bei einem 2-Komponenten-System (bestehend aus einem Metall, eingebettet in eine halbleitende Matrix mit geringer Bandlücke) auf und führt zu einem mit dem Magnetfeld linearen Verhalten [10]. In klassischen Modellen in Anlehnung an ein „effektives Medium“-Modell modellierten Guttal und Stroud [11], Bulgadaev [12, 13] und später Magier und Bergmann [14] ebenfalls ein 2-Komponenten-System, das unter bestimmten Voraussetzungen einen linearen MR-Effekt zeigt. Hierbei wird die effektive Leitfähigkeit des Materials aus den Einzelleitfähigkeiten seiner beiden Komponenten berechnet und hängt vom Volumenverhältnis und der räumlichen Verteilung der beiden Bestandteile ab — ebenso die Größe des Magnetowiderstandes.

Ein alternatives, klassisches Modell wurde von Parish und Littlewood vorgestellt [15, 16], die auf der Basis eines zweidimensionalen Widerstandsnetzwerks aus vierpoligen Widerständen sowohl den Hall-Effekt als auch das MR-Verhalten beschreiben konnten. Damit zeigten sie, dass eine inhomogene Verteilung der Ladungsträgerbeweglichkeit generell zu einem transversalen linearen Magnetowiderstand führt und dass das Übergangsfeld von quadratischem zu linearem Verhalten ebenfalls hiervon abhängt. Dem letztgenannten Modell nahe verwandt ist ein Ansatz von Solin et al. [17, 18], die an einer homogenen nicht-magnetischen halbleitenden Scheibe aus Indiumantimonid (InSb) mit eingebetteter Metallscheibe kleinen Radius bei Raumtemperatur MR-Werte

von 750.000 % bei 4 T fanden und dieses mit einer feldinduzierten Ablenkung des Stroms um den Metalleinschluss erklärten, wobei sich die Funktion der Inhomogenität von einem Kurzschluss bei Nullfeld bis zu einer kompletten Stromunterbrechung bei hohen Feldern ändert.

Alle diese Modelle sind für die Untersuchung inhomogener Silberchalkogenid-Proben geeignet, da alle das elektrische Transportverhalten in Strukturen mit Metall-Ausscheidungen in einer halbleitenden Matrix mit geringer Bandlücke beschreiben. Den anschaulichsten sowie allgemein gültigsten Ansatz stellen in meinen Augen aber die beiden letztgenannten Modelle dar, insbesondere das Modell von Parish und Littlewood [15, 16], deren Vorhersagen noch nicht experimentell an Silberchalkogeniden überprüft wurden, was daher in der vorliegenden Arbeit als Hauptthema aufgegriffen wird.

Unglücklicherweise ist die experimentelle Bestimmung der Struktur der Silber-Ausscheidungen in der Ag_2Se -Matrix durch elektronenoptische oder chemische Methoden in makroskopischen Proben sehr aufwendig und ohne Zerstörung der Probe beinahe nicht möglich, so dass indirekte Methoden zur Untersuchung der Mikrostruktur herangezogen werden müssen. Eine Möglichkeit hierzu stellt die sogenannte „Schwache Lokalisierung“ der Elektronen dar — ein Quanteneffekt, der auf die Interferenz kohärenter Elektronenwellen, die bei einem Stromfluss durch einen Kristall in ihre Ursprungsrichtung zurückgestreut werden, zurückgeführt werden kann und der essentiell von der Mikrostruktur der Proben abhängt. Die Dekohärenz der Phase der Elektronenwellenfunktion wird bei ihrer Fortpflanzung durch einen Kristall durch verschiedene Mechanismen beeinflusst (elastische Streuung, Spin-Bahn-Streuung, Streuung an den magnetischen Momenten des Kristallgitters, inelastische Streuung an Elektronen sowie an Phononen) und kann bei tiefen Temperaturen in dünnen Schichten über die Messung des Magnetowiderstandes bei geringen Feldstärken bestimmt werden [19]. Hierbei zeigt sich nämlich ein zusätzlicher Beitrag zum Widerstand des Materials, der bei Anwesenheit eines magnetischen Feldes durch dessen Beeinflussung der Elektronenwellenfunktionen durch die Zerstörung der Phasenkohärenz verringert wird [20].

Hauptgegenstand der vorliegenden Arbeit ist demnach der lineare magnetoresistive Effekt (LMR), während die Untersuchung der schwachen Lokalisierung als neu entwickeltes Mittel zur Analyse und Kennparameterextraktion der Mikrostruktur betrachtet werden kann.

Diese Arbeit reiht sich ein in eine langjährige Kooperation zwischen dem Physikalisch-Chemischen Institut und dem Institut für Angewandte Physik der Justus-Liebig-Universität Gießen, um dem Phänomen des LMR auf die Spur zu kommen. Präparative Aufgaben sowie die elektronenoptische Charakterisierung der Proben wurden von der Arbeitsgruppe von Prof. Dr. J. Janek am Physikalisch-Chemischen Institut übernommen, während ich die magnetoresistive Charakterisierung am Institut für Angewandte Physik durchführte.

Die vorliegende Arbeit gliedert sich in einen Theorie-Teil und einen experimentellen Teil. In ersterem werden die zugrundeliegenden theoretischen Zusammenhänge der im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messungen präsentiert, während im zweiten zunächst die Eigenschaften der untersuchten Materialien ausführlich dargestellt und anschließend die Messungen und die daraus abgeleiteten Erkenntnisse ausgeführt werden. Hauptuntersuchungsmaterial ist dabei das Silberselenid $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$, dessen Mikrostruktur über die schwache Lokalisierung bestimmt und als Erklärung des LMR in diesem Materialsystem herangezogen wird. Die erhaltenen Ergebnisse werden an einem ähnlichen System (Ag_3AuTe_2 , hergestellt und optisch untersucht von Herrn Dr. Kienle, Max-Planck-Institut für Festkörperforschung Stuttgart) verifiziert und abschließend die gewonnenen Ergebnisse und Perspektiven für eine weitere Erforschung des LMR und der schwachen Lokalisierung als neue Methode zur Strukturcharakterisierung referiert.

Kapitel 2

Theoretische Grundlagen

Inhaltsverzeichnis

2.1 Elektrischer Transport in Metallen	8
2.1.1 Elektrische Leitfähigkeit	14
2.2 Elektrischer Transport in Halbleitern	14
2.3 Streuprozesse	18
2.3.1 Streuung an atomaren Störstellen	18
2.3.2 Streuung an Phononen	20
2.3.3 Size-Effekt: Streuprozesse in dünnen Schichten	21
2.3.4 Quanteninterferenz bei tiefen Temperaturen: Schwache Lokalisierung . .	23
2.4 Magnetowiderstand	35
2.4.1 Der Normale Magnetowiderstand (OMR)	35
2.4.2 Magnetowiderstandseffekte in ferromagnetischen Systemen	38
2.4.3 Der Kolossale Magnetowiderstand (CMR)	43
2.4.4 Size-Effekt im Magnetfeld	46
2.4.5 Schwache Lokalisierung im Magnetfeld	47
2.4.6 Der Lineare Magneto-resistive Effekt (LMR)	51
2.4.7 Erklärungsversuch des LMR mittels Effective Medium Approximation .	52
2.4.8 Erklärungsversuch des LMR anhand der Theorie von Parish und Littlewood	65
2.4.9 Erklärungsversuch des LMR als Spezialfall des Außergewöhnlichen Magneto-resistiven Effekts (EMR)	73

Die grundlegende Fähigkeit von Materialien, Strom bzw. Ladungsträger zu transportieren oder deren Transport zu unterbinden, erlangt seit mehr als einem Jahrhundert in unserem täglichen Leben immer mehr Bedeutung und ohne sie wäre unser heutiger Alltag nicht denkbar. Je genauer die Transporteigenschaften eines Materials bekannt und verstanden sind, desto vielfältiger wird sein Einsatzbereich, weshalb diese Eigenschaft theoretisches und experimentelles Basiswissen in einer Reihe physikalischer Studiengänge darstellt [25, 26]. Mit zunehmendem Fortschritt der wissenschaftlichen Methoden und Möglichkeiten werden auch Feinheiten im elektrischen Transport experimentell erforschbar, die bisher nur eingeschränkt oder gar nicht untersucht werden konnten, und die theoretischen Modelle können anhand experimenteller Daten auf ihre Richtigkeit überprüft werden.

In diesem Kapitel wird die Grundlage für die spätere Auswertung und Diskussion der experimentell erhaltenen Daten aus Kapitel 4 gelegt und daher der elektrische Transport in den untersuchten Materialklassen von Grund auf herausgearbeitet.

2.1 Elektrischer Transport in Metallen

In jedem Metall findet durch die thermische Energie seiner Elementarteilchen eine Bewegung seiner Elektronen statt — allerdings ohne Einwirkung einer äußeren Kraft ungerichtet und daher ohne Einfluss auf seine Umgebung. Wird das Metall hingegen einem äußeren elektromagnetischen Feld ausgesetzt, werden die Elektronen in Richtung des Feldes beschleunigt und innerhalb des Materials bildet sich ein Stromfluss aus. In einem perfekten Kristall ohne Verunreinigungen und strukturelle Defekte bewegen sich einmal beschleunigte Elektronen unendlich lange weiter und können durch das Modell freier Elektronen erklärt werden, das mathematisch durch die Lösung der Schrödinger-Gleichung $H\Psi = \varepsilon\Psi$ beschrieben wird [25]. Wird die potentielle Energie vernachlässigt, so ist $H = p^2/2m$ mit dem Impuls p und der Elektronenmasse m . In der Quantentheorie wird p durch den Impulsoperator $-i\hbar d/dx$ ersetzt und man erhält die zu lösende Gleichung:

$$H\Psi_n = -\frac{\hbar^2}{2m} \frac{d^2\Psi_n}{dx^2} = \varepsilon_n\Psi_n \quad \text{mit der Energie } \varepsilon_n \text{ des Elektrons im Niveau } n \quad (2.1)$$

Beschränkt man die Elektronen auf einen Potentialkasten mit unendlich hohen Potentialwänden und dem Volumen $V = L^3$, so erhält man im eindimensionalen Fall als stationäre Lösungen dieser Gleichung die ungestörte Ausbreitung der Elektronenwellen, deren Energie vom Niveau n sowie der Ausdehnung L des Potentialkastens abhängt:

$$\varepsilon_n = \frac{\hbar^2}{2m} \left(\frac{n\pi}{L} \right)^2. \quad (2.2)$$

Entsprechend dem Paulischen Prinzip kann jedes Energieniveau zwei Elektronen aufnehmen. Die Energie des höchsten besetzten Niveaus im Grundzustand, die sogenannte *Fermienergie* ε_F , berechnet sich im eindimensionalen Fall bei einem System von N Elektronen zu:

$$\varepsilon_F = \frac{\hbar^2}{2m} \left(\frac{N\pi}{2L} \right)^2. \quad (2.3)$$

Das Modell des freien Elektrons kann viele Charakteristika von Metallen richtig vorhersagen, wie die thermische und elektrische Leitfähigkeit, die magnetische Suszeptibilität und die elektrodynamischen Eigenschaften von Metallen. Allerdings versagt es bei der Klärung anderer wichtiger Punkte, wie dem Zustandekommen des Unterschiedes zwischen Metallen, Halbmetallen, Halbleitern und Isolatoren, dem Auftreten positiver Werte für die Hall-Konstante und anderen Einzelheiten der Transporteigenschaften, insbesondere unter dem Einfluss von Magnetfeldern. Eine Erweiterung dieses Modells stellt das Modell des nahezu freien Elektrons dar, in dem die erlaubten Energiewerte nicht mehr kontinuierlich von Null bis Unendlich verteilt sind, sondern auf sogenannte Energiebänder beschränkt sind, die durch eine schwache Störung der Elektronen durch das periodische Potential der Ionenrümpfe zustande kommen [25]. Diese Bänder, sowie deren Abstand untereinander, sind von entscheidender Bedeutung für die Frage, ob ein Festkörper ein elektrischer Leiter oder ein Isolator ist.

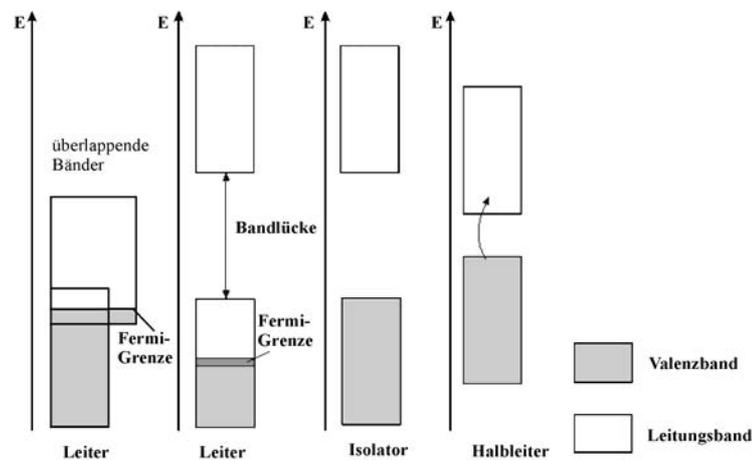


Abbildung 2.1: Bändermodell

Bei einem Metall ist entweder das Valenzband nicht ganz gefüllt oder das Valenzband überlappt mit dem Leitungsband, so dass sich die Elektronen quasi frei in dem Energieband bewegen können (Abb. 2.1, links). Isolatoren hingegen zeigen ein komplett gefülltes Valenzband mit einer Energielücke von mehreren eV bis zum nächsten erlaubten Band, so dass kein Stromfluss stattfinden kann (Abb. 2.1, 2.v.rechts). Bei einem Halbleiter ist das Valenzband am absoluten Nullpunkt ebenfalls komplett besetzt, allerdings ist die Energielücke zum nächsten erlaubten Band so gering (bis etwa 3 eV), dass eine Temperaturerhöhung zu einer Anhebung von Elektronen aus dem unteren Band in das nächsthöhere führt, was wiederum einen Stromfluss ermöglicht (Abb. 2.1, rechts).

Die Lösungen der Schrödingergleichung im Modell des nahezu freien Elektrons sind die sogenannten Bloch-Funktionen

$$\psi_{\vec{k}}(\vec{r}) = u_{\vec{k}}(\vec{r}) \exp(i\vec{k} \cdot \vec{r}) \quad \begin{array}{l} \vec{k}: \text{Wellenvektor des Elektrons} \\ \vec{r}: \text{Ortsvektor des Elektrons} \end{array} \quad (2.4)$$

wobei $u_{\vec{k}}(\vec{r})$ die Periodizität des Kristallgitters zugewiesen wird:

$$u_{\vec{k}}(\vec{r}) = u_{\vec{k}}(\vec{r} + \vec{R}) \quad \vec{R}: \text{Translationsvektor des Gitters.} \quad (2.5)$$

Für die genaue Beschreibung des Ladungstransports in Festkörpern wird die zeitliche Änderung der Besetzungswahrscheinlichkeit von Zuständen betrachtet. Diese ändert sich aufgrund folgender Mechanismen:

- Einwirkung externer Kräfte (z.B. elektromagnetische Felder, Temperaturgradienten)
- Diffusion aufgrund von Schwankungen der Elektronendichte
- Streuprozessen

Die klassische Transporttheorie wird von Charles Kittel in seinem Lehrbuch [25] auf sehr anschauliche Art und Weise beschrieben. Die klassische Verteilungsfunktion der Ladungsträger sei definiert durch:

$$f(\vec{r}, \vec{v})d\vec{r}d\vec{v} = d\vec{r}, \tag{2.6}$$

mit der Geschwindigkeitsverteilung $d\vec{v}$

Bei einer Zeitveränderung dt bleibt die Verteilung erhalten, wenn einem Volumenelement längs einer Flusslinie gefolgt wird und keine Stoßprozesse stattfinden:

$$f(t + dt, \vec{r} + d\vec{r}, \vec{v} + d\vec{v}) = f(t, \vec{r}, \vec{v}). \tag{2.7}$$

Bei Berücksichtigung von Stößen entspricht der Unterschied zwischen den beiden Zustandsdichten der durch die Stöße induzierten Änderung:

$$f(t + dt, \vec{r} + d\vec{r}, \vec{v} + d\vec{v}) - f(t, \vec{r}, \vec{v}) = dt(\partial f/\partial t)_{\text{Stöße}}. \tag{2.8}$$

Daher ist mit der Beschleunigung $\alpha = d\vec{v}/dt$:

$$\boxed{(\partial f/\partial t) + \vec{v} \cdot \mathbf{grad}_{\vec{r}}f + \alpha \cdot \mathbf{grad}_{\vec{v}}f = (\partial f/\partial t)_{\text{Stöße}}} \tag{2.9}$$

Dies ist die **Boltzmann'sche Transportgleichung**. Der Stoßterm $(\partial f/\partial t)_{\text{Stöße}}$ kann durch Einführung einer Relaxationszeit $\tau_c(\vec{r}, \vec{v})$ berücksichtigt werden, die definiert wird durch:

$$(\partial f/\partial t)_{\text{Stöße}} = -(f - f_0)/\tau_c. \tag{2.10}$$

Dabei ist f_0 die Verteilungsfunktion im thermischen Gleichgewicht und τ_c die Relaxationszeit (= die Zeit, die das System benötigt, um wieder in den Gleichgewichtszustand zurückzukehren). Eine Nichtgleichgewichtsverteilung der Geschwindigkeit der Ladungsträger erhält man durch die schon genannten äußeren Kräfte, nach deren Wegfall das System zurück zum Gleichgewicht relaxiert:

$$\frac{\partial(f - f_0)}{\partial t} = -\frac{f - f_0}{\tau_c}. \tag{2.11}$$

Dabei wurde berücksichtigt, dass $\partial f_0/\partial t = 0$ laut Definition der Gleichverteilung. Gleichung 2.11 hat die Lösung:

$$(f - f_0)_t = (f - f_0)_{t=0} \cdot \exp(-t/\tau_c). \tag{2.12}$$

Die Relaxationszeit τ_c kann dabei sowohl vom Ort \vec{r} als auch von der Geschwindigkeit \vec{v} des Teilchens abhängig sein. Aus (2.6), (2.9) und (2.10) folgt die Boltzmann'sche Transportgleichung in der **Relaxationszeitnäherung**, wobei im stationären Zustand nach Definition $\partial f/\partial t = 0$ ist:

$$\boxed{\frac{\partial f}{\partial t} + \vec{v} \cdot \mathbf{grad}_{\vec{r}} f + \alpha \cdot \mathbf{grad}_{\vec{v}} f = -\frac{f - f_0}{\tau_c}} \tag{2.13}$$

Im stationären Zustand in x -Richtung erhält man für die Relaxationszeitnäherung der Boltzmann'schen Transportgleichung

$$v_x df/dx = -(f - f_0)/\tau_c. \tag{2.14}$$

Dabei ändert sich die Nichtgleichgewichts-Verteilungsfunktion f in x -Richtung. In erster Ordnung erhält man damit:

$$f_1 \simeq f_0 - v_x \tau_c df_0/dx \tag{2.15}$$

Dabei wurde $\partial f/\partial x$ durch df_0/dx ersetzt. Durch Iteration können die Lösungen höherer Ordnung erhalten werden, beispielsweise erhält man für die Lösung zweiter Ordnung, die zur Behandlung nichtlinearer Effekte verwendet werden kann:

$$f_2 = f_0 - v_x \tau_c \frac{df_1}{dx} = f_0 - v_x \tau_c \frac{df_0}{dx} + v_x^2 \tau_c^2 \frac{d^2 f_0}{dx^2} \tag{2.16}$$

Im klassischen Grenzfall ist die Verteilungsfunktion

$$f_0 = \exp\left(\frac{\mu - \varepsilon}{\tau}\right) \quad \begin{array}{l} \mu = \text{chemisches Potential} \\ \varepsilon = \text{Energie} \\ \tau = \text{Temperatur} \end{array} \tag{2.17}$$

Damit erhält man

$$\frac{df_0}{dx} = \frac{df_0}{d\mu} \frac{d\mu}{dx} = \frac{f_0}{\tau} \frac{d\mu}{dx} \tag{2.18}$$

und die Lösung erster Ordnung (2.15) für die Nichtgleichgewichts-Verteilung wird

$$f = f_0 - v_x \tau_c \frac{f_0}{\tau} \frac{d\mu}{dx}. \tag{2.19}$$

Die Teilchenflussdichte in x -Richtung ist

$$J_n^x = \int v_x f D(\varepsilon) d\varepsilon \tag{2.20}$$

$D(\varepsilon)$ ist die Dichte der Elektronenzustände pro Einheitsvolumen und pro Energiebereich:

$$D(\varepsilon) = \frac{1}{2\pi^2} \left(\frac{2M}{\hbar^2}\right)^{3/2} \sqrt{\varepsilon} \quad M = \text{Ladungsträgermasse} \quad (2.21)$$

Damit gilt:

$$J_n^x = \int v_x f_0 D(\varepsilon) d\varepsilon - (d\mu/dx) \int (v_x^2 \tau_c f_0 / \tau) D(\varepsilon) d\varepsilon \quad (2.22)$$

Das erste Integral verschwindet, weil v_x eine ungerade Funktion und f_0 eine gerade Funktion von v_x ist, so dass der Nettoteilchenfluss für die Gleichgewichtsverteilung f_0 verschwindet. Das zweite Integral ist von Null verschieden.

Für den Fall, dass die Relaxationszeit τ_c unabhängig von der Geschwindigkeit ist, kann sie vor das Integral gezogen werden:

$$J_n^x = -(d\mu/dx)(\tau_c/\tau) \int v_x^2 f_0 D(\varepsilon) d\varepsilon. \quad (2.23)$$

Das Integral kann dann folgendermaßen geschrieben werden:

$$\frac{1}{3} \int v^2 f_0 D(\varepsilon) d\varepsilon = \frac{2}{3M} \int \left(\frac{1}{2} M v^2\right) f_0 D(\varepsilon) d\varepsilon = \frac{n\tau}{M}, \quad (2.24)$$

da das Integral gerade die kinetische Energiedichte $\frac{3}{2}n\tau$ der Teilchen darstellt. Dabei ist $\int f_0 D(\varepsilon) d\varepsilon = n$ die Konzentration. Die Teilchenflussdichte ist mit $\mu = \tau \log(n) + \text{const}$

$$J_n^x = -(n\tau_c/M)(d\mu/dx) = -(\tau_c\tau/M)(dn/dx) \quad (2.25)$$

Diese Gleichung hat die Form der Diffusionsgleichung, wobei $D_c = \tau_c\tau/M = \frac{1}{3}\langle v^2 \rangle \tau_c$ der Diffusionskoeffizient ist.

Nimmt man hingegen eine Relaxationszeit umgekehrt proportional zur Geschwindigkeit an, wie in $\tau_c = l/v$ mit konstanter mittlerer freier Weglänge l , so erhält man anstelle von (2.23):

$$J_n^x = -(d\mu/dx)(l/\tau) \int (v_x^2/v) f_0 D(\varepsilon) d\varepsilon, \quad (2.26)$$

und das Integral kann wie folgt geschrieben werden:

$$\frac{1}{3} \int v f_0 D(\varepsilon) d\varepsilon = \frac{1}{3} l \bar{c}, \quad (2.27)$$

wobei \bar{c} die mittlere Geschwindigkeit ist. Dann gilt:

$$J_n^x = -\frac{1}{3}(l\bar{c}n/\tau)(d\mu/dx) = -\frac{1}{3}l\bar{c}(dn/dx), \quad (2.28)$$

wobei $D_n = \frac{1}{3}l\bar{c}$ der Diffusionskoeffizient ist.

Bei Metallen ist die Gleichgewichtsverteilung gegeben durch die **Fermi–Dirac–Verteilung**:

$$f_0 = \frac{1}{\exp[(\varepsilon - \mu)/\tau] + 1}. \quad (2.29)$$

Um $df_0/dx = (df_0/d\mu)(d\mu/dx) = (f_0/\tau)(d\mu/dx)$ zu bilden, benötigt man $df_0/d\mu$. Für niedrige Temperaturen $\tau \ll \mu$ ist $df_0/d\mu \simeq \delta(\varepsilon - \mu)$, wobei δ die Dirac'sche Deltafunktion ist, für die gilt:

$$\int_{-\infty}^{\infty} F(\varepsilon)\delta(\varepsilon - \mu)d\varepsilon = F(\mu) \quad (2.30)$$

Wir betrachten das Integral $\int_0^{\infty} F(\varepsilon)(df_0/d\mu)d\varepsilon$. Bei niedrigen Temperaturen ist $df_0/d\mu$ sehr groß für $\varepsilon \simeq \mu$ und klein in den übrigen Bereichen. Wenn $F(\varepsilon)$ nicht sehr stark veränderlich ist (also in der Nähe von μ), so kann $F(\varepsilon)$ mit dem Wert $F(\mu)$ vor das Integral gezogen werden:

$$\begin{aligned} \int_0^{\infty} F(\varepsilon)(df_0/d\mu)d\varepsilon &\simeq F(\mu) \int_0^{\infty} (df_0/d\mu)d\varepsilon \\ &= F(\mu) \int_0^{\infty} (df_0/d\varepsilon)d\varepsilon = -F(\mu)[f_0(\varepsilon)]_0^{\infty} = F(\mu)f_0(0) \end{aligned} \quad (2.31)$$

Dabei wurde $df_0/d\mu = -df_0/d\varepsilon$ verwendet und ausgenutzt, dass $f_0 = 0$ für $\varepsilon \rightarrow \infty$. Bei niedrigen Temperaturen gilt $f_0(0) \simeq 1$, so dass die rechte Seite von (2.31) gerade $F(\mu)$ ist. Es folgt

$$df_0/dx = \delta(\varepsilon - \mu)d\mu/dx. \quad (2.32)$$

Die Teilchenflussdichte ist damit

$$J_n^x = -(d\mu/dx)\tau_c \int v_x^2 \delta(\varepsilon - \mu)D(\varepsilon)d\varepsilon, \quad (2.33)$$

mit der Relaxationszeit τ_c an der Oberfläche $\varepsilon = \mu$ der Fermikugel. Unter Verwendung von $D(\mu) = 3n/2\varepsilon_F$ am absoluten Nullpunkt, wobei $\varepsilon_F \equiv \frac{1}{2}mv_F^2$ die Geschwindigkeit v_F an der Fermifläche definiert, hat das Integral den Wert

$$\frac{1}{3}v_F^2(3n/2\varepsilon_F) = \frac{n}{m}. \quad (2.34)$$

Daher gilt:

$$J_n^x = -(n\tau_c/m)d\mu/dx. \quad (2.35)$$

Am absoluten Nullpunkt gilt $\mu(0) = (\hbar^2/2m)(3\pi^2n)^{2/3}$ woraus folgt:

$$\frac{d\mu}{dx} = \left(\frac{2}{3} \frac{\hbar^2}{2m} \frac{(3\pi^2)^{2/3}}{n^{1/3}} \right) \frac{dn}{dx} = \frac{2}{3}(\varepsilon_F/n) \frac{dn}{dx}. \quad (2.36)$$

Damit wird aus (2.33)

$$J_n^x = -\frac{2\tau_c}{3m}\varepsilon_F \frac{dn}{dx} = -\frac{1}{3}v_F^2\tau_c \frac{dn}{dx}. \quad (2.37)$$

Der Diffusionskoeffizient ist der Koeffizient von dn/dx : $D_n = \frac{1}{3}v_F^2\tau_c$

2.1.1 Elektrische Leitfähigkeit

Die elektrische Leitfähigkeit σ folgt direkt aus dem Ausdruck für die Teilchendiffusionskonstante, wenn die Teilchenflussladung mit der Teilchenladung q multipliziert und der Gradient $d\mu/dx$ des chemischen Potentials durch den Gradienten $qd\varphi/dx = -qE_x$ des äußeren Potentials ersetzt wird. E_x ist die x -Komponente der elektrischen Feldstärke. Die elektrische Stromdichte für die Fermi-Dirac-Verteilung folgt aus (2.35) zu:

$$\boxed{\vec{J}_q = \frac{nq^2\tau_c}{m}\vec{E} \quad \text{und} \quad \sigma = \frac{nq^2\tau_c}{m}} \quad (2.38)$$

Theoretisch verschwindet bei $T = 0$ K der elektrische Widerstand bei einer perfekt periodischen Gitterstruktur und die Elektronenzustände werden mit einer ebenen Welle $\Psi(k) = \mu_k(r)\exp(ikr)$ beschrieben. Abweichungen von der Periodizität wie Gitterschwingungen oder Defekte bewirken eine Streuung der Elektronenwellen an denselben, worauf der elektrische Widerstand basiert.

Die Bewegung der Elektronen wird durch diverse Streuprozesse an Unregelmäßigkeiten des Kristallgitters (Phononen und Defekten) sowie der Elektronen untereinander gehemmt (bei tiefen Temperaturen maßgeblich), was sich im elektrischen Widerstand des Leiters äußert. Die verschiedenen Streuprozesse werden in Kapitel 2.3 genauer dargestellt und ihre Relevanz für die Ergebnisse der späteren Messungen diskutiert.

2.2 Elektrischer Transport in Halbleitern

Halbleiter werden im Allgemeinen nach ihrem spezifischen Widerstand bei Raumtemperatur klassifiziert, der stoffspezifisch zwischen 10^{-2} Ωcm und 10^9 Ωcm betragen kann und stark temperaturabhängig ist. Am absoluten Nullpunkt ist ein reiner, perfekter Kristall der meisten Halbleiter ein Isolator, dessen spezifischer Widerstand 10^{14} Ωcm übersteigt.

Die Boltzmann'sche Transportgleichung mit den daraus resultierenden Zusammenhängen gilt selbstverständlich auch in Halbleitern. Die Ladungsträger erfahren allerdings in ihrer Bewegung eine Einschränkung, die durch die Form und Besetzung der Energiebänder sowie der dazwischen liegenden verbotenen Zonen bestimmt wird, was wiederum den elektrischen Transport entscheidend beeinflusst [25, 26].

Am absoluten Nullpunkt ist das Leitungsband leer und durch eine Energielücke E_g von dem gefüllten Valenzband getrennt (siehe Abb. 2.1, rechts). Mit steigender Temperatur werden Elektronen vom Valenzband ins Leitungsband thermisch angeregt. Sowohl die Elektronen im Leitungsband als auch die unbesetzten Orbitale bzw. Löcher, die nun im Valenzband entstanden sind, tragen zur elektrischen Leitfähigkeit bei.

Sehr reine Halbleiter zeigen sogenannte *Eigenleitung*, im Unterschied zur *Störstellenleitung* in weniger reinen Kristallen.

Eigenleitfähigkeit und intrinsische Ladungsträgerdichte hängen vom Verhältnis aus der Breite der verbotenen Zone E_g und der Temperatur T ab, also von $E_g/k_B T$. Ist das Verhältnis groß, so ist die Ladungsträgerdichte gering und damit der Widerstand hoch. Der Übergang eines Elektrons vom Valenzband ins Leitungsband erfolgt durch die Absorption thermischer Energie,

so dass mit steigender Temperatur diese Lücke leichter überwunden werden kann und somit die zur elektrischen Leitung zur Verfügung stehende Zahl der Ladungsträger stark ansteigt.

Im \vec{k} -Raum (\vec{k} : Wellenvektor des Elektrons) betrachtet, folgt die Bewegung eines Elektrons in einem Energieband der Bewegungsgleichung

$$\frac{\hbar d\vec{k}}{dt} = \vec{F}, \tag{2.39}$$

wobei \vec{F} die äußere Kraft auf das Elektron ist, die sich sowohl aus dem elektrischen Feld als auch aus dem Magnetfeld zusammensetzt.

Aus der Beziehung $\varepsilon = (\hbar^2/2m)k^2$ zwischen Energie und Wellenvektor für freie Elektronen (siehe Gl. 2.2 mit $k = n\pi/L$) erkennen wir, dass der Koeffizient von k^2 , d. h. die reziproke Masse $1/m$ die Krümmung von $\varepsilon(k)$ bestimmt. Nahe der Bandlücke an der Zonengrenze können Gebiete ungewöhnlich starker Krümmung auftreten. Ist die Energielücke schmal verglichen mit der Energie des freien Elektrons an der Zonengrenze, so ist die Krümmung und damit die reziproke Masse vergrößert.

Die effektive Masse m^* eines Elektrons wird definiert als

$$\frac{1}{m^*} = \frac{1}{\hbar^2} \frac{d^2\varepsilon}{dk^2}. \tag{2.40}$$

Die Ladungsträgerkonzentration bei Eigenleitung hängt von der Breite der Bandlücke ab. Bei hohen Temperaturen kann man für das Leitungsband $\varepsilon - \varepsilon_F \gg k_B T$ voraussetzen und damit die Fermi-Dirac-Verteilungsfunktion vereinfachen zu:

$$f_e \simeq \exp\left(\frac{\varepsilon_F - \varepsilon}{k_B T}\right). \tag{2.41}$$

Dies ist die Wahrscheinlichkeit dafür, dass ein Elektronenorbital im Leitungsband besetzt ist, in einer Näherung, die für $f_e \ll 1$ gilt.

Die Energie des Elektrons im Leitungsband ist

$$\varepsilon_k = E_c + \hbar^2 k^2 / 2m_e, \tag{2.42}$$

wobei E_c die Energie an der Leitungsbandkante und m_e die effektive Masse des Elektrons ist. Damit erhält man für die Zustandsdichte bei der Energie ε :

$$D_e(\varepsilon) = \frac{1}{2\pi^2} \left(\frac{2m_e}{\hbar^2}\right)^{3/2} (\varepsilon - E_c)^{1/2}. \tag{2.43}$$

Die Konzentration der Elektronen im Leitungsband ist:

$$n = \int_{E_c}^{\infty} D_e(\varepsilon) f_e(\varepsilon) d\varepsilon = 2 \left(\frac{m_e k_B T}{2\pi \hbar^2}\right)^{3/2} \exp\left(\frac{\varepsilon_F - E_c}{k_B T}\right). \tag{2.44}$$

Die Verteilungsfunktion für Löcher f_h hängt mit der für die Elektronen f_e durch die Beziehung $f_h = 1 - f_e$ zusammen, da ein Loch ein fehlendes Elektron darstellt. Also erhält man nach einer analogen Betrachtung für die Konzentration der Löcher p :

$$p = \int_{-\infty}^{E_V} D_h(\varepsilon) f_h(\varepsilon) d\varepsilon = 2 \left(\frac{m_h k_B T}{2\pi \hbar^2} \right)^{3/2} \exp[(E_V - \varepsilon_F)/k_B T], \quad (2.45)$$

wobei E_V die Energie an der Valenzbandkante ist.

Bei Eigenleitung ist die Beweglichkeit der Ladungsträger als Driftgeschwindigkeit in einem elektrischen Feld der Feldstärke Eins definiert: $\mu = |v|/E$. Sie ist sowohl für Elektronen als auch für Löcher positiv. Die elektrische Leitfähigkeit ist durch die Summe der Beiträge von Elektronen und Löchern gegeben:

$$\sigma = (ne\mu_e + pe\mu_h), \quad (2.46)$$

wobei n und p die Konzentrationen der Elektronen bzw. Löcher bezeichnen. Mit der Driftgeschwindigkeit $v = q\tau E/m$ für eine Ladung q folgt:

$$\mu_e = e\tau_e/m_e \quad \text{und} \quad \mu_h = e\tau_h/m_h. \quad (2.47)$$

Die Beweglichkeiten sind Funktionen niedriger Potenzen der Temperatur ($\mu \propto T^p$, wobei $0 \leq p \leq 2$). Der Temperaturverlauf der Leitfähigkeit im Bereich der Eigenleitung wird von der Abhängigkeit $\exp(-E_g/2k_B T)$ für die Ladungsträgerkonzentration beherrscht, wobei $E_g = E_c - E_V$ die Energielücke darstellt.

Bestimmte Arten von Fremdatomen und Kristallfehlern beeinflussen die elektrischen Eigenschaften eines Halbleiters drastisch. Durch den kontrollierten Einbau von Fremdatomen in Halbleiter (*Dotierung*) kann man ihre Leitfähigkeit um Größenordnungen verändern. Dabei werden in der Energielücke zusätzliche Niveaus gebildet, die entweder Elektronen aus dem Valenzband aufnehmen können (Akzeptoren, p-Dotierung) oder Elektronen an das Leitungsband abgeben können (Donatoren, n-Dotierung).

Wird ein Metall mit einem Halbleiter in Verbindung gebracht, beeinflussen sich die beiden Materialien in der Nähe der Grenzfläche erheblich, wie in Abbildung 2.2 für einen n-Halbleiter und ein Metall gezeigt wird, bei dem die Austrittsenergie des Metalls φ_m größer ist als die Elektronenaffinität χ des Halbleiters.

Wenn die beiden Materialien keinen wechselseitigen Einfluss auf ihre Bandstruktur hätten, würde sich an der Grenzfläche zwischen der Fermikante W_F und der Leitungsband-Unterkante des Halbleiters W_L eine Potenzialstufe (oder **Schottki-Barriere**) der Höhe $\varphi_B = \varphi_m - \chi$ bilden. In der physikalischen Realität werden die Oberflächen von Metall und Halbleiter durch die Bindung stark verändert und die tatsächliche Höhe der Potentialstufe oder Schottky-Barriere φ_B ist vor allem durch die Metall-Halbleiter-Bindung, aber auch durch Prozessparameter wie die Reinigung der Oberfläche bestimmt und kaum von der Austrittsarbeit des Metalls abhängig. Für n-Si liegt die Schottky-Barriere meist zwischen 0.5 und 0.9 eV.

Die Fermi-Energie W_F des ungestörten (n-dotierten) Halbleiters liegt zwischen den Donatorniveaus und der Leitungsband-Unterkante W_L , also knapp unterhalb des Leitungsbandes. Beim

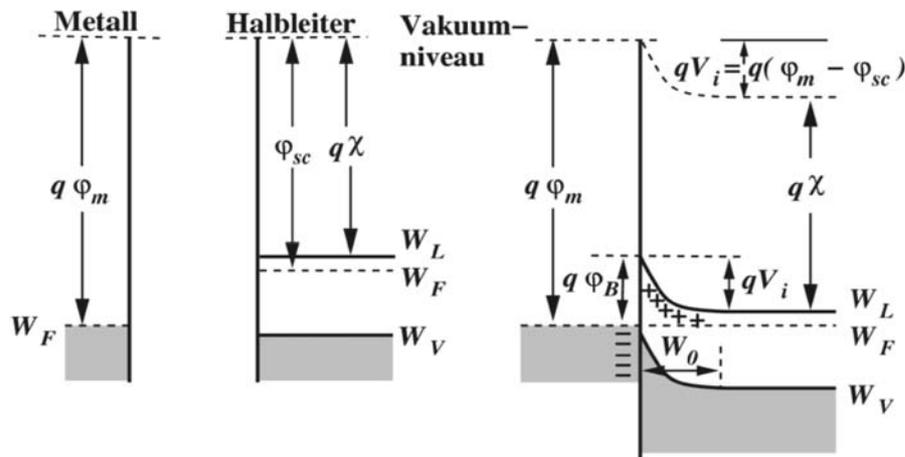


Abbildung 2.2: Beispiel eines Bandschemas bei einem Metall–Halbleiter–Kontakt [27].

Zusammenfügen des Metalls mit dem Halbleiter kommt es zum Ladungsausgleich, es gibt danach nur mehr eine gemeinsame Fermi–Energie. Es kommt dadurch zu einem Verbiegen der Bänder des Halbleiters. In dem in Abbildung 2.2 gezeigten Beispiel diffundieren Elektronen aus dem Halbleiter in das Metall, so dass die Raumladungszone im Halbleiter positiv und im Metall negativ ist. Aufgrund der hohen Ladungsträgerdichte im Metall ist allerdings die räumliche Ausdehnung verschwindend klein. Umgekehrt können aber die Elektronen aus dem Metall nicht in den Halbleiter diffundieren, da dort auf der Höhe des chemischen Potentials keine Zustände vorhanden sind.

Bei Kontakt mit einem p–dotierten Halbleiter diffundieren Elektronen aus dem Metall in den Halbleiter und rekombinieren mit den dort vorhandenen Löchern, was zu einer negativen Ladung des Halbleiters in der Nähe der Metall–Halbleiter–Kontaktfläche führt.

Im Falle eines Kontaktes eines Metalls mit einem undotierten Halbleiter nehmen beide Ladungsträgerarten am Ladungsausgleich teil und beide Bänder des Halbleiters müssen betrachtet werden (Zwei–Band–Modell). Nun entsteht im Leitungsband des Halbleiters eine Verarmung an Elektronen, aber im Valenzband eine Anreicherung an Defektelektronen (Löchern), was zu einer sogenannten Inversionsschicht führt. Im Experiment allerdings zeigt sich die Wirkung der Raumladungszone weitgehend unabhängig von dem gewählte Metall und seiner spezifischen Austrittsarbeit. Vielmehr sind sogenannte Grenzflächenzustände entscheidend für das Kontaktverhalten, die entweder als Donatoren oder Akzeptoren wirken, je nach Lage des Fermi–Niveaus. Es liegt also eine Verarmungszone vor, die zwar indirekt durch das die Grenzflächenzustände mitbestimmende Metall verursacht wird, die aber praktisch wenig mit der Austrittsarbeit des Metalls zu tun hat. Auch die Variation der Dotierung im Halbleiter ändert fast nichts an der Raumladung, ebensowenig das Anlegen einer äußeren Spannung. Die sog. Schottky–Barriere $e\Phi_{SB}$ ist deshalb eine für den speziellen Metall–Halbleiter–Übergang charakteristische Größe, sie hängt allerdings etwas von präparativen Details ab.

Eine ausführlichere Darstellung der Transportvorgänge in Halbleitern findet sich in [25, 26].

2.3 Streuprozesse

Die bisher betrachtete Bewegung der Ladungsträger in Materialien würde durch eine äußere Kraft unendlich beschleunigt, wenn nicht ein grundlegender Mechanismus diesem Effekt entgegenwirken würde. Jeglicher elektrischer Transport in Materialien, gleich ob Metall oder Halbleiter, wird durch Streuprozesse gestört und begrenzt. Supraleiter bei Temperaturen unterhalb der Sprungtemperatur bilden eine Ausnahme, allerdings gehören die in dieser Arbeit untersuchten Proben nicht zu dieser Materialklasse, so dass dieser sehr interessante Effekt hier nicht weiter diskutiert wird.

Da die Begrenzung der Ladungsträgerbewegung genauso wichtig ist wie ihre Dynamik selbst, findet sich eine ausführliche Beschreibung dieser Prozesse in vielen Standardwerken der Festkörperphysik [25, 26], weshalb hier nur eine kurze Erläuterung der einzelnen Beiträge gegeben wird — natürlich mit ausführlicher Diskussion der Prozesse, die in den im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Proben eine entscheidende Rolle spielen.

Die einzelnen Streuprozesse sind voneinander unabhängig und liefern jeder für sich einen Beitrag zum Gesamtwiderstand ρ_{ges} , für den die **Matthiesen–Regel** gilt: er setzt sich additiv aus den Einzelbeiträgen zusammen:

$$\begin{aligned}\rho_{ges} &= \rho_1 + \rho_2 + \rho_3 + \dots \\ \frac{1}{\lambda_{ges}} &= \frac{1}{\lambda_1} + \frac{1}{\lambda_2} + \frac{1}{\lambda_3} + \dots\end{aligned}\tag{2.48}$$

Die Streuquerschnitte S_i können mit Hilfe der Streutheorie in erster oder zweiter Born'scher Näherung berechnet werden. Allerdings sind sowohl die Streuquerschnitte als auch die Dichte der Streuzentren von der Temperatur und der Energie der Streuteilchen abhängig.

2.3.1 Streuung an atomaren Störstellen

Neutrale Störstellen

Neutrale Störstellen in Form neutraler Fremdatome finden sich in nahezu jedem Material, sofern nicht mit hochreinen Elementen gearbeitet wird. Den Beitrag neutraler Störstellen zum Gesamtwiderstand kann man durch ein Kastenpotential mit Höhe V_0 und Radius r_0 beschreiben und erhält für den totalen Wirkungsquerschnitt der Elektronen an der Fermi-Kante einen temperaturunabhängigen Beitrag, der für den sogenannten Restwiderstand verantwortlich ist [26]:

$$S = \pi r_0^2 \left(\frac{V_0}{E_F} \right)^2 \quad \text{mit} \quad E_F : \text{Fermi-Energie}\tag{2.49}$$

Geladene Störstellen

In einem Kristallgitter stellen anders als der Rest der Kristallbausteine ionisierte Fremdatome geladene Störstellen dar. Für die Störung durch ein solches Fremdatom ist hauptsächlich die Valenzdifferenz Z zwischen den Gitteratomen und den Fremdatomen entscheidend. Das Colombspotential des Streukörpers wird durch die Elektronen abgeschirmt, was bei der Betrachtung des

totalen Streuquerschnitts durch die Abschirmlänge $1/k_s$ ausgedrückt wird. In Metallen wird das Thomas–Fermi–Modell [25] verwendet, in Halbleitern das Debeye–Hückel–Modell [26]. Für den Streuquerschnitt ergibt sich erneut ein temperaturunabhängiger Ausdruck:

$$S = \pi \left(\frac{2mZe^2}{\hbar k_s^2} \right)^2 \frac{4k_s^2}{k_s^2 + 4k_F^2} \quad (\text{Linde'sche Regel}), \quad (2.50)$$

wobei m die Masse der Ladungsträger ist.

Kondo–Effekt

Der Kondo–Effekt [28] tritt in unmagnetischen Metallen auf, in denen geringe Konzentrationen (10 ppm – 10 %) magnetischer Dopanden (Fe, Mn, Co, Cr) gelöst sind. Dabei wirkt nicht nur die Ladung, sondern auch der Spin der Ladungsträger erhöhend auf den Widerstand, was sich als charakteristisches Minimum in der Widerstandskurve des Materials äußert (siehe Abbildung 2.3):

$$\rho \propto \ln \left(\frac{\epsilon}{k_B T} \right) \quad (2.51)$$

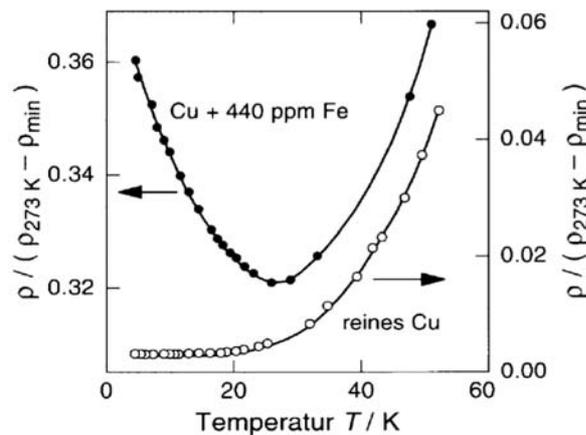


Abbildung 2.3: Kondo–Effekt am Beispiel von Kupfer [29].

Anschaulich kann der Kondo–Effekt dadurch erklärt werden, dass die magnetischen Momente durch eine Polarisationswolke von Ladungsträgern abgeschirmt werden, was zu einer Erhöhung des Streuquerschnittes und damit zur Erhöhung des elektrischen Widerstandes führt.

Für den Temperaturverlauf des Gesamtwiderstandes gilt damit:

$$\rho(T) = aT^5 + b\rho_0 + b\rho_1 \ln \left(\frac{\epsilon}{k_B T} \right), \quad (2.52)$$

mit den Konstanten a , b , ρ_0 und ρ_1 , wobei b von der Konzentration der magnetischen Verunreinigungen bestimmt wird.

Die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Proben sind aus hochreinen Materialien hergestellt, so dass die Konzentration an magnetischen Verunreinigungen als ausgesprochen gering angenommen wird und dieser Effekt damit keine Rolle spielt.

2.3.2 Streuung an Phononen

Ein weiterer Streumechanismus in Festkörpern besteht in der Wechselwirkung der Ladungsträger mit thermischen Schwingungen des Gitters (Phononen), deren Anzahl und Frequenz im Wesentlichen von der Temperatur abhängt. Folglich zeigt auch die Streuung der Elektronen an Phononen eine ausgeprägte Temperaturabhängigkeit und kann über Erhöhen der Temperatur verstärkt beziehungsweise durch Verringern derselben bis zum absoluten Temperaturnullpunkt vollständig unterdrückt werden.

Für hohe Temperaturen ($T \gg \theta_D$, wobei θ_D die Debye-Temperatur ist) und große Streuwinkel steigt der Widerstand proportional zur Temperatur an:

$$\rho \propto \frac{T}{M\Theta_D^2} \quad \text{mit der Ionenmasse } M \quad (2.53)$$

Die Debye-Temperatur θ_D kann dabei je nach Material zwischen 95 K in Blei und 1850 K in Diamant annehmen, d.h. dieser Verlauf setzt bei jedem Stoff ab einer individuellen Temperatur ein und es gibt keine für alle Stoffe universell gültige Temperatur.

Für niedrige Temperaturen ist die Situation komplizierter, da die Besetzung der Moden entsprechend der Bose-Einstein-Statistik beachtet werden muss:

$$n(\omega_q) = \frac{1}{\exp\left(\frac{\hbar\omega_q}{k_B T}\right) - 1}, \quad (2.54)$$

wobei ω_q die entsprechende Phononenfrequenz des Phonons mit Wellenvektor \vec{q} ist. Wenn man berücksichtigt, dass nicht alle Schwingmoden besetzt und nur noch Streuungen um kleine Winkel möglich sind — also durch den Ausschluss von Prozessen mit großem Streuwinkel — erhält man das Bloch-Grüneisen-Gesetz [30], das ein T^5 -Verhalten des spezifischen Widerstandes zeigt:

$$\rho \propto \left(\frac{T}{\Theta_D}\right)^5 \cdot \int_0^{\Theta_D/T} \frac{4x^5}{(e^x - 1)(1 - e^{-x})} dx \quad \text{mit } x \equiv \frac{\hbar\omega_q}{k_B T} = \frac{\Theta_D}{T} \frac{q}{q_D}, \quad (2.55)$$

Die temperaturabhängige Streuung an Phononen teilt sich also auf in zwei Bereiche:

- $T \gg \Theta_D$: Alle Phononenzustände bis zur Debye-Frequenz sind besetzt. Die Anzahl pro Zustand ist $k_B T$, was bedeutet, dass die Zahl der Streuer linear mit der Temperatur zunimmt, also ist $\rho \propto T$.
- $T \ll \Theta_D$: Die Zahl der besetzten Zustände steigt mit der Temperatur T . Innerhalb des Debye-Modells erhält man nun für die Zahl der Phononen $\int_0^{\omega^*} D(\omega_q) d\omega_q \sim \omega^*$. Mit $\hbar\omega_q \approx k_B T$ folgt daraus $\rho \propto T$. Da es sich hier aber um eine Streuung um kleine Winkel handelt, muss zusätzlich der Gewichtungsfaktor $1 - \cos(\theta)$ berücksichtigt werden, der eine T^2 -Abhängigkeit liefert, so dass insgesamt $\rho \propto T^5$ gilt.

Da die Streuung an Phononen bis hin zu tiefen Temperaturen quasi in jedem Festkörper stattfindet, spielt sie auch in den im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Proben bei der schwachen Lokalisierung eine entscheidende Rolle, wie später im Kapitel 2.3.4 ausführlich dargelegt wird.

2.3.3 Size-Effekt: Streuprozesse in dünnen Schichten

Bereits Ende des 19. Jahrhunderts wurde entdeckt, dass der spezifische Widerstand in dünnen Schichten deutlich größer ist als im entsprechenden Vollmaterial. Dieser zusätzliche Widerstand resultiert aus einem weiteren Streuprozess, der vom Verhältnis der mittleren freien Weglänge λ_0 der Elektronen zur Dicke der Probe d abhängig ist: der Streuung an der Oberfläche der Schicht sowie inneren Grenzflächen (Size-Effekt). Für $d \gg \lambda_0$ sind die Korrekturen klein, für den Fall, dass die freie Weglänge λ_0 groß ist gegenüber der Schichtdicke d , sind die Korrekturen erheblich.

J. J. Thompson [31] entwickelte anhand geometrischer Überlegungen eine Formel für die Leitfähigkeit dünner Schichten, die auf der durch die Streuung an den Schichtgrenzen verkürzten mittleren freien Weglänge der Ladungsträger basiert. Dabei nahm er an, dass die Streuwahrscheinlichkeit eines Elektrons an der Oberfläche eines Films unabhängig von der ursprünglichen sowie der gestreuten Bewegungsrichtung ist und dass die freie Weglänge λ_0 im Bulk-Material eine Konstante ist. Dadurch kann man anhand Abbildung 2.4 für die freie Weglänge λ in Schichten mit $d < \lambda$

$$\lambda = \begin{cases} (d - z)/\cos\theta & \text{für } 0 \leq \theta \leq \theta_1 \\ \lambda_0 & \text{für } \theta_1 \leq \theta \leq \theta_0 \\ -z/\cos\theta & \text{für } \theta_0 \leq \theta \leq \pi \end{cases} \quad (2.56)$$

berechnen, wobei $\cos\theta_0 = -z/\lambda_0$ und $\cos\theta_1 = (d - z)/\lambda_0$ ist.

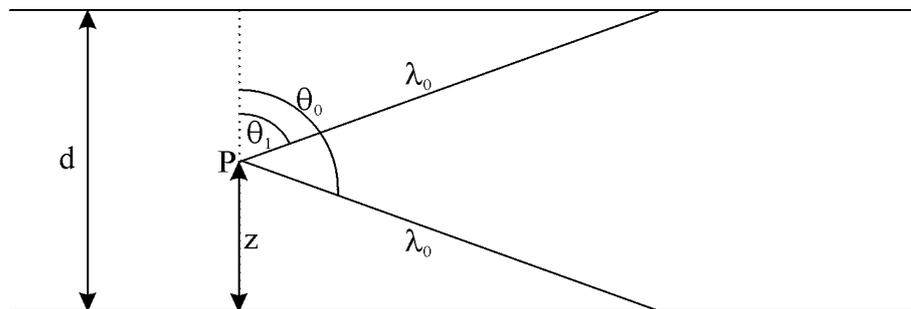


Abbildung 2.4: Freie Weglänge in dünnen Schichten (aus [9]).

Die mittlere freie Weglänge erhält man daraus, indem man über alle Winkel θ und alle Abstände z integriert:

$$\bar{\lambda} = \frac{1}{2d} \int_0^d dz \int_0^\pi \lambda \sin\theta d\theta = \frac{d}{2} \left(\ln \frac{\lambda_0}{d} + \frac{3}{2} \right). \quad (2.57)$$

Die Leitfähigkeit ist direkt proportional zur mittleren freien Weglänge der Elektronen, so dass sich damit für das Verhältnis der Leitfähigkeit in einem dünnen Film zu der im Bulk-Material

$$\frac{\sigma}{\sigma_0} = \frac{d}{2\lambda_0} \left[\ln \frac{\lambda_0}{d} + \frac{3}{2} \right] \quad (2.58)$$

ergibt. Allerdings wurden bei dieser Berechnung drei vereinfachende Annahmen gemacht, aufgrund derer dieser Ausdruck wiederum nur für Schichten gilt, bei denen $d \gg \lambda_0$:

- Statt über die freien Weglängen aller Elektronen zu einem bestimmten Zeitpunkt t zu mitteln, wurde über die verschiedenen möglichen freien Weglängen eines Elektrons gemittelt.
- Die statistische Verteilung der freien Weglängen im Bulk-Material um λ_0 wurde nicht mit berücksichtigt.
- Freie Weglängen, die an der Oberfläche beginnen, wurden vernachlässigt.

Fuchs und Sondheimer [32, 33] erweiterten dieses Modell um die oben genannten Punkte und führten das Verhältniss $\kappa = d/\lambda_0$ aus Schichtdicke d und der freien Weglänge der Elektronen λ_0 ein. Beträgt dieses Verhältnis 1, so erhält man für Schichtsysteme mit rauhen Grenzflächen bereits einen um einen Faktor 1.46 erhöhten Widerstand. Strompfade in der Größenordnung von wenigen nm werden gemäß ihrer Berechnungen deutliche Leitfähigkeitserniedrigungen von mehreren 100% nach sich ziehen.

Bei zusätzlicher Berücksichtigung der elastischen Oberflächenstreuung in dünnen Schichten findet man nach Fuchs und Sondheimer folgende Integralgleichung:

$$\rho(d) = \rho_0 \left(1 - \frac{3}{2\kappa}(1-p) \int_1^\infty \left(\frac{1}{d^3} - \frac{1}{d^5} \right) \frac{1 - e^{-\kappa d}}{1 - pe^{-\kappa d}} dd \right)^{-1}. \tag{2.59}$$

Dabei beschreibt der Spiegelungsparameter p die prozentuale Anzahl der Elektronen, die elastisch an der Oberfläche gestreut werden. Für die Grenzfälle $\kappa \gg 1$ und $\kappa \ll 1$ erhält man:

$\frac{\sigma_0}{\sigma} = 1 + \frac{3}{8\kappa}(1-p) \quad \text{für } \kappa \gg 1$	(2.60)
$\frac{\sigma_0}{\sigma} = \frac{3}{4} \frac{1-p}{1+p} \frac{1}{\kappa \log(1/\kappa)} \quad \text{für } \kappa \ll 1$	

Im Fall von Drähten anstelle von Schichten ergibt sich ein gesteigerter Size-Effekt, da ein Draht mit kreisförmigem Querschnitt gegenüber der Schicht eine erhöhte Wahrscheinlichkeit für Oberflächenstreuung besitzt. Nordheim findet für den spezifischen Widerstand [34]:

$$\rho = \rho_0 \left(1 + \frac{1}{\kappa} \right) \tag{2.61}$$

Die modifizierte Nordheim Formel lautet:

$$\rho = \rho_0 \left(1 + C \cdot (1-p) \frac{1}{\kappa} \right), \tag{2.62}$$

in der p wieder den bereits eingeführten Spiegelungsparameter beschreibt. Die Konstante C wird nach der exakten Theorie von Dingle [35] angepaßt und es findet sich $C = 0.75$ für $\kappa \gg 1$ und $C = 1/(1+p)$ für $\kappa \ll 1$.

Der eigentliche physikalische Streuprozess, der die Wechselwirkung des Elektrons an der Grenzfläche beschreibt, wurde gänzlich in den Spiegelungsparameter p verbannt. Es bleibt nun noch zu klären, in welchem Maße die Ladungsträger an den Grenzflächen zwischen Körnern in mesoskopischen Proben gestreut werden. Dies wird durch den Faktor p beschrieben.

Es gibt eine Reihe von Arbeiten, die sich mit Streuung an Grenzflächen und deren Einfluss auf den Size Effekt beschäftigt haben. Sie zeigen, dass man bei rauhen Oberflächen oder polykristallinen Schichten mit $p = 0$ (diffuse Streuung) rechnen kann. A. Berman et al. untersuchten Silberfilme mit kontrollierter Oberflächenrauigkeit und zeigten, dass $p > 0$, also spiegelnd gestreut, nur durch nachträgliche Wärmebehandlung bei Temperaturen von über 300 °C erzielt werden kann, wodurch die Oberfläche geglättet wird [36]. K. L. Chopra hat mit einer Vielzahl von Publikationen zur Bestimmung von p beigetragen [37, 38, 39]. Besonders hervorzuheben sind hierbei seine Arbeiten zu den Multischichten, bei denen der Einfluss einer zusätzlich aufgetragenen isolierenden oder halbleitenden Schicht auf den Size Effekt in Silber-, Gold- und Kupferschichten bestimmt wurde (er findet $p \approx 0$, die Grenzflächen waren allesamt diffuse Streuer) [37].

Da die Silberselenid-Proben, die im Rahmen dieser Arbeit untersucht wurden, Dicken in der Größenordnung von wenigen bis zu einigen hundert nm haben, ist zu vermuten, dass sie einen gewissen Size-Effekt zeigen. Dies muss bei der Auswertung der Messungen über die Ermittlung der mittleren freien Weglänge der Elektronen in den untersuchten Materialien überprüft werden.

2.3.4 Quanteninterferenz bei tiefen Temperaturen: Schwache Lokalisierung

Ein weiterer Effekt, der bei tiefen Temperaturen den Verlauf des Widerstands eines Materials entscheidend beeinflusst, ist die sogenannte „schwache Lokalisierung“ (**Weak Localisation, WL**), die auf der Quanteninterferenz von Leitungselektronen beruht, die an Verunreinigungen im System gestreut werden [40]. Diese Erscheinung wurde zuerst von Abrahams et al. [41] bei der Entwicklung einer Skalentheorie für zweidimensionale Leiter in Betracht gezogen und gewann in den folgenden Jahren rasch an Bedeutung. Zahlreiche theoretische sowie experimentelle Gruppen befassten sich mit diesem Phänomen und das Widerstandsverhalten bei tiefen Temperaturen sowie das MR-Verhalten wurden intensiv untersucht [42, 44, 45, 46, 47, 54].

Vor allem die Arbeiten von G. Bergmann [20, 40] liefern eine sehr anschauliche Erklärung dieses Phänomens, weshalb deren Inhalt im Folgenden kurz zusammengefasst wird.

Bei tiefen Temperaturen kann zwischen zwei unterschiedlichen Lebensdauern eines Elektrons unterschieden werden:

- der elastischen Lebensdauer τ_0 , die die Verweildauer eines Elektrons in einem Impuls-Eigenzustand angibt und
- der inelastischen Lebensdauer τ_i , die die Verweildauer des Elektrons in einem Energie-Eigenzustand angibt.

Bei Temperaturen flüssigen Heliums (4.2 K) kann τ_i viel größer werden als τ_0 , wodurch ein Leitungselektron im Impulszustand \vec{k} elastisch an Verunreinigungen gestreut werden kann, ohne seine Phasenkohärenz zu verlieren. Die an den statistisch verteilten Defekten gestreuten Wellen bilden ein chaotisches Muster. Nach der gebräuchlichen Theorie von Boltzmann [25] findet keine Wechselwirkung zwischen den gestreuten Partialwellen statt, so dass der Impuls der Elektronenwelle mit der Streuzeit τ_0 exponentiell verschwindet. Daraus folgte für freie Elektronen die schon hergeleitete Drude-Formel $\sigma = ne^2\tau_0/m$.

Tatsächlich beeinflussen sich die Elektronen doch gegenseitig, indem eine kohärente Superposition der gestreuten Elektronenwelle im Material stattfindet, die zu einer Rückstreuung der

Elektronenwelle führt, solange die Kohärenz der Welle bestehen bleibt. Dies hat eine Erhöhung des elektrischen Widerstandes zur Folge, die im Kubo-Formalismus im \vec{k} -Raum berechnet werden kann. Der Kubo-Formalismus erlaubt die Berechnung der Leitfähigkeit in elektronischen Systemen, wobei über einen Störungsansatz eine von \vec{q} und ω abhängige Leitfähigkeit berechnet wird, was Langer und Neal [48] anhand des Fächerdiagramms in Abbildung 2.5 (a) durchführten.

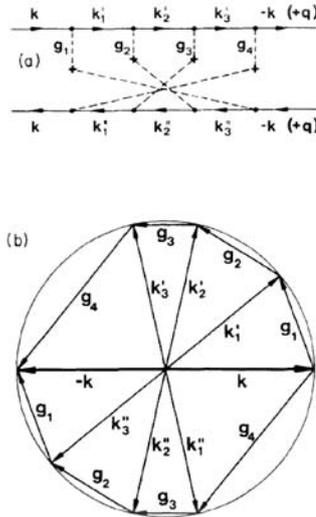


Abbildung 2.5: (a) Fächer-Diagramm von Langer und Neal [48], das die Berechnung von Quantenkorrekturen zur Leitfähigkeit mittels des Kubo-Formalismus erlaubt. (b) Physikalische Interpretation und Darstellung des Fächerdiagramms aus (a). Das Elektron im Eigenzustand \vec{k} wird über zwei komplementäre Streuserien in den Zustand $-\vec{k}$ gestreut. Die Amplituden im Endzustand $-\vec{k}$ sind identisch und interferieren konstruktiv, wodurch sie ein Echo in Rückstreurichtung bewirken, das in zwei Dimensionen mit $1/t$ abfällt (aus [20]).

Ein Elektron zum Zeitpunkt $t = 0$ habe den Impuls \vec{k} mit der Wellenfunktion $\exp[i\vec{k}r]$. Nach einer Zeit τ_0 wird das Elektron in den Zustand \vec{k}'_1 gestreut, nach $2\tau_0$ in den Zustand \vec{k}'_2 , usw. Mit einer endlichen Wahrscheinlichkeit wird das Elektron nach n Streueignissen in den Zustand $-\vec{k}$ gestreut. Die Streusequenz

$$\vec{k} \rightarrow \vec{k}'_1 \rightarrow \vec{k}'_2 \rightarrow \vec{k}'_3 \rightarrow \dots \rightarrow \vec{k}'_{n-1} \rightarrow \vec{k}'_n = -\vec{k} \tag{2.63}$$

ist in Abbildung 2.5 (b) im \vec{k} -Raum gezeigt. Die Impulsüberträge sind $\vec{g}_1, \vec{g}_2, \dots, \vec{g}_n$. Gleichzeitig existiert eine gleich große Wahrscheinlichkeit, dass das Elektron \vec{k} in n Schritten aus dem Zustand \vec{k} in den Zustand $-\vec{k}$ über die Sequenz

$$\vec{k} \rightarrow \vec{k}''_1 \rightarrow \vec{k}''_2 \rightarrow \vec{k}''_3 \rightarrow \dots \rightarrow \vec{k}''_{n-1} \rightarrow \vec{k}''_n = -\vec{k} \tag{2.64}$$

gestreut wird, wobei die Impulsüberträge $\vec{g}_n, \vec{g}_{n-1}, \dots, \vec{g}_1$ sind. Diese Streuserie ist komplementär zur ersten und damit ist die Amplitude im finalen Zustand $-\vec{k}$ die gleiche für beide Streusequenzen. Zusätzlich ist die Wahrscheinlichkeit der Streuung wegen der Symmetrie der beiden Prozesse gleich. Ebenso ist die Energie der korrespondierenden Zwischenstufen paarweise gleich, so dass die zeitabhängigen Phasenänderungen (Et/\hbar) identisch sind.

Die Amplituden des Endzustandes A' und A'' sind phasenkohärent und gleich ($A = A' = A''$), daher ist die totale Intensität:

$$|A' + A''|^2 = |A'|^2 + |A''|^2 + A'^* A'' + A' A''^* = 4 |A|^2. \tag{2.65}$$

Sind die beiden Wellen nicht kohärent, so ist die totale Streuintensität der beiden komplementären Sequenzen nur $2 |A|^2$ und damit ist die Streuintensität in den Zustand $-\vec{k}$ um $2 |A|^2$ größer als im Fall unkohärenter Streuung. Dieser zusätzliche Beitrag existiert nur in der Rückstreu-Richtung; für andere Zustände an der Fermi-Kante, weit genug weg von $-\vec{k}$, findet sich nur eine inkohärente Superposition von jeweils 2 Sequenzen und daher eben nur eine mittlere Streuintensität pro Sequenz mit n Streueignissen von $|A|^2$.

Das Fächerdiagramm in Abbildung 2.5 (oben) liefert nur das Produkt $A'^* A''$, also die Intensität der Interferenz. Der obere Propagator repräsentiert die Amplitude des Elektrons \vec{k} , das über die Streusequenz $'$ in den Zustand $-\vec{k}$ gestreut wird, während der untere die Bewegung des Lochs darstellt. Bei der Inversion der Pfeilrichtung des unteren Propagators wird die Amplitude des Elektrons \vec{k} dargestellt, das in den Zustand $-\vec{k}$ über die Streusequenz $''$ gestreut wird. Die umgekehrte Richtung der Pfeile (d. h. dass es ein lochartiger Propagator ist), liefert das komplex Konjugierte der Amplitude.

Bei hohen Temperaturen werden die Streuprozesse teilweise inelastisch, wodurch die Amplituden A' und A'' ihre Phasenkohärenz nach der Zeit τ_i verlieren und die Intensität der zurückgestreuten Welle sich zu $2 |A|^2$ reduziert, d. h. die kohärente Rückstreuung verschwindet nach der Zeit τ_i .

In Abbildung 2.6 wird der Impuls des Elektrons als Funktion der Zeit dargestellt. Der ursprüngliche Impuls fällt mit der elastischen Lebensdauer τ_0 ab. Später wird ein Impuls in entgegengesetzter Zeit geformt, der invers proportional zur Zeit abnimmt. Damit erhält man ein Echo des originalen Zustands \vec{k} in entgegengesetzter Richtung, das nur verschwindet, wenn die beiden Prozesse ihre Kohärenz verlieren. Offensichtlich vermindert sich der integrierte Impuls des Elektrons \vec{k} mit steigender Streuzeit τ_i .

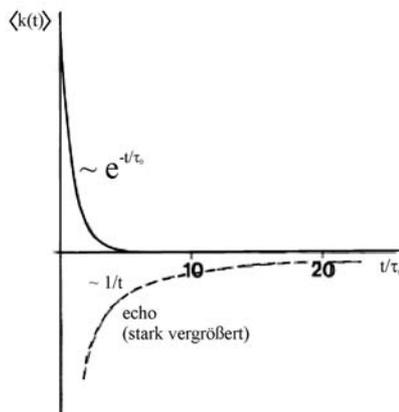


Abbildung 2.6: Beitrag des Elektronenzustands \vec{k} zum Impuls als Funktion der Zeit. Der Originalzustand und sein Impuls fallen exponentiell mit der Zeit τ_0 ab. Das Echo mit Impuls $-\vec{k}$ fällt mit $1/t$ ab und reduziert den Beitrag des Elektrons zum Strom (aus [20]).

Im Folgenden wird diese Streuung semi-quantitativ behandelt:

Nach der elastischen Lebensdauer τ_0 wird das Elektron \vec{k} in eine Schale auf der Fermi-Oberfläche gestreut, von der angenommen wird, dass sie Z Zwischenzustände enthält. Die Amplitude im Zwischenzustand \vec{k}'_1 ist $Z^{-1/2}e^{i\delta_1}$, wobei $e^{i\delta_1}$ hauptsächlich durch die normierte Fourierkomponente des Streupotentials $V(g_1)/|V(g_1)|$ gegeben ist. Die Intensität im nächsten Zwischenzustand \vec{k}'_2 zur Zeit $2\tau_0$ ist Z^{-2} . Nach n Streuprozessen ist die Intensität im Endzustand $-\vec{k}$ Z^{-n} und die Amplitude $Z^{-n/2}e^{i\Sigma\delta_\nu}$. Die zweite Streuserie liefert die gleiche Amplitude, wodurch der Interferenz-Term zu $A'^*A'' + A'A''^* = 2Z^{-n}$ wird. Die Summierung über alle möglichen Zustände liefert den Faktor $1/2Z^{n-1}$ (Der Faktor $1/2$ tritt auf, da die beiden komplementären Serien zweimal in der Summe auftauchen). Daher ist die zusätzliche Intensität der kohärenten Rückstreuung Z^{-1} und unabhängig von der Anzahl der Zwischenstreuozustände n sowie gleich der Streuintensität von \vec{k} in \vec{k}'_1 .

Für die Berechnung von Z in zwei Dimensionen wird die Streuung aus dem Zustand \vec{k} in den Zustand \vec{k}'_1 betrachtet, einem Zwischenzustand für die gesamte Streusequenz, in dem die Energie nicht zwangsläufig erhalten bleiben muss (virtueller Streuprozess). Dieser Zwischenzustand kann im Intervall $\pi\hbar/\tau_0$ um die Fermi-Energie liegen, was einer Energieverschmierung der Fermikugel um π/l entspricht (l =mittlere freie Weglänge der Leitungselektronen). Der verfügbare Platz im \vec{k} -Raum ist daher $2\pi k_F \cdot \pi/l = 2\pi^2 k_F/l$ und Z wird berechnet über die Multiplikation der Zustandsdichte im \vec{k} -Raum.

Die kohärente Rückstreuung ist nicht auf den exakten Zustand $-\vec{k}$ beschränkt, sondern findet in einem schmalen Bereich um $-\vec{k}$ statt. Nun wird die Intensität der kohärenten Rückstreuung in einen Zustand $-\vec{k} + \vec{q}$ berechnet, der nach n Streuschritten mit einem Impulsübertrag \vec{g}_i erreicht wird, wobei $\Sigma\vec{g}_i = -2\vec{k}_F + \vec{g}$. Die Summe der Impulse des Anfangs- und Endzustandes ist $+\vec{q}$. Das gleiche gilt für jedes Paar von Streuzuständen in Abbildung 2.5 b), die einander gegenüber liegen, z. B. $\vec{q} = \vec{k}'_1 + \vec{k}''_{n-1} = \vec{k}'_2 + \vec{k}''_{n-2} = \dots$. Die entsprechenden Zwischenzustände unterscheiden sich nicht nur im Impuls, sondern auch in der Energie. Die Energiedifferenz ist $\hbar\vec{q} \cdot v_F$ und da die Phase mit Et/\hbar rotiert, erhält man während der Zeit τ_0 eine Phasendifferenz zwischen den beiden komplementären Wellen von $\vec{q} \cdot v_F \tau_0$. Wichtig hierbei ist, dass die Zwischenzustände unabhängige Impulsrichtungen haben. Dadurch sind die Phasen unabhängig in ihrem Vorzeichen sowie ihrem Absolutwert, d.h., dass nur die Quadrate der Phasenverschiebungen sich addieren. Daher ist die Phasendifferenz zwischen den komplementären Wellen nach n Streuprozessen

$$(\Delta\varphi)^2 = n\overline{(\vec{q} \cdot \vec{v}_F \tau_0)^2} = n\frac{1}{2}(v_F q \tau_0)^2 = nDq^2\tau_0, \quad (2.66)$$

wobei D die Diffusionskonstante ist. In zwei Dimensionen wird der Mittelwert über $(v_F \cdot \vec{q})^2$ zu $(v_F q)^2/2$, in drei Dimensionen zu $(v_F q)^2/3$, wobei die Diffusionskonstante den Faktor der Dimension weghebt. Die benachbarten Zustände von $-\vec{k}$ tragen weniger zur kohärenten Rückstreuung bei, da die Phasenkohärenz mit steigendem n und q verloren geht. Ihr Beitrag ist proportional zu $\exp(-Dq^2t)$, da $t = n\tau_0$. Die Fläche des Punkts für die kohärente Rückstreuung wird durch Integration über \vec{q} erhalten. In zwei Dimensionen erhält man $\pi/(Dt)$. Das entspricht $\pi(Dn\tau_0)^{-1}/(2\pi)^2$ Zuständen, d. h. ihre Anzahl verringert sich mit der Zeit. Dadurch ist der Anteil der kohärenten Rückstreuung gegeben durch:

$$I_{koh} = \frac{\pi/(Dt)}{2\pi^2 k_F/l} = \frac{\tau_0}{\pi k_F l t} = \frac{\hbar}{2\pi E_F t}. \quad (2.67)$$

Ein elektrisches Feld bewirkt eine Bewegung der Elektronen und damit einen elektrischen Strom. Das Echo der Elektronen, d. h. die kohärente Rückstreuung reduziert den Stromfluss und damit die Leitfähigkeit. Ein kurzer Feldpuls generiert einen kurzen Stromfluss (z. B. für die Zeit τ_0) in die Richtung des elektrischen Feldes und dann einen kurzen Stromfluss in die entgegengesetzte Richtung, der mit $1/t$ abfällt. Die Gleichstromleitfähigkeit erhält man durch Integration des Impulses über die Zeit. Für den normalen Beitrag erhält man $\vec{k}\tau_0$ und für das Echo $(\vec{k}\tau_0/(\pi k_F l))\ln(\tau_i/\tau_0)$. Daher liefert ein Elektron im Zustand \vec{k} folgenden Beitrag zum Impuls:

$$\vec{k}\tau_0 - [1/(\pi k_F l)]\ln(\tau_i/\tau_0). \tag{2.68}$$

Der Beitrag des Elektrons \vec{k} zum Stromfluss ist reduziert um den Faktor in den Klammern und die Leitfähigkeit ist um den gleichen Faktor verringert:

$$L = (ne^2\tau_0/m) \cdot 1 - [1/(\pi k_F l)]\ln(\tau_i/\tau_0). = (ne^2\tau_0/m) - [e^2/(2\pi^2\hbar)] \cdot \ln(\tau_i/\tau_0) \tag{2.69}$$

mit $n = 2\pi k_F^2/(2\pi)^2$ [42].

Die wichtigste Folgerung dieser Überlegungen ist, dass die Leitungselektronen ein typisches Interferenz-Experiment durchlaufen. Die einlaufende Welle \vec{k} wird in zwei komplementäre Wellen \vec{k}'_1 und \vec{k}''_1 geteilt, die unabhängig voneinander durch das Material propagieren und im Zustand $-\vec{k}$ wieder zusammenlaufen, wo sie interferieren. Die Stärke der Interferenz wird einfach durch den Widerstand gemessen. In dem bisher diskutierten Szenario ist die Interferenz konstruktiv im Zeitintervall von τ_0 bis τ_i .

Diese theoretischen Überlegungen wurden bald durch diverse experimentelle Ergebnisse an AuPd-Filmen [49] und dünnen Cu-Filmen untermauert [50].

Trotzdem zeigte bald darauf Altshuler [51] einen weiteren Effekt in zweidimensionalen, ungeordneten Systemen, der die gleiche Widerstands-anomalie zeigt wie die schwache Lokalisierung — eine modifizierte Coulomb-Wechselwirkung. Die Elektron-Elektron-Wechselwirkung ist nicht vollständig abgeschirmt, sondern verfügt über eine lange Reichweite. Dies beeinflusst sowohl die Zustandsdichte als auch den Widerstand von zweidimensionalen, ungeordneten Systemen. Über das Verhalten des Systems in einem Magnetfeld allerdings können diese beiden Effekte voneinander getrennt werden.

Zur weiteren Veranschaulichung wird im Folgenden die Bewegung des Elektrons im Ortsraum betrachtet. Das Elektron hat eine sehr geringe elastische Weglänge und propagiert daher in einem zweidimensionalen Leiter von Verunreinigung zu Verunreinigung. Für ein Elektron am Ursprung zum Zeitpunkt $t = 0$ liefert die klassische Diffusionsgleichung in zwei Dimensionen die Wahrscheinlichkeit, das Elektron zur Zeit t an der Stelle \vec{r} zu finden:

$$p(\vec{r}, t) = [1/(4\pi Dt)] \cdot \exp[-r^2/(4Dt)] \tag{2.70}$$

Die Wahrscheinlichkeit für die Rückkehr zum Ursprung ist gegeben durch $1/(4\pi Dt)$. In Abbildung 2.7 ist ein möglicher Weg für die Diffusion eines Elektrons gezeigt, zu seinem Ursprung zurückzukehren.

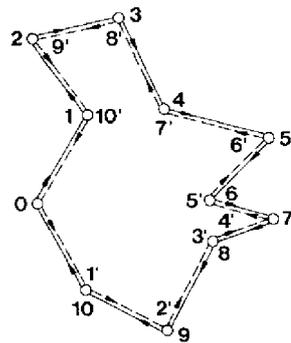


Abbildung 2.7: Möglicher Diffusionspfad eines Elektrons in einem ungeordneten System (aus [20]).

Bei der klassischen Diffusion besteht eine identische Wahrscheinlichkeit für das Elektron, auf dem selben Weg in die entgegengesetzte Richtung zu propagieren. Die beiden Wahrscheinlichkeiten addieren sich zu der Gesamtwahrscheinlichkeit von $1/(4\pi Dt)$. Durch den Wellencharakter des Elektrons muss man zwei Partialwellen annehmen, die in entgegengesetzter Richtung auf dem gleichen Pfad laufen und deren Amplituden A' und A'' sich beim Ursprungspunkt addieren (siehe auch Altshuler et al. [47]). Da die beiden Partialwellen auf dem gleichen Pfad in entgegengesetzter Richtung propagieren, sind die beiden Amplituden A' und A'' gleich und solange das System zeitumkehrbar ist, stimmen auch die Phasen der beiden Partialwellen am Ursprungspunkt überein. Deshalb ist die Intensität oder Wahrscheinlichkeit doppelt so groß wie im klassischen Diffusionsproblem ($1/(2\pi Dt)$). Für die Diffusion zu jedem anderen Punkt außer der nächsten Umgebung des Ursprungspunktes sind die beiden Partialwellen im allgemeinen inkohärent und nur ihre Intensitäten addieren sich. Abbildung 2.8 zeigt qualitativ die Wahrscheinlichkeiten im klassischen und quantenmechanischen Fall. Die gestrichelte Linie zeigt die Tendenz des Elektrons, zum Ursprungspunkt zurückzukehren oder dort zu bleiben. Daher wurde der Effekt „schwache Lokalisierung“ (Weak Localization, WL) genannt.

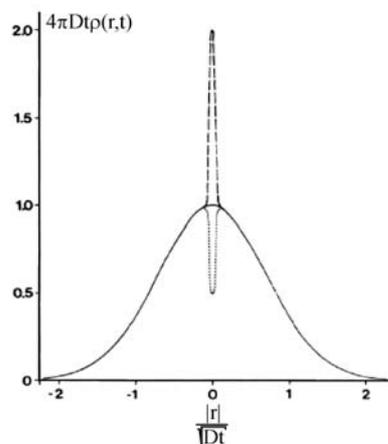


Abbildung 2.8: Wahrscheinlichkeitsverteilung eines diffundierenden Elektrons, das zur Zeit $t = 0$ bei $\vec{r} = 0$ startet. Im Bild der Quantendiffusion (gestrichelter Peak), ist die Wahrscheinlichkeit einer Rückkehr zum Ursprung doppelt so hoch wie im klassischen Fall (durchgehende Kurve). Spin-Orbit-Streuung reduziert diese Wahrscheinlichkeit um einen Faktor 2 (gepunktete Kurve) und führt zur schwachen Antilokalisierung (aus [20]).

Eine der interessantesten Fragen bei der Quanteninterferenz in Materialien ist der Einfluss der Spin–Orbit–Streuung [20, 53, 54]. Bei Vorherrschen dieses Mechanismus’ im Material liefert die Quantendiffusion nämlich eine reduzierte Aufenthaltswahrscheinlichkeit am Ursprungspunkt, was als „schwache Anti–Lokalisierung“ bekannt wurde [52].

Wie später in Kapitel 2.4.5 ausführlicher erklärt wird, zerstört ein angelegtes Magnetfeld die Phasenkohärenz der gestreuten Elektronenwellen, wodurch sich der Widerstand des Leiters verringert. Hikami et al. [53] sagten bei Anwesenheit starker Spin–Orbit–Streuung eine logarithmische Abnahme des Widerstands mit der Temperatur voraus, wodurch sich das Vorzeichen des Magnetowiderstandsverhaltens ändern sollte. Diese Voraussage war genau das Gegenteil des bisherigen Bildes der schwachen Lokalisierung und wurde von Bergmann experimentell an dünnen Mg–Filmen bestätigt [55].

Magnesium ist ein leichtes Metall mit sehr geringer Spin–Orbit–Streuung und sein Widerstand zeigt den für die schwache Lokalisierung typischen Verlauf bei geringen Temperaturen. Eine dünne Au–Schicht auf den Filmen allerdings führt zu einem deutlich veränderten MR–Verhalten: das Vorzeichen des MR–Effekts kehrt sich um und zeigt eine Struktur, die die Stärke der Spin–Orbit–Streuung angibt, wie man anhand der Abbildung 2.9 sehen kann.

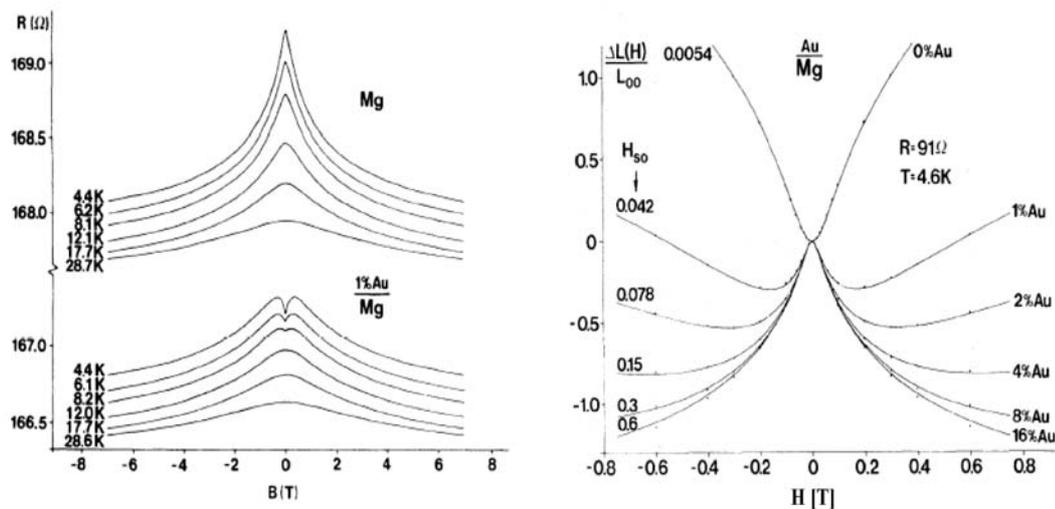


Abbildung 2.9: Magnetoresistiver Effekt von Magnesium mit Gold–Schicht. Links: Magnetowiderstand eines Mg–Films bei unterschiedlichen Temperaturen (oben). Eine 1% Atomlagen dicke Goldschicht auf dem Mg verändert das Verhalten signifikant und führt zu destruktiver Interferenz bei geringen Magnetfeldstärken (unten) [40]. Rechts: Magnetoleitfähigkeit von Mg, bedeckt von unterschiedlich dicken Goldlagen (Angabe in Prozent einer Atomlage, rechts im Graphen), Messung bei 4.6 K. Die Zahlen links geben die berechnete Spin–Orbit–Kopplungsstärke an [55]

Offensichtlich kann über die Messung der Schwachen Lokalisierung die Stärke der Spin–Orbit–Streuung direkt gemessen werden.

Bei dünnen Filmen aus einem Metall, dessen Kernladungszahl größer ist als die von Magnesium, kann die Substruktur, die von der Spin–Orbit–Streuung herrührt, auch beim reinen Material ohne Bedeckung mit einem Metall höherer Kernladungszahl beobachtet werden. Die MR–Kurve eines dünnen Kupferfilms beispielsweise zeigt bei tiefen Temperaturen die destruktive Interferenz von rotierten Spins, die bei höheren Temperaturen verschwindet. Bei tiefen Temperaturen ist die inelastische Lebensdauer hoch und dadurch dominiert der Effekt der Spin–Orbit–Streuung bei

geringen Magnetfeldstärken. Bei hohen Temperaturen wird die inelastische Lebensdauer kleiner als die Spin–Orbit–Streuzeit und das MR–Verhalten wird negativ aufgrund der geringeren Rolle der Spin–Orbit–Streuung. Bei Goldfilmen ist die Spin–Orbit–Streuung so stark, dass sie das MR–Verhalten komplett dominiert.

Hikami et al. [53] berechneten mittels Störungstheorie, dass die Spin–Orbit–Kopplung das Vorzeichen der Magnetoresistivität umkehren sowie ihre Stärke um den Faktor 1/2 reduzieren sollte.

Eine detaillierte Untersuchung der Spin–Orbit–Streuung und der Frage, warum die schwache Lokalisierung bei starker Spin–Orbit–Streuung zu schwacher Anti–Lokalisierung wird, findet sich bei Bergmann [52]: Aus der Quantentheorie, die mit einem Neutronenexperiment experimentell bestätigt wurde [56], ist bekannt, dass Spin–1/2–Teilchen eine Rotations–Periodizität von 4π haben. Eine Rotation um 2π kehrt das Vorzeichen des Spin–Zustandes um. Bei vorliegender Spin–Orbit–Streuung hat das Matrix–Element für den Übergang aus dem Zustand \vec{k} in den Zustand \vec{k}' die Form:

$$V_{\vec{k}\vec{k}'}[1 - i\varepsilon\vec{k} \times \vec{k}' \cdot \vec{\sigma}] \propto [1 - i\vec{K} \cdot \vec{\sigma}] \tag{2.71}$$

Dieses Matrix–Element beschreibt die Rotation des Elektronenspins um den Winkel K_i um die Achse x_i ($i = 1, 2, 3$). Während der Streuserie ' diffundiert die Spin–Ausrichtung in den finalen Zustand $\vec{\sigma}'$, der aus dem ursprünglichen Zustand $\vec{\sigma}$ durch die Rotation T erhalten wird ($\vec{\sigma}' = T\vec{\sigma}$). Der Endzustand der komplementären Streuserie '' ist $\vec{\sigma}'' = T^{-1}\vec{\sigma}$.

Die interferierenden Wellenfunktionen im Zustand $-\vec{k}$ haben nun unterschiedliche Spinzustände und das Skalar–Produkt enthält den Faktor:

$$\langle \vec{\sigma} | \vec{\sigma}'' \rangle = \langle \vec{\sigma} | R^2 | \vec{\sigma} \rangle \tag{2.72}$$

Dieser Faktor ist nur dann gleich oder nahe 1, wenn die Spin–Orbit–Kopplungszeit viel größer ist als die inelastische Streuzeit τ_i , andernfalls wird die kohärente Interferenz reduziert. Bei dominierender Spin–Orbit–Wechselwirkung verliert der Spin $\vec{\sigma}$ die ursprüngliche Orientierungsrichtung völlig und seine End–Orientierung ist statistisch. Der Spin $\vec{\sigma}''$ der komplementär gestreuten Welle erfährt die genau entgegengesetzte Drehung.

Die Matrix der Spinrotation T ist gegeben durch [52]:

$$\begin{matrix} \cos(\theta/2)\exp[i(\phi + \varphi)] & i\sin(\theta/2)\exp[-i(\phi - \varphi)] \\ i\sin(\theta/2)\exp[i(\phi - \varphi)] & \cos(\theta/2)\exp[-i(\phi + \varphi)] \end{matrix} \tag{2.73}$$

Wenn der originale Spin–Zustand die Form (a, b) hat, so erhält man für den Erwartungswert von $R \sim 2$

$$\cos^2(\theta/2)\exp[i(\phi + \varphi)] - \sin^2(\theta/2) + (i/2)\sin(\theta) \times [ab^*(e^{i\varphi} + e^{-i\varphi}) + c.c.]. \tag{2.74}$$

Wenn keine Spin–Orbit–Kopplung vorliegt, sind alle Winkel Null und man erhält den Faktor 1. Der Spin hat keinen Einfluss auf die Interferenz.

Bei starker Spin–Orbit–Kopplung und statistischer Verteilung der finalen Spin–Zustände verschwindet der erste Term und das Mittel von $-\sin(\theta/2) = (\cos\theta - 1)/2$ liefert den Faktor

$-1/2$. Für starke Spin–Orbit–Kopplung dominiert die destruktive Interferenz. Die relative Spin–Orientierung ist im Mittel häufiger 2π als 0.

Wenn die inverse Spin–Orbit–Streuzeit $1/\tau_{SO}$ nur um etwa einen Faktor 3 bis 10 höher ist als $1/\tau_i$, kann das Interferenz–Minimum durch ein magnetisches Feld überwunden werden. Ohne Magnetfeld sind die beiden komplementären Wellen im Zeit–Intervall τ_i kohärent. Der Einfluss des Magnetfelds ist grob gesprochen ein Abschneiden der Interferenz nach der Zeit τ_b , die etwa die Größenordnung von $\hbar/(\omega_c \cdot m \cdot D \cdot \tau)$ hat. Folglich beschränkt ein starkes Magnetfeld die Interferenz auf ein kurzes Zeitintervall τ_b . Wenn $\tau_b \ll \tau_{SO}$, ist die Interferenz immer noch konstruktiv und eine Reduktion des Feldes erhöht die kohärente Rückstreuung und damit den Widerstand. Wenn τ_b etwa die gleiche Größenordnung annimmt wie τ_{SO} , wird die Interferenz destruktiv und der Widerstand verringert sich. Für $\tau_{SO} \approx \tau_b$ oder $H \approx H_{SO} = \hbar/(4 \cdot e \cdot D \cdot \tau_{SO})$ erhält man ein Widerstandsmaximum, das dem ersten Interferenz–Minimum im Neutronen–Experiment entspricht. Eine detailliertere Beschreibung dieses Sachverhalts sowie die sich daraus ergebenden Widerstandsänderungen findet sich in Kapitel 2.4.5.

Zusammenfassend kann festgestellt werden, dass ohne diese Spinrotation die Interferenz der beiden Partialwellen ohne angelegtes Magnetfeld konstruktiv ist. **Bei Spin–Orbit–Streuung wird die Interferenz destruktiv, wenn die relative Rotation von $\vec{\sigma}'$ und $\vec{\sigma}''$ zu 2π wird. Bei sehr starker Spin–Orbit–Streuung übertrifft die destruktive Interferenz die konstruktive, d. h. die Rückstreuung wird kleiner als die statistische 1. Dies entspricht einem Echo in Vorwärtsrichtung und damit einer Verringerung des Widerstandes.**

Die totale Phasenkohärenzzeit τ_ϕ bei gleichzeitig stattfindender Spin–Orbit–Streuung und inelastischer Streuung ist gegeben durch: $\tau_\phi^{-1} = \tau_{SO}^{-1} + \tau_i^{-1}$.

Ein weiterer Streumechanismus in diesem Zusammenhang ist die Streuung an magnetischen Ionen. Ein magnetisches Ion wechselwirkt mit einem Leitungselektron über $J\vec{S}^* \vec{\sigma}$, wobei \vec{S} und $\vec{\sigma}$ der Ionen- bzw. Elektronenspin sind. Die magnetischen Ionen streuen die beiden komplementären Wellen unterschiedlich und zerstören ihre Kohärenz nach der magnetischen Streuzeit τ_S .

Die Dimension eines dünnen Films

Die Dephasierung der Elektronenwellenfunktion erfolgt außer über die bereits ausführlich besprochene Spin–Orbit–Streuung und die erwähnte Streuung an magnetischen Ionen hauptsächlich über inelastische Streuung, wozu die Wechselwirkung der Elektronen untereinander sowie die Wechselwirkung mit Phononen gehören. Der Einfluss der jeweiligen Streuprozesse auf den elektrischen Transport hängt allerdings davon ab, welche Dimensionalität (1D, 2D oder 3D) bezüglich der jeweiligen Wechselwirkung im Film vorliegt.

Um die Dimensionalität bezüglich einer bestimmten physikalischen Situation zu bestimmen, muss die Bewegung der Elektronen im Realraum betrachtet werden [20, 57, 58]:

- *Elastische Streuung*: Ein Film ist dreidimensional (3D) bezüglich des normalen Leitungsprozesses, wenn seine Dicke d größer ist als die mittlere freie Weglänge l . In diesem Fall muss für alle folgenden Betrachtungen die dreidimensionale Diffusionskonstante $D = lv_F/3$ benutzt werden.
- *Schwache Lokalisierung*: Die Bedingung für Quanteninterferenz ist die Kohärenz der Elektronenwelle, folglich ist ein System zweidimensional (2D), wenn sein Kohärenzvolumen

zweidimensional ist. Ohne Magnetfeld diffundiert ein Elektron während seiner inelastischen Lebensdauer eine Entfernung von $(D\tau_i)^{1/2}$. Ist die Dicke des Films geringer als diese sogenannte „Thouless-Länge“ [45], so ist ein Film zweidimensional.

Für Filme, die dünner als 100 Angström sind, ist diese Bedingung für Temperaturen unterhalb von 20 K im Allgemeinen gut erfüllt. In einem endlichen Feld nimmt die charakteristische Zeit den geringeren Wert von τ_i und $t_H = \hbar/(4eDH)$ an. Für große Felder ist die Bedingung folglich: $d^2 \ll Dt_H = \hbar/(4eH)$.

- *Elektron–Elektron–Wechselwirkung*: Die charakteristische Zeit für die von Altshuler beschriebene modifizierte Coulomb–Wechselwirkung [51] ist $\tau_T = \hbar/(2\pi k_B T)$. Daher ist ein Film zweidimensional, wenn $d^2 \ll D\hbar/(2\pi k_B T)$.
- *Phononenstreuung*: Die Dimensionalität bezüglich dieser Wechselwirkung ist schwer zu bestimmen, da sie von vielen Faktoren abhängt, wie z.B. Filmdicke, Phononenwellenlänge, akustischer Kopplung zwischen Film und Substratoberfläche [59, 60, 61]. Üblicherweise wird die physikalische Dimension der Probe mit der wahrscheinlichsten Phononenwellenlänge $\lambda_{ph} = 2\pi/q_{ph}$ verglichen, wobei q_{ph} der charakteristische Phononenwellenvektor ist ($2k_B T/(v_s \hbar)$, mit v_s : Schallgeschwindigkeit). Bezüglich der Wechselwirkung mit Phononen liegt in vielen Fällen ein Übergang vom zweidimensionalen zum dreidimensionalen System vor.
- *Spin–Orbit–Streuung*: Vorliegende Spin–Orbit–Streuung führt zu einer weiteren dimensionsbestimmenden Längenskala $L_2 = (D\tau_2)^{1/2}$, wobei $\tau_2^{-1} = \tau_i^{-1} + 4/3 \cdot \tau_{SO}^{-1}$ [20, 62, 63].

Streuzeiten und ihre Abhängigkeiten — Temperatur und Unordnung

Seit der Entdeckung der schwachen Lokalisierung wurden die Abhängigkeiten der Dephasierungszeiten τ_x ($x = \phi$ für den gesamten Dephasierungsprozess, $x = i$ für inelastische Streuung, $x = SO$ für Spin–Orbit–Streuung, $x = S$ für magnetische Streuung, $x = ee$ für Elektron–Elektron–Streuung, $x = ep$ für Elektron–Phonon–Streuung und $x = N$ für Nyquist–Streuung) von der Temperatur T und der mittleren freien Weglänge l in diversen mesoskopischen Systemen theoretisch und experimentell ausführlich untersucht [19].

Die Dephasierungslänge der Elektronen

$$L_\phi = \sqrt{D\tau_\phi} \quad (2.75)$$

ist die entscheidende Länge für Quanteninterferenz–Phänomene und damit für viele Anwendungen von großem Interesse.

Bezogen auf die im experimentellen Teil untersuchten Proben können einige der oben genannten Mechanismen von vornherein ausgeschlossen werden.

- In dreidimensionalen, nur schwach ungeordneten Leitern (L_ϕ kleiner als die Abmessungen des Systems L_x, L_y, L_z) ist die Elektron–Phonon–Streuung der einzige dominante Dephasierungsprozess, d.h. $1/\tau_i(T, l) \approx 1/\tau_{ep}(T, l)$ [64]. Das Verhalten von $1/\tau_{ep}$ in ungeordneten mesoskopischen dreidimensionalen Systemen ist allerdings noch nicht vollständig verstanden, da die experimentellen Ergebnisse variieren und oft von den theoretischen Vorhersagen abweichen.

- In dreidimensionalen, stark ungeordneten Leitern dominiert die Elektron–Elektron–Streuung gegenüber der Elektron–Phonon–Streuung, so dass $1/\tau_i \approx 1/\tau_{ee}$ [65]. In [20] ist für ein dreidimensionales Metall die inverse Elektron–Elektron–Dephasierungszeit berechnet worden zu:

$$\frac{1}{\tau_{ee}} = \frac{\pi}{8} \frac{(k_B T)^2}{E_F} + \frac{3}{2} \left(\frac{1}{k_F l} \right)^{3/2} \frac{(k_B T)^{(3/2)}}{E_F^{1/2}} \quad (2.76)$$

wobei E_F die Fermi–Energie des Elektrons ist. Für ein zweidimensionales Metall berechneten Fukuyama und Abrahams [66]

$$\frac{1}{\tau_{ee}} = \frac{\pi}{k_F d} \frac{k_B T}{2E_F \tau_0} \cdot \ln \left(\frac{T}{T_1} \right) \quad (2.77)$$

mit $T_1 = (32/27)(k_F l)^3 E_B/k_B$, wobei E_B die Bohr–Energie (13.6 eV) ist.

Wie im Kapitel 4 gezeigt werden wird, sind die in dieser Arbeit untersuchten Proben bei 4.2 K bezüglich der Elektron–Elektron–Streuung dreidimensional und im „clean limit“, in dem die Elektron–Phonon–Streuung gegenüber diesem Mechanismus dominiert, so dass die Elektron–Elektron–Streuung in den folgenden experimentellen Betrachtungen ignoriert werden kann.

- Bei Temperaturen in der Größenordnung weniger mK ist der dominante Dephasierungsprozess in Metallen und Halbleitern das sogenannte „Nyquist–Rauschen“ — ein Streuprozess mit geringem Energietransfer (quasi–elastisch), wobei $1/\tau_N \propto T$ in zwei Dimensionen und $1/\tau_N \propto T^{2/3}$ in einer Dimension ist [68]. Physikalisch entspricht diese Streuung der Wechselwirkung eines Elektrons mit dem elektromagnetischen Feld, das durch alle anderen Elektronen erzeugt wird. Dieser Streuprozess wird im allgemeinen von anderen Prozessen überlagert und spielt bei den im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Messtemperaturen keine Rolle.
- In vielen Experimenten in mesoskopischen Systemen wurde bei sehr tiefen Temperaturen eine Sättigung der Dephasierungszeit $1/\tau_\phi(T, l) \approx 1/\tau_\phi^0(l)$ festgestellt [69, 70, 71]. Bei den Messtemperaturen der im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Untersuchungen wird dieser Prozess durch andere Dephasierungsmechanismen überlagert und ist somit nicht zu beobachten.
- Je größer die Ordnungszahl eines Elements ist, desto höher wird der Beitrag zur Dekohärenz der Elektronenwellenfunktion aufgrund von Spin–Orbit–Streuung, da $1/\tau_{SO} \sim Z^4$ (mit Z : Ordnungszahl des Metalls) [63, 74, 75]. In den hier untersuchten Silberchalkogeniden ist dieser Beitrag nicht mehr zu vernachlässigen sondern spielt ganz im Gegenteil eine bedeutende Rolle.
- Durch die hohe Reinheit der zur Herstellung der Proben verwendeten Materialien wird angenommen, dass keine magnetischen Verunreinigungen in den Proben vorkommen, so dass die magnetische Dephasierungszeit τ_S für den gesamten Dephasierungsprozess ignoriert werden kann.

Die beiden Dephasierungsmechanismen, die in den in dieser Arbeit untersuchten Proben eine entscheidende Rolle spielen, sind also die **inelastische Elektron–Phonon–Streuung** sowie die **Spin–Orbit–Streuung**, die im folgenden näher ausgeführt werden.

Die Elektron–Phonon–Dephasierungszeit in einem ungeordneten Metall wurde von Bergmann und anderen Wissenschaftlern [76, 77] untersucht und zu

$$\boxed{\frac{1}{\tau_{T,l}} = C \frac{2\pi^2 (k_B T)^2}{k_F l \hbar^2 \omega_D} = C \frac{2\pi^2 k_B T^2}{k_F l \hbar \theta_D}} \quad (2.78)$$

berechnet, wobei ω_D die Debye–Frequenz, θ_D die Debye–Temperatur und C eine Konstante, gegeben durch $C = nmv_F^2 q_D^2 / (6n_i M v_s^2 k_F^2)$, ist. Hierbei bezeichnet n (n_i) die Elektronen- (Ionen-) Dichte, m (M) die Elektronen- (Ionen-) Masse, v_F (v_s) die Fermi- (Schall-) Geschwindigkeit und $q_D = \omega_D / v_s$. Mit $q_D = (2/z)^{1/3} k_F$ und der Bohm–Staver Beziehung für die Schallgeschwindigkeit $v_s^2 = zmv_F^2 / (3M)$ [78] erhält man $C = (2/z)^{2/3} / 2$, wobei z die nominale Valenz des vorliegenden Materials angibt.

Für die die Dephasierungszeit aufgrund Spin–Orbit–Streuung berechneten Abrikosov und Gor'kov [79] anhand eines einfachen Streumodells

$$\boxed{\frac{\tau}{\tau_{SO}} = (\alpha Z)^4}, \quad (2.79)$$

wobei α die Feinstrukturkonstante (1/137) und Z die Ordnungszahl des Materials sind.

Eine sehr zuverlässige Methode zur Bestimmung der Dephasierungszeit ist die Messung des Magnetowiderstandes eines Systems, die in der vorliegenden Arbeit angewandt wird.

2.4 Magnetowiderstand

Die Änderung des elektrischen Widerstandes in einem Magnetfeld — der sogenannte Magnetowiderstand — zeigt bei unterschiedlichen Materialien eine breite Palette an Verhaltensweisen, die alle auf unterschiedliche physikalische Effekte zurückgeführt werden können. Die meisten davon sind in der Literatur (bsp. [26, 9]) ausführlich dargelegt, daher werden hier nur die für die experimentelle Auswertung wichtigen Effekte ausführlicher erläutert, der Rest der Übersicht halber grob skizziert.

In der Regel findet in allen Materialien durch ein magnetisches Feld eine Lokalisierung der Ladungsträger statt, die in den meisten Fällen zu einer leichten Erhöhung (positiver MR-Effekt, OMR), in einigen Materialien aber auch zu einer Reduzierung des elektrischen Widerstandes (negativer MR-Effekt) führt.

Eine quadratische Abhängigkeit des Widerstandes vom angelegten Feld wird als „normaler Magnetowiderstands-Effekt“ (OMR) bezeichnet, die Winkelabhängigkeit einiger Materialien wird „anisotroper Magnetowiderstands-Effekt“ (AMR) genannt. Zur Winkelabhängigkeit kommen beim „gigantischen“ (GMR) und „Tunnel-Magnetowiderstandseffekt“ (TMR) komplizierte, materialspezifische Abhängigkeiten hinzu, während in Perowskitstrukturen der sogenannte „kolossale Magnetowiderstands-Effekt“ (CMR) zu beobachten ist. Der von Xu et al. beobachtete lineare Verlauf des Magnetowiderstands (LMR) in Silberselenid und Silbertellurid [2] ist eine weitere Form des Magnetowiderstands, der aber mit den üblichen Modellen nicht erklärt werden kann. In den letzten Jahren wurde er aber mit dem sogenannten „außergewöhnlichen Magnetowiderstands-Effekt“ (EMR) in Verbindung gebracht, der von Solin et al. untersucht und dokumentiert wurde [17, 18].

Die schwache Lokalisierung führt in einem Magnetfeld ebenfalls zu einem charakteristischen Verhalten, da die Phasenkohärenz durch ein Magnetfeld unterdrückt wird, was bei niedrigen Magnetfeldstärken einen zusätzlichen Beitrag zum Magnetowiderstand liefert.

Im Folgenden wird ein Überblick über alle diese Erscheinungen gegeben, um eine möglichst vollständige theoretische Basis für die folgenden experimentellen Untersuchungen zu geben.

2.4.1 Der Normale Magnetowiderstand (OMR)

Der „normale“ positive Magnetowiderstand (OMR) ist der am längsten bekannte und am besten verstandene Effekt [25, 26]. Er kann sowohl durch die statistische Transport-Theorie als auch durch das Drude-Lorentz-Modell als Folge der Lorentzkraft, die ein angelegtes Magnetfeld auf sich bewegende Ladungsträger ausübt, beschrieben werden. Die Elektronen bewegen sich zwischen zwei Stößen (z.B. an Phononen oder Defekten) auf Kreisbahnen, was anschaulich eine Verkürzung der freien Weglänge l_0 zur Folge hat. Der Verlauf des positiven Magnetowiderstands wird durch die Kohler-Regel [80] beschrieben, nach der der Widerstand im Magnetfeld eine materialspezifische Funktion F des angelegten Feldes B und des ursprünglichen Widerstandes im Nullfeld ρ_0 ist:

$$\frac{\Delta\rho}{\rho} \equiv \frac{\rho(B) - \rho(0)}{\rho(0)} = F\left(\frac{B}{\rho_0}\right) \quad (2.80)$$

Zur Herleitung der Kohler-Regel betrachtet man die Veränderung der Bewegung der Elektronen im magnetischen Feld. Die Ladungsträger bewegen sich auf Landau-Bahnen mit dem Radius

$r = vm/qB$, für die die Umlauffrequenz durch die Zyklotronfrequenz $\omega_c = q \cdot B/m$ gegeben ist, und werden nach einer mittleren Zeit τ elastisch gestreut. Die Leitfähigkeit ist proportional zur mittleren freien Weglänge $l = v_F \cdot \tau$. Aus rein geometrischen Überlegungen erhält man aus Abbildung 2.10:

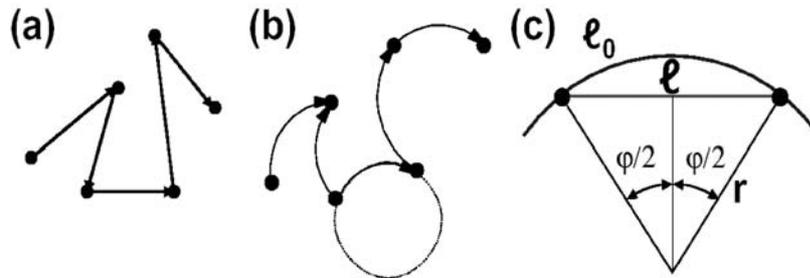


Abbildung 2.10: Driftbewegung von Elektronen ohne (a) und mit (b, c) Magnetfeld (aus [9]).

$$\frac{l/2}{r} = \sin\left(\frac{\varphi}{2}\right) \cong \frac{\varphi}{2} - \frac{1}{6}\left(\frac{\varphi}{2}\right)^3 \tag{2.81}$$

Mit $l_0 = \tau \cdot v$, $l_0/r = \varphi$ und $r = v/\omega_c$ folgt daraus:

$$l = l_0 \left(1 - \frac{1}{24}\tau^2\omega_c^2\right). \tag{2.82}$$

Der spezifische Widerstand ρ ist umgekehrt proportional zur mittleren freien Weglänge l , so dass

$$\frac{\Delta\rho}{\rho_0} = \frac{l_0^{-1} \left(1 - \frac{1}{24}\tau^2\omega_c^2\right)^{-1} - l_0^{-1}}{l_0^{-1}} \tag{2.83}$$

Mit $\sigma = n \cdot q^2 \cdot \tau$ und $\omega_c = q \cdot B/m$ erhält man

$$\boxed{\frac{\Delta\rho}{\rho_0} = \frac{1}{24n^2q} \left(\frac{B}{\rho_0}\right)^2}, \tag{2.84}$$

was der Kohler-Regel entspricht.

In ferromagnetischen Metallen hängt der spezifische Widerstand von der Orientierung des angelegten Feldes zur Magnetisierungsrichtung ab: $\rho = \rho_{\parallel}$ oder $\rho = \rho_{\perp}$. Das Magnetfeld setzt sich aus drei Anteilen zusammen:

$$B = \mu_0(H_a + H_d + M) \tag{2.85}$$

H_a : angelegtes Feld
 H_d : geometrieabhängiges Entmagnetisierungsfeld
 M : Probenmagnetisierung
 μ_0 : Vakuum-Permeabilität

Der positive Magnetowiderstand tritt immer auf, auch wenn er häufig von wesentlich größeren Effekten wie dem GMR- oder CMR-Effekt überlagert ist. Allerdings kann er für den Fall, dass

ρ_0 sehr klein ist, z.B. in sehr reinen Metallen bei sehr tiefen Temperaturen, Werte von bis zu 5% erreichen [81], während er bei Raumtemperatur generell sehr klein ist und somit nicht für technische Anwendungen genutzt werden kann.

Im Drude-Lorentz-Modell führt die Berechnung der Wirkung äußerer Kräfte auf ein „mittleres“ Teilchen und die Lösung der entsprechenden Bewegungsgleichung (wie in [9] ausgeführt) im Ein-Band-Modell nicht zu einer Änderung des beobachteten Widerstands und somit des Stromflusses in Abhängigkeit von einem angelegten Magnetfeld. Deshalb wird das Zwei-Band-Modell zur Beschreibung des Magnetowiderstandes herangezogen, das auch im Falle eines Halbleiters die vorliegende physikalische Realität beschreibt. Dabei geht man von der Präsenz zweier Ladungsträgersorten (im „normalen“ Leiter 1 und 2, in Halbleitern Elektronen e und Löcher h) aus und erhält so für die Stromdichte \vec{J} :

$$\vec{J}_{ges} = \vec{J}_1 + \vec{J}_2 \quad \text{bzw. in Halbleitern} \quad \vec{J}_{ges} = \vec{J}_e + \vec{J}_h \quad (2.86)$$

Für die Diskussion des Magnetowiderstandes verknüpft man \vec{J} mit einer Komponente des elektrischen Feldes \vec{E} in Stromrichtung und erhält:

$$\rho = \frac{\vec{J} \cdot \vec{E}}{J^2} = \frac{\frac{\sigma_1}{1 + \left(\frac{q\tau_1}{m_1}\right)^2 B^2} + \frac{\sigma_2}{1 + \left(\frac{q\tau_2}{m_2}\right)^2 B^2}}{\left(\frac{\sigma_1}{1 + \left(\frac{q\tau_1}{m_1}\right)^2 B^2} + \frac{\sigma_2}{1 + \left(\frac{q\tau_2}{m_2}\right)^2 B^2}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_1 \frac{q\tau_1}{m_1} B}{1 + \left(\frac{q\tau_1}{m_1}\right)^2 B^2} + \frac{\sigma_2 \frac{q\tau_2}{m_2} B}{1 + \left(\frac{q\tau_2}{m_2}\right)^2 B^2}\right)^2} \quad (2.87)$$

Ein Vergleich mit dem spezifischen Widerstand $\rho_0 = \frac{1}{\sigma_1 + \sigma_2}$ ohne äußeres Feld führt in einem „normalen“ Metall zu:

$$\frac{\Delta\rho}{\rho_0} = \frac{\rho - \rho_0}{\rho_0} = \frac{\sigma_1 \sigma_2 \left(\frac{q\tau_1}{m_1} - \frac{q\tau_2}{m_2}\right)^2 B^2}{(\sigma_1 + \sigma_2)^2 + B^2 \left(\frac{q\tau_1}{m_1} \sigma_1 + \frac{q\tau_2}{m_2} \sigma_2\right)^2} \quad (2.88)$$

Diese Formel findet nur begrenzte Anwendung, da häufig komplexere elektronische Strukturen auftreten. Dennoch zeigt sie die Hauptmerkmale des normalen Magnetowiderstandes auf:

- $\Delta\rho$ ist immer positiv.
- $\Delta\rho$ verschwindet für $\frac{q\tau_1}{m_1} = \frac{q\tau_2}{m_2}$. Werden die beiden Ladungsträgergruppen im Magnetfeld um unterschiedliche Beiträge abgelenkt, da ihre Massen, Ladungen oder Streuzeiten differieren, kann man kein elektrisches Feld finden, das beide Stromkomponenten in die gleiche Richtung fließen lässt.
- $\Delta\rho$ ist für kleine Magnetfelder proportional zu B^2 [82].
- $\Delta\rho$ neigt bei hohen Magnetfeldern zur Sättigung, falls die Bahn des Elektrons auf der Fermi-Oberfläche geschlossen ist. In der Regel können aber auch kristallographische Richtungen gefunden werden, in denen der Magnetowiderstand nicht sättigt [26].

Gleichung 2.88 kann für den Fall vieler Ladungsträgertypen erweitert werden, die alle separat zum Stromfluss beitragen. Dadurch lassen sich auch komplizierte Fermi-Flächen behandeln,

deren Teile unterschiedliche Werte für $q\tau/m$ besitzen. Auch kann der bereits erwähnte endliche Magnetowiderstand von Metallen als Beweis für die Änderung von $q\tau/m$ auf der Fermi-Fläche gewertet werden.

Für Halbleiter vereinfacht sich Gleichung 2.88 geringfügig zu:

$$MR = \frac{\frac{\sigma_e \sigma_h}{e_0^2} \left(\frac{\sigma_e}{n_e} + \frac{\sigma_h}{n_h} \right)^2 \cdot B^2}{(\sigma_e + \sigma_h)^2 + \left(\frac{\sigma_e \sigma_h}{e_0} \right)^2 \left(\frac{1}{n_h} - \frac{1}{n_e} \right)^2 \cdot B^2} \cdot 100\% \quad (2.89)$$

Beck [8] berechnete den OMR-Effekt im Zwei-Band-Modell für Halbleiter und fand, dass der OMR für ein stöchiometrisches Material am größten ist, wenn die Beweglichkeiten μ_e und μ_h (e : Elektron, h : Loch) gleich sind, während für $\mu_e \neq \mu_h$ die Größe des MR-Effektes von der jeweiligen Ladungsträgerkonzentration abhängt.

Der OMR ist in der Regel ein isotroper Effekt, die meisten anderen Effekte sind aber stark anisotrop, d.h. der MR hängt von der Richtung des äußeren Magnetfeldes zum in der Probe fließenden Strom ab. Hierbei unterscheidet man begrifflich zwischen folgenden Effekten:

- transversaler magnetoresistiver Effekt: $\vec{B} \perp \vec{I}$
mit einer Ausrichtung bezüglich der Schichtebene \square von:
 - $\vec{B} \perp \square$ (polarer MR)
 - $\vec{B} \parallel \square$
- longitudinaler MR: $\vec{B} \parallel \vec{I}$

In dem in dieser Arbeit untersuchten Material Silberselenid nimmt der MR-Effekt mit wachsender Lochdichte zu, während er für Elektronen-Überschuss abnehmen sollte. Diese Betrachtungen gelten allerdings nur für den transversalen Magnetowiderstand. Für den longitudinalen MR, d.h. $\vec{B} \parallel \vec{I}$, liefert das einfache Zwei-Band-Modell keinen Beitrag, da es in jedem Band Kugelsymmetrie annimmt, man für die Berechnung des longitudinalen Magnetowiderstandes aber von nicht-kugelsymmetrischen Fermi-Flächen ausgehen muss.

Wie in Kapitel 4 gezeigt wird, ist der OMR in den im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Schichten je nach Schichtdicke bis zu mehreren Tesla im Widerstandsverlauf deutlich zu sehen und spielt daher eine große Rolle bei den Auswertungen der Messergebnisse.

2.4.2 Magnetowiderstandseffekte in ferromagnetischen Systemen

Der negative isotrope Magnetowiderstand

Der negative isotrope Magnetowiderstand tritt bei einigen ferromagnetischen Übergangsmetallen (wie z.B. Fe, Co, Ni) unterhalb der Curie-Temperatur T_C auf und führt zu einem etwas niedrigeren elektrischen Widerstand als bei nicht-ferromagnetischen Übergangsmetallen (z.B. Pd). Sir N. F. Mott [83] erklärte diesen Sachverhalt damit, dass in einem Übergangsmetall der Strom hauptsächlich von den Elektronen des s -Bandes getragen wird, während der spezifische Widerstand hauptsächlich durch die Streuung dieser s -Elektronen in die freien Zustände des d -Bandes an der Fermi-Kante bestimmt wird.

Die hohe Zustandsdichte des d -Bandes führt zu einer großen Streurrate und damit einem hohen spezifischen Widerstand der Übergangsmetalle. Im ferromagnetischen Zustand spalten die d -Subbänder für die Minoritäts- und Majoritätsspins durch die endliche Austauschkopplung auf und das Subband der Majoritätsspins kann unter die Fermi-Kante absinken (siehe Abb. 2.11).

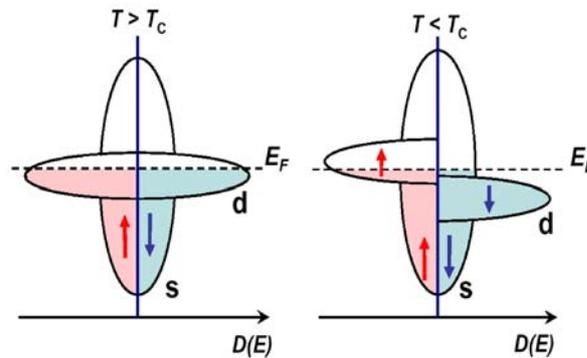


Abbildung 2.11: Aufspaltung der s - und d -Bänder in einem Übergangsmetall durch die endliche Austauschkopplung (aus [26]). Links: Besetzung der Zustände für $T > T_C$, rechts: Absinken des Bandes der Majoritätsspins und Besetzung der Zustände für Temperaturen $T < T_C$.

Dadurch können die s -Elektronen mit Majoritätsspin nicht mehr in die d -Zustände gestreut werden, wodurch ihre Mobilität steigt und der elektrische Widerstand abnimmt und so der spezifische Widerstand eines ferromagnetischen Übergangsmetalls unter den Wert eines nichtferromagnetischen absinkt. Damit ist der spezifische Widerstand eines ferromagnetischen Übergangsmetalls unterhalb von T_C anormal klein und nimmt zu, wenn die Austauschkopplung mit steigender Temperatur und zunehmender Spinordnung abnimmt. Äußere Felder führen zu einer Erhöhung der Spinordnung und damit zu einer Abnahme des elektrischen Widerstandes. Dieser Effekt ist unabhängig von der Richtung des Stromes zur Magnetisierungs- und Feldrichtung bzw. zur Orientierung der Kristallachsen.

Aufgrund der hohen Reinheit der im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Proben sind keine ferromagnetischen Verunreinigungen zu erwarten und somit auch kein Auftreten dieses Effekts. Wie in Kapitel 4 später gezeigt werden wird, trifft dies auf den Verlauf des Widerstandes unserer Proben im Magnetfeld wie erwartet zu.

Der Anisotrope Magnetowiderstand (AMR)

Wie der negative isotrope Magnetowiderstand ist auch der anisotrope Magnetowiderstand (AMR) in unseren Proben nicht zu erwarten und wird hier nur der Übersicht halber aufgeführt. Bedingt durch den anisotropen Streuquerschnitt der Rumpfelektronen in ferromagnetischen Materialien oder Legierungen tritt oberhalb der Curie-Temperatur bei niedrigen Magnetfeldern bis zu 0.5 Tesla der AMR auf. Je nach Orientierung des Magnetfeldes (longitudinal oder transversal) ist der Widerstand des Leiters im äußeren Magnetfeld erhöht oder erniedrigt und dementsprechend der AMR positiv oder negativ. In höheren Feldern kann zusätzlich bei einigen Übergangsmetallen ein Übergang zum negativen MR-Effekt erfolgen, der durch eine im Magnetfeld verringerte s - d -Streuung verursacht wird.

Abbildung 2.12 zeigt den typischen Widerstandsverlauf als Funktion eines parallel und senkrecht zur Stromrichtung angelegten Feldes: bei Erhöhung des Magnetfeldes von Null resultiert der be-

obachtete Widerstand zunächst aus der Anisotropie des Ferromagneten, hängt also stark von der relativen Orientierung der Magnetisierung und des Stromes ab. Mit steigender Feldstärke erhöht sich der AMR durch die zunehmende Orientierung der magnetischen Domänen parallel zum Magnetfeld und sättigt bei vollkommener Ausrichtung, wobei der Sättigungswert vom Winkel zwischen Strom und Magnetfeld abhängt. Nach der Sättigung variiert der Widerstand für gewöhnlich nur noch wenig mit dem angelegten Feld und zwar entweder durch den positiven oder den negativen Magnetowiderstand durch reduzierte Spin-Unordnung. Der negative MR-Effekt spielt insbesondere in der Nähe der Curie-Temperatur eine wichtige Rolle. Bei Raumtemperatur und 0.5 Tesla liegt der AMR-Effekt (z.B. in NiFe-Permalloy) bei maximal 5% und wird unter anderem seit 1990 in Festplatten-Leseköpfen ausgenutzt.

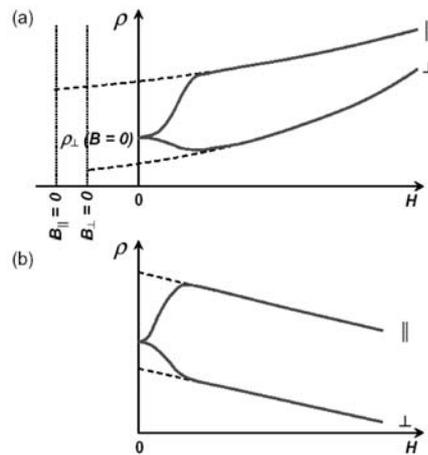


Abbildung 2.12: Magnetfeldabhängigkeit des spezifischen Widerstandes ρ in einem ferromagnetischen Metall. Bei niedrigen Feldstärken dominiert der AMR, bei hohen Feldern der (a) positive oder (b) negative MR (aus [26]).

Die Ursache für die spontane Anisotropie des Widerstandes ist die Spin-Bahn-Wechselwirkung, die einen orbitalen Beitrag zum Spinnmoment liefert. Daraus resultierend ist die Ladungsverteilung nicht kugelsymmetrisch, was bedeutet, dass bei einem eventuell existierenden Beitrag zum Magnetischen Moment in z -Richtung die Orbitale mit $l_z = 2$ ($3d_{x^2-y^2}$ -Orbitale) stärker besetzt sind als die mit $l_z = 0$. Daraus ergibt sich eine nicht-sphärische Ladungsverteilung. Aus der Anisotropie der Wellenfunktion folgt nun die Anisotropie des Widerstandes [84].

Der Gigantische Magnetowiderstand (GMR)

Der gigantische Magnetowiderstand (GMR) wurde zuerst in an mehrlagigen Fe/Cr-Schichtsystemen beobachtet, bei denen sich die Magnetisierungen benachbarter Fe-Schichten bei Cr-Lagendicken um 1 nm antiparallel ausrichten [1]. Ähnliche Schichtsysteme [85] zeigten den gleichen Effekt, so dass der GMR als $GMR = \frac{R_a - R_p}{R_p}$ (R_a , R_p : Widerstand bei antiparalleler bzw. paralleler Magnetisierungsrichtung) definiert wurde. Wird durch ein äußeres Magnetfeld die Magnetisierung der einzelnen Lagen parallel ausgerichtet, so sinkt der elektrische Widerstand des Systems erheblich.

Der GMR-Effekt kann nicht nur in Schichtsystemen auftreten, sondern auch in granularen Legierungen, in denen ferromagnetische Ausscheidungen in eine nicht-magnetische Matrix eingebettet sind [86]. Er kann auf folgende physikalische Ursachen zurückgeführt werden:

- **Bandstruktureffekte (Intrinsischer GMR):** In ferromagnetischen Materialien kann der Spin der Elektronen zwei Spinzustände annehmen: den der Majoritätselektronen \uparrow mit Spin parallel zur Magnetisierung und den der Minoritätselektronen \downarrow mit Spin antiparallel zur Magnetisierung. Im Zweiband-Modell werden die Leitfähigkeiten der beiden Ladungsträgerarten zur Gesamtleitfähigkeit addiert. Die Berechnung der Leitfähigkeiten erfolgt mit dem aus der Boltzmann-Gleichung (Relaxationszeitnäherung) hergeleiteten Ausdruck für die Leitfähigkeit:

$$\sigma_{ges} = \frac{2e^2}{V} \tau \sum_k \nu(k) \nu(k) \delta(E(k) - E_F) \quad (2.90)$$

Da der GMR-Effekt definiert ist als $GMR = \frac{\rho_a - \rho_p}{\rho_p} = \frac{\rho_p}{\rho_a} - 1$ ($\rho_{a,b}$: spezifischer Widerstand bei antiparalleler bzw. paralleler Magnetisierung), folgt mit Gleichung 2.90 unter Vernachlässigung der Energie- und Spinabhängigkeit der Streuraten:

$$GMR = \frac{\sum_k \delta(E^\uparrow(k) - E_F) \nu_{ki}^{\uparrow 2} + \sum_k \delta(E^\downarrow(k) - E_F) \nu_{ki}^{\downarrow 2}}{2 \sum_k \delta(E^a(k) - E_F) \nu_{ki}^{a,2}} - 1, \quad (2.91)$$

wobei ν_{ki} die kartesischen Koordinaten der Fermi-Geschwindigkeit sind. Mit der Zustandsdichte $N^\uparrow(E_F) = \sum_k \delta(E^\uparrow(k) - E_F)$ und dem über die Fermi-Flächen gemittelten Quadrat der entsprechenden Geschwindigkeitskomponenten $\langle \nu_{ki}^{\uparrow 2} \rangle$ und $\langle \nu_{ki}^{\downarrow 2} \rangle$ erhält man:

$$GMR = \frac{N^\uparrow(E_F) \langle \nu_{ki}^{\uparrow 2} \rangle + N^\downarrow(E_F) \langle \nu_{ki}^{\downarrow 2} \rangle}{2N^a(E_F) \langle \nu_{ki}^{a,2} \rangle} - 1. \quad (2.92)$$

Der GMR-Effekt hängt also von der Zustandsdichte der Majoritäts- und Minoritätsladungsträger an der Fermi-Kante und deren mittlerer Geschwindigkeit ab. Weiteren Einfluss auf den GMR haben die Werte von $N^a(E_F)$ und $\langle \nu_{ki}^{a,2} \rangle$ im Zustand antiparalleler Kopplung, der hinsichtlich der Elektronenpolarisation entartet ist.

- **Spinabhängige Streuung (Extrinsischer GMR):** Anhand des Ersatzschaltbildes in Abbildung 2.13 erhält man mit $a = \rho^\uparrow / \rho$, $b = \rho^\downarrow / \rho$ für den GMR:

$$GMR = \frac{\rho_a - \rho_p}{\rho_p} = \frac{(a - b)^2}{a(a + d_m/d)(b + d_m/d)}. \quad (2.93)$$

Hierbei ist d_m die Dicke der magnetischen, d die Dicke der unmagnetischen Schicht sowie ρ der spezifische Widerstand der nicht-magnetischen Schicht. Anhand experimenteller Daten kann der Unterschied zwischen ρ^\uparrow und ρ^\downarrow abgeschätzt werden. Für eine [Fe 3 nm | Cr 0.9 nm] \times_{40} Schicht wird bei magnetischer Sättigung eine Widerstandsabnahme auf 55% des Wertes im Nullfeld beobachtet. Wenn man annimmt, dass der Majoritätswiderstand ρ^\uparrow vergleichbar ist mit ρ , so ist ρ^\downarrow etwa um einen Faktor 6.5 größer als ρ^\uparrow . Dieses ist aber nicht nur auf Streuung allein, sondern partiell auch auf den intrinsischen GMR mit geringerer Zustandsdichte und verringerter Geschwindigkeit der Minoritätsladungsträger durch Ausbreitung stehender Wellen zurückzuführen.

Die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Proben sind zwar in hohem Maße inhomogen, aber aufgrund der fehlenden ferromagnetischen Komponente ist ein Auftreten des GMR-Effekts nicht zu erwarten.

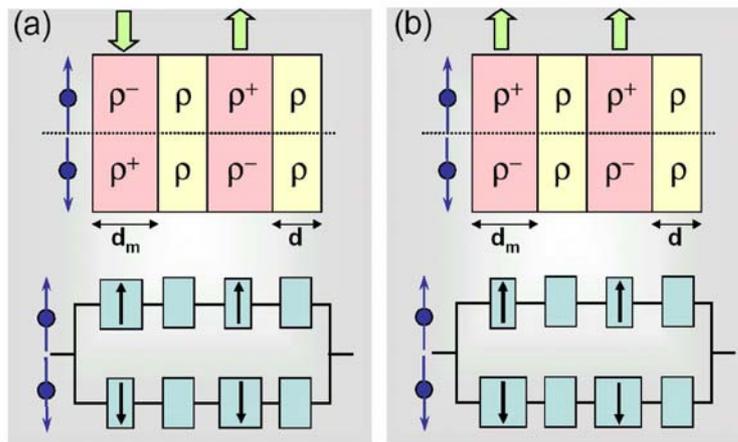


Abbildung 2.13: Magnetische Vielschichtstruktur für antiparallele (a) und parallele (b) Magnetisierungsorientierung und Ersatzschaltbilder für die resultierenden Widerstände der zwei Spinsorten. Die Größe des Widerstands ist durch die Fläche der Symbole angedeutet (aus [26]).

Der Tunnel–Magnetowiderstand (TMR)

Wird anstelle der nicht–magnetischen, leitfähigen Schicht zwischen zwei ferromagnetische Lagen eine isolierende, wenige Atomlagen dicke Schicht gebracht, können die spinpolarisierten Elektronen diese Schicht quantenmechanisch „durchtunneln“, was zu dem sogenannten Tunnel–Magnetowiderstand (TMR) führt. Diese Bauteile besitzen einen höheren Grundwiderstand, den man einfacher messen kann als den geringen Widerstand einer rein metallischen Komposition, allerdings ist ihre Präparation ohne Materialdefekte schwierig.

Es existieren verschiedene Ansätze zur Beschreibung der Tunnelprozesse:

- Elastisches und inelastisches Tunneln: Beim elastischen Tunneln ändert sich die Energie des Elektrons nicht, beim inelastischen Tunneln gewinnt oder verliert das Elektron Energie. Mögliche Prozesse für einen Energieübertrag sind elementare Anregungen / Absorptionen (Phononen, Magnonen, Plasmonen, ...) während des Tunnelprozesses.
- 1–dimensionales / 3–dimensionales Tunneln: In theoretischen Modellen wird oftmals aus Gründen der Vereinfachung eine eindimensionale Potentialbarriere (Tunneln nur in eine Richtung) angenommen. Es existieren aber auch Modelle mit dreidimensionaler Tunnelbarriere.
- Rechteck-Potential bzw. beliebig geformtes Potential
- Zeitabhängiges Tunneln / Zeitunabhängiges Tunneln

Ebenso wie der GMR wird ein Auftreten des TMR–Effekts in den in dieser Arbeit untersuchten Proben nicht erwartet.

2.4.3 Der Kolossale Magnetowiderstand (CMR)

Der Kolossale Magnetowiderstandseffekt (CMR) tritt nur in Perowskit-Strukturen, wie z. B. $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ auf (siehe Abb. 2.14), allerdings spielt bei der Erklärung dieses Effekts die Perkolation eine wichtige Rolle. Da dieses Phänomen auch in den im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Silberselenid-Proben auftritt, muss dieser Effekt im Rahmen der theoretischen Übersicht auch betrachtet werden.

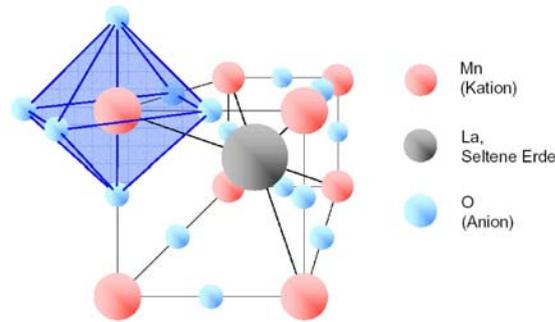


Abbildung 2.14: Perowskitstruktur am Beispiel des LaMnO_3 (aus [26]).

Der Kolossale Magnetowiderstandseffekt (CMR) wurde zwar schon in den fünfziger Jahren von Jonker und van Santen [87] in gemischtvalenten Manganoxiden entdeckt, seine ganze Tragweite allerdings erst später durch Kusters [88] und Helmolt [89] erkannt. Heute werden bei tiefen Temperaturen $\Delta R/R(H)$ -Werte von mehr als 10^6 % erzielt.

Der CMR-Effekt tritt in der Nähe der Curie-Temperatur T_C (Temperatur, bei der die ferromagnetische Ordnung im Material verschwindet) auf und beruht auf einer Ordnung des Spin-Systems im Material durch das angelegte Magnetfeld, wodurch der elektrische Widerstand verringert wird. Für Temperaturen $T \ll T_C$ liegt bereits ein geordnetes Spin-System vor, so dass ein Magnetfeld keinen großen Einfluss mehr auf die Ordnung nimmt, während für $T \gg T_C$ die Energie des Magnetfeldes nicht ausreicht, um die thermisch induzierte Unordnung zu reduzieren, so dass hier auch kein großer Effekt mehr zu beobachten ist.

Der CMR-Effekt basiert hauptsächlich auf den folgenden drei Mechanismen [90]:

- dem Zener Doppel-Austausch-Mechanismus zwischen zwei benachbarten Mangan-Ionen [91],
- dem intergranularen spin-polarisierten Tunneln [92, 93, 94]
- einem Perkulations-Phänomen ferromagnetisch-metallischer Domänen in einer antiferromagnetisch-halbleitenden Matrix [95, 97, 98]

Doppel-Austausch-Mechanismus

Im undotierten LaMnO_3 liegen nur Mn^{3+} -Ionen vor, die in ihrer $3d$ -Schale je 4 Elektronen mit parallelem Spin haben (Gesamtspin $S=2$). Daher ist LaMnO_3 isolierend und ordnet antiferromagnetisch in einer fcc-Struktur, bei der das Mangan-Ion von einem Sauerstoff-Oktaeder umgeben ist. Der Grundzustand der Mn-Ionen besitzt ein energetisch fünffach entartetes $3d$ -Niveau, das

durch das Kristallfeld in die tiefer liegenden t_{2g} -Zustände und die höher liegenden e_g -Zustände aufgespalten wird (Abb. 2.15).

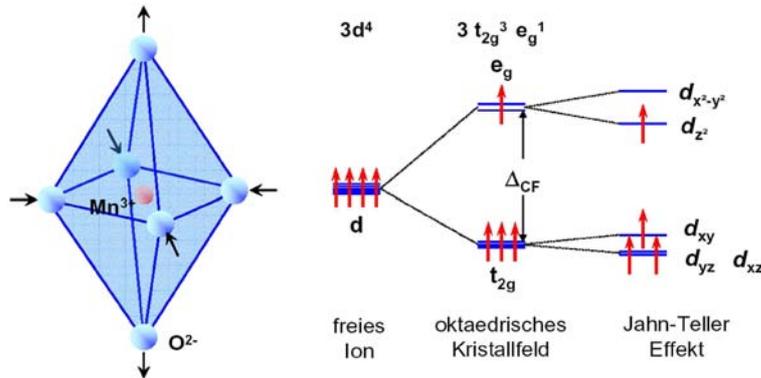


Abbildung 2.15: Aufspaltung der Energiezustände eines Manganions in der Perowskitstruktur durch das Kristallfeld sowie die Jahn-Teller-Aufspaltung (aus [26]).

Die t_{2g} -Elektronen sind schwächer hybridisiert und werden durch die Aufspaltung des Kristallfeldes stabilisiert, so dass sie lokalisiert sind und den lokalen Spin darstellen. Auch die e_g -Elektronen werden von dieser Kopplung erfasst und bilden einen Isolator. Ein zusätzlicher Shift der Zustände kommt durch den Jahn-Teller-Effekt zustande [99].

Ersetzt man nun das La durch Sr, so erhält man Mischkristalle, die für $0.15 < x < 0.5$ kristallographisch stabil sind und in denen sowohl Mn^{3+} - als auch Mn^{4+} -Ionen vorliegen. Der veränderte Ionenradius beeinflusst den Mn-O-Mn-Bindungswinkel, der entscheidend für die Beweglichkeit der Elektronen ist.

Durch die Elektron-Fehlstellen in den e_g -Orbitalen können nun die entsprechenden Elektronen der Mn^{3+} -Ionen am Leitungsprozess teilnehmen. Das Überschusselektron der Mn^{3+} -Ionen kann über das dazwischen liegende Sauerstoff-Ion zum Mn^{4+} -Ion springen (Doppel-Austausch, siehe Abb. 2.16). Die Wahrscheinlichkeit hierfür hängt aufgrund der Hund'schen Kopplung insbesondere davon ab, ob die lokalisierten magnetischen Momente parallel zum Spin des beweglichen Elektrons ausgerichtet sind oder nicht. Theoretisch wurde dieser Sachverhalt von Zener [91], Anderson [100] und de Gennes [101] im Doppel-Austausch-Modell dargelegt. Die wichtigste Konsequenz der Aufspaltung in Spin- und Ladungs-Bereiche ist die starke effektive Kopplung zwischen dem Elektronen-Spin der e_g -Leitungselektronen und dem lokalen Spin der t_{2g} -Elektronen, die der Hund'schen Regel folgt. Die Austauschenergie J_H liegt für Manganate in der Größenordnung von 2-3 eV.

Der ferromagnetische Zustand ist bei maximaler kinetischer Energie der Leitungselektronen am stabilsten. Wenn die Temperatur in den Bereich der ferromagnetischen Übergangstemperatur T_C kommt, wird die Spin-Konfiguration zunehmend ungeordneter, was zu einem Anwachsen des Widerstandes in der Nähe von T_C führt. Dementsprechend sind die lokalen Spins durch ein äußeres Feld leicht zu beeinflussen, was zu einem großen MR-Effekt führt.

Spin-polarisiertes Tunneln

In polykristallinen Proben kann man das intergranulare spin-polarisierte Tunneln zwischen benachbarten Körnern beobachten. Dieses tritt hauptsächlich bei geringen Feldstärken bis 100 mT

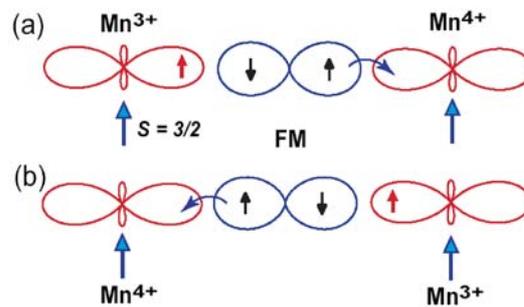


Abbildung 2.16: Doppelaustauschmechanismus zwischen Mn^{3+} - und Mn^{4+} -Ionen. Das Elektron des Mn^{3+} -Ions kann bei ferromagnetischer Anordnung der Atome über das Sauerstoffatom zum Mn^{4+} -Ion springen (aus [26]).

auf und kann bei tiefen Temperaturen beobachtet werden [92, 93, 94]. Das Tunneln spinpolarisierter Elektronen zwischen metallischen Partikeln wurde erstmalig 1972 von Gittleman beschrieben [102]. Helman und Abeles schlugen daraufhin ein Modell hierzu vor, in dem sie davon ausgehen, dass ein Elektron, das durch die Grenze zwischen zwei Körnern mit antiparalleler Spin-Einstellung tunnelt, eine Potentialbarriere der Höhe E_m überwinden muss [103]. Dadurch unterscheidet sich die Tunnelwahrscheinlichkeit zwischen Körnern mit antiparalleler Ausrichtung von der paralleler Körner um einen Faktor $e^{-E_m/kT}$. Durch ein äußeres Magnetfeld werden die Körner parallelisiert, so dass die Tunnelwahrscheinlichkeit zwischen den Körnern zunimmt. Die Änderung des Widerstandes ist invers proportional zum Quadrat der totalen Spindichte an der Fermi-Kante zusätzlich zur Polarisierung des Leitungsbandes [94], was sich in einem linearen Abfall des Widerstandes bei geringen Feldstärken (bis 0.3 T) und geringen Temperaturen äußert.

Perkolation

Ein weiterer wichtiger Schritt bei der Erklärung des CMR-Effekts in Manganaten stellt der Perkulationsansatz dar. Innerhalb der Probe existiert eine inhomogene Verteilung von Bereichen mit unterschiedlichen physikalischen Eigenschaften: ferromagnetische, metallische Bereiche in einer antiferromagnetisch geordneten, isolierenden Matrix [104]. Experimentell wurde diese Theorie 1999 von Fäth [95] und Uehara [105] bewiesen. Fäth et al. zeigten in tunnelmikroskopischen Leitfähigkeitsmessungen an $La_{0.7}Ca_{0.3}MnO_3$, dass ein magnetisches Feld halbleitende Regionen in metallische überführt (Abb. 2.17).

Ab einer bestimmten Feldstärke resultiert das in einem perkolierenden leitfähigen Pfad durch die Probe. Die Phasenseparation und die Verteilung der ferromagnetisch-metallischen Domänen sind nicht direkt mit der Mikrostruktur der Probe korreliert [106, 107]. Diese intrinsischen Inhomogenitäten haben eine Größe von wenigen 10 nm und können sogar in Einkristallen beobachtet werden [105].

Die Ergebnisse vieler theoretischer Arbeiten geben die experimentellen Funde überraschend gut wieder [108]. Becker et al. [106] zeigten, dass dieser Effekt nicht nur auf einen schmalen Temperaturbereich rund um die Metall-Isolator-Übergangstemperatur beschränkt ist, sondern in einem weiten Temperaturbereich auftritt. In $La_{0.7}Sr_{0.3}MnO_3$ wurden sogar bei 87 K in der ferromagnetischen Phase isolierende Regionen gefunden, die sich zwischen den ferromagnetischen, etwa 21 nm großen, Bereichen befinden. Mayr et al. [108] berechneten in einer theoretischen

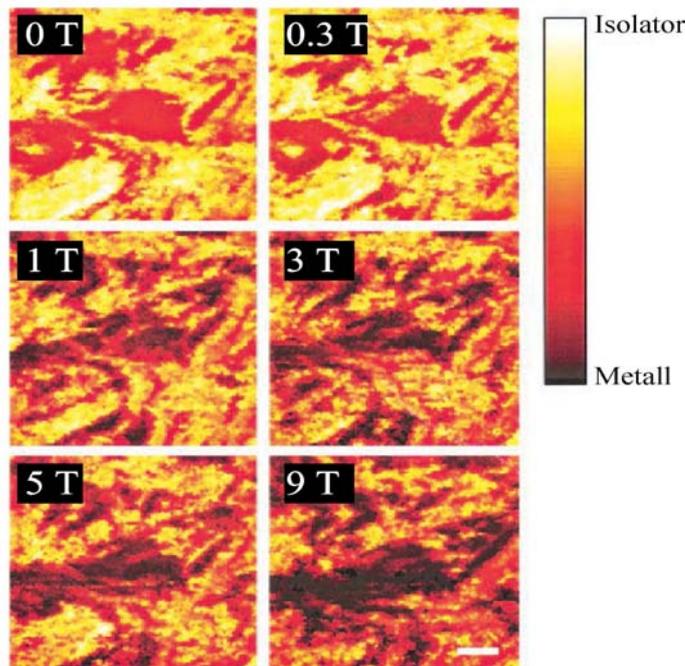


Abbildung 2.17: Perkolation in $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$: Tunnelmikroskopaufnahme an einem dünnen $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ -Film ($0.61\mu\text{m} \times 0.61\mu\text{m}$) bei einer Grundspannung von 3 V. Die Farbe gibt die Charakteristik des Materials von metallischer Leitfähigkeit (dunkel) zu isolierendem Verhalten (hell) wieder. Die Aufnahmen wurden bei einer Temperatur knapp unterhalb von T_C bei magnetischen Flussdichten von 0, 0.3, 1, 3, 5 und 9 T (von links oben nach rechts unten) gemacht (aus [95]).

Studie die Wirkung der Perkolation auf die Leitfähigkeit von Manganaten mit mehreren vorliegenden Phasen innerhalb des Materials. Anhand des Modellsystems $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$ und $\text{La}_{0.67}\text{Pb}_{0.10}\text{Ca}_{0.23}\text{MnO}_3$ zeigten sie, dass innerhalb des Perkulationsbereichs (Konzentration p , bei der die Perkolation einsetzt) eine Variation von 5 % der Konzentration p der ferromagnetisch-metallischen Filamente ausreicht, um den Widerstand des gesamten Netzwerkes um einen Faktor 500 zu reduzieren. Die Arbeiten von Kreuzbruck et al. an stickstoff-substituiertem LaSrMnO_3 , in denen der Doppelaustauschmechanismus durch gezieltes Einbringen von Stickstoff an die Sauerstoffplätze untersucht wurde, haben das eben beschriebene Perkulationsverhalten des CMR bestätigt [90].

2.4.4 Size-Effekt im Magnetfeld

Ein grundlegender Effekt eines Magnetfeldes auf die Bewegung der Elektronen in Materialien ist deren Ablenkung von ihren geraden Bahnen auf Spiralbahnen, was sich in dünnen Schichten ebenfalls auf den Widerstand auswirkt. Wie in Kapitel 2.3.3 dargelegt, führt die verstärkte Streuung der Elektronen an Korngrenzen sowie den Oberflächen in dünnen Schichten zu einer Erhöhung des elektrischen Widerstandes. Beim Anlegen eines magnetischen Feldes werden die Elektronen auf Spiralbahnen mit dem Radius r gezwungen:

$$r = \frac{\hbar}{e} \cdot \frac{k_F}{B} \sin(\alpha). \tag{2.94}$$

Dabei ist B die magnetische Induktion und α der Winkel zwischen \vec{B} und \vec{k}_F . Stehen \vec{B} und

\vec{k}_F senkrecht zueinander, d. h. $\alpha = 90^\circ$, so bewegen sich die Elektronen auf Bahnen gleichen Radius'

$$r_c = \frac{\hbar}{e} \cdot \frac{k_F}{B}. \tag{2.95}$$

Die Krümmung der Elektronenbahn beeinflusst die Häufigkeit von Streuprozessen an der Oberfläche (siehe Abb. 2.18), was wiederum den spezifischen Widerstand ρ beeinflusst: $\rho \propto d/r_c$.

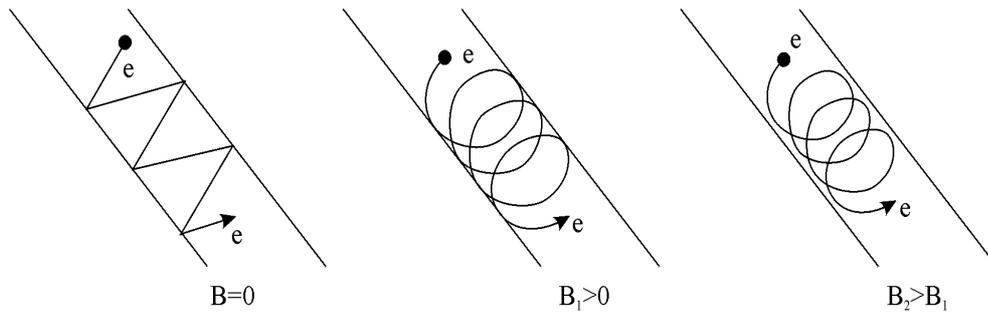


Abbildung 2.18: Bahnkrümmung im Magnetfeld beim Size-Effekt. Man erkennt, dass mit größer werden dem Magnetfeld der Bahnradius geringer wird, wodurch die Streuung der Elektronen an den Oberflächen der Schicht reduziert wird.

Grosse [96] schätzte den Magnetowiderstand für schwache Felder ($\omega_c \ll \omega_\tau$ mit ω_c : Zyklotronfrequenz und ω_τ : Stoßfrequenz) ab, indem er den Weg der Teilchen im Magnetfeld berechnete, was zu einer Änderung des Widerstandes im Magnetfeld proportional zum Quadrat der Beweglichkeit μ und der magnetischen Flussdichte B führte:

$$\frac{\Delta\rho}{\rho} = \frac{\rho(B) - \rho(0)}{\rho(0)} \propto - \left(\frac{\omega_c}{\omega_\tau} \right)^2 \cong -(\mu B)^2, \tag{2.96}$$

mit der Beweglichkeit $\mu = \tau \cdot e/m$, der Stoßfrequenz $\omega_\tau = 1/\tau$ und der Zyklotronresonanzfrequenz $\omega_c = (e/m) \cdot B$. Durch den Size-Effekt tritt also in dünnen Schichten zusätzlich zum im jeweiligen Material beobachteten Effekt ein negativer, in B quadratischer MR-Effekt auf.

Der Einfluss des Size-Effekts auf den elektrischen Widerstand kann allerdings nicht in allen Materialsystemen direkt beobachtet werden, da der normale Magnetowiderstand in Metallen diesen überlagert, so dass man zwar unter Umständen ein langsames Ansteigen des OMR bei niedrigeren Feldern misst, den quadratischen Einfluss des normalen MR-Effektes aber nicht von dem des Size-Effektes unterscheiden kann. Klassische Modellsysteme, an denen der Size-Effekt demonstriert wurde, sind Metalle mit geringem OMR, wie z.B. Wismut.

2.4.5 Schwache Lokalisierung im Magnetfeld

Wie in Kapitel 2.3.4 dargelegt wird, erhöht die kohärente Rückstreuung von Elektronen den Widerstand eines Materials.

In einem Magnetfeld wird die Phasenkohärenz der beiden kohärent zurückgestreuten Partialwellen geschwächt oder ganz zerstört. Umlaufen die beiden Teilwellen eine Fläche F , die vom magnetischen Fluss ϕ durchdrungen wird, ist die relative Änderung der beiden Phasen $(2e/\hbar)\phi$.

Der Faktor 2 rührt daher, dass die beiden Partialwellen die Fläche zweimal umlaufen, was auch als die Umrundung zweier Teilchen mit der Ladung je eines Elektrons, analog zur Ladung $2e$ in der Supraleitung, gedeutet werden kann.

Aufgrund der statistischen Natur der Diffusion existieren für eine Diffusionszeit t eine ganze Reihe von Möglichkeiten, einen geschlossenen Pfad zu durchlaufen. Dies kann über ein Interferenz-Experiment mit einem zylindrischen Film in einem Magnetfeld parallel zur Zylinderachse beobachtet werden. Die Veränderung der Phase zwischen den Komplementärwellen ist ein Vielfaches von $2e\phi/\hbar$ (ϕ = Fluss in der Zylinderebene). Der Widerstand in dem Zylinder oszilliert dann mit einer Flussperiode von $\phi = h/(2e)$.

In einem dünnen Film in einem senkrechten magnetischen Feld umschließen die Partialwellenpaare Flächen zwischen $-2Dt$ und $2Dt$. Nach einer Zeit $t_H = \hbar/(4eDH)$ wird die größte Phasenverschiebung größer als 1, so dass die Interferenz sowohl konstruktiv als auch destruktiv ist und im Mittel verschwindet. Die Leitfähigkeitskorrektur in einem Feld H wird also berechnet über das Integral der Intensität von τ_0 bis t_H :

$$\Delta l(H) \propto \int_{\tau_0}^{t_H} I_{koh} dt \propto -\frac{e^2}{2\pi^2\hbar} \log(t_H/\tau_0) \tag{2.97}$$

Wichtig ist dabei, dass nur die Amplituden der gestreuten Wellen interferieren und keine Interferenz zwischen Originalwelle und gestreuter Welle stattfindet. Ebenso ist die Kohärenzlänge, d.h. die Länge, über die ein Wellenpaket definiert werden kann ($\hbar v_F/(k_B T)$) bei den tiefen Temperaturen, bei denen der Effekt beobachtet wird, viel kleiner als die inelastische freie Weglänge $v_F\tau_i$ (sonst befindet man sich nicht mehr im Bereich, in dem Quanteninterferenz an Defekten beobachtet werden kann).

Quantitativ bewirkt ein Anlegen eines magnetischen Feldes eine destruktive Interferenz im Endzustand $-\vec{k}$. Aber in der Umgebung von $-\vec{k}$ ist die Interferenz für die Zustände $-\vec{k} + \vec{q}$ konstruktiv, wenn \vec{q} auf Landau-ähnlichen Kreisen mit $(\hbar q)^2/(4m) = \hbar\omega_c(n + 1/2)$ (mit ω_c : Zyklotron-Frequenz) liegt. Abbildung 2.19 zeigt die erlaubten Zustände als Funktion von \vec{q} . Der Durchmesser der Fläche, in der kohärente Rückstreuung stattfindet, verringert sich mit der Zeit wie $(Dt)^{-1/2}$ und die kohärente Rückstreuung verschwindet komplett, wenn die Fläche völlig innerhalb des ersten Landau-Kreises mit Durchmesser $(2eH/\hbar)^{1/2}$ liegt. Dies ist der Fall in Feldern der Größenordnung $H = \hbar(4eDt)$.

Wenn ein Magnetfeld H angelegt wird, wird der Beitrag der kohärenten Rückstreuung im Zeitintervall zwischen τ_0 und $t_H = \hbar/(4eDH)$ integriert. Wenn das Feld von H' zu H'' reduziert wird, entspricht die Änderung des Widerstandes dabei dem Beitrag der kohärenten Rückstreuung im Zeitintervall $t_{H'}$ und $t_{H''}$. In einem sehr starken Feld ist die kohärente Interferenz völlig unterdrückt.

Eine Reduktion des magnetischen Feldes erhöht die kohärente Rückstreuung und damit den Widerstand.

Wenn t_H größer wird als die inelastische Lebensdauer der Leitungselektronen, $H < H_i = \hbar/(4eD\tau_i)$, ist die Kohärenz zerstört und der Widerstand verringert sich. Da das Magnetfeld dadurch dem System eine Zeit t_H aufprägt (also eine weitere Dekohärenzzeit), können alle charakteristischen Zeiten τ_x über magnetische Feldstärken H_x ausgedrückt werden:

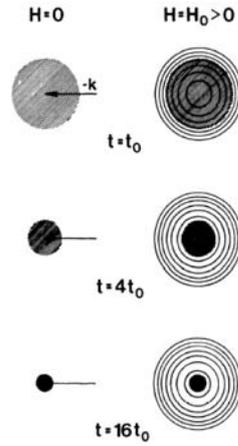


Abbildung 2.19: Rückstreupunkt eines Elektrons in der Nähe des Zustands $-\vec{k}$ in feldfreiem Raum (links) und bei Anwesenheit eines endlichen Magnetfeldes H . Der Punkt zeigt eine endliche Ausdehnung $\pi/(Dt)$, die mit der Zeit abnimmt. In einem magnetischen Feld ist die Kohärenzbedingung modifiziert und nur die Zustände \vec{k} , die auf „Landau“-ähnlichen Kreisen liegen, tragen zur kohärenten Rückstreuung bei. Für lange Zeiten t schließen sich die beiden Bedingungen gegenseitig aus, da der Punkt innerhalb aller „Landau“-Kreise liegt und die kohärente Rückstreuung verschwindet ab einer Zeit $t_H = \hbar/(4eDH)$. Der Widerstand entspricht einer Integration der Intensität der kohärenten Rückstreuung im Zeitintervall $\tau_0 < t < t_H$ (aus [20]).

$$\tau_x H_x = \hbar/(4eD) \tag{2.98}$$

Die Änderung des spezifischen Widerstandes im Magnetfeld ist durch die individuellen Abhängigkeiten der Dephasierungsmechanismen sowohl temperatur- als auch dimensionsabhängig. Für den MR in drei Dimensionen berechneten Lin, Fukuyama Larkin und Altshuler [19, 109, 110, 111]:

$$\frac{\Delta\rho(B)}{\rho^2(0)} = \frac{e^2}{2\pi^2\hbar} \sqrt{\frac{eB}{\hbar}} \left(\frac{1}{2\sqrt{1-\gamma}} \left[f_3\left(\frac{B}{B_-}\right) - f_3\left(\frac{B}{B_+}\right) \right] - f_3\left(\frac{B}{B_2}\right) + \beta_{Larkin}(T) f_3\left(\frac{B}{B_\phi}\right) \right) - \frac{e^2}{2\pi^2\hbar} \sqrt{\frac{eB}{\hbar}} \left(\sqrt{\frac{4B_{SO}}{3B}} \left[\frac{1}{\sqrt{1-\gamma}} (\sqrt{t_+} - \sqrt{t_-}) + \sqrt{t} - \sqrt{t+1} \right] \right) \tag{2.99}$$

mit

$$t = \frac{3B_\phi}{2(2B_{SO} - B_0)}, \quad \gamma = \left[\frac{3g^*\mu_B B}{4eD(2B_{SO} - B_0)} \right]^2, \quad t_\pm = t + \frac{1}{2}(1 \pm \sqrt{1-\gamma}) \tag{2.100}$$

$$B_\phi = B_i + B_0, \quad B_2 = B_i + \frac{1}{3}B_0 + \frac{4}{3}B_{SO}, \quad B_\pm = B_\phi + \frac{1}{3}(2B_{SO} - B_0)(1 \pm \sqrt{1-\gamma}). \tag{2.101}$$

Dabei ist g^* der Land-Faktor und μ_B das Bohrsche Magneton. Die Funktion f_3 wurde von Kawabata exakt ermittelt [112], eine Näherung wurde von Baxter et al. berechnet [113]:

$$f_3(y) \approx 2 \left[\sqrt{2 + \frac{1}{y}} - \sqrt{\frac{1}{y}} \right] - \left[\left(\frac{1}{2} + \frac{1}{y} \right)^{-1/2} + \left(\frac{3}{2} + \frac{1}{y} \right)^{-1/2} \right] + \frac{1}{48} \left(2.03 + \frac{1}{y} \right)^{-3/2} \quad (2.102)$$

Der Term $\beta_{Larkin}(T)f_3(B/B_\phi)$ enthält den Beitrag der supraleitenden Fluktuationen nach Maki–Thompson, der für schwache Felder $4eDB < 3\pi k_B(T - T_C)$ berechnet wurde und in höheren Feldern konstant ist [114].

In zweidimensionalen Proben vereinfacht sich die obige Formel. Hikami et al. [115] berechneten die Änderung der Leitfähigkeit einer zweidimensionalen Probe bei einem senkrecht zum angelegten Strom verlaufenden Magnetfeld $\Delta\sigma_{\perp,WL}(B, T)$ [63, 116]:

$$\Delta\sigma_{\perp,WL} = \frac{e^2}{2\pi^2\hbar} \left[\frac{3}{2}\psi\left(\frac{1}{2} + \frac{B_2}{B}\right) - \psi\left(\frac{1}{2} + \frac{B_1}{B}\right) - \frac{1}{2}\psi\left(\frac{1}{2} + \frac{B_3}{B}\right) - \ln\left(\frac{B_2^{3/2}}{B_1B_3^{1/2}}\right) \right] \quad (2.103)$$

Dabei ist $\psi(x)$ die Digamma-Funktion [117] und

$$\begin{aligned} B_1 &= B_0 + B_{SO} + B_S \\ B_2 &= B_i(T) + \frac{4}{3}B_{SO} + \frac{2}{3}B_S \\ B_3 &= B_i(T) + 2B_S \end{aligned} \quad (2.104)$$

In den in dieser Arbeit untersuchten Proben wird die magnetische Streuung aufgrund der hohen Reinheit der verwendeten Materialien vernachlässigt und damit wird $B_S = 0$. B_i bezeichnet den Beitrag der inelastischen Streuung, in dem die inelastische Elektron–Elektron–Streuung und die Elektron–Phonon–Streuung enthalten sind. In unserem Fall lässt sich dieser Beitrag, wie im experimentellen Kapitel näher dargelegt werden wird, auf die Elektron–Phonon–Streuung reduzieren.

Für ein Feld, das parallel zum durch die Probe fließenden Strom ausgerichtet ist, findet sich für die Änderung der Leitfähigkeit im Magnetfeld nur eine Störungsrechnung von Altshuler und Aronov in der Literatur [118]. Darauf aufbauend entwickelte Markievicz einen genaueren Ausdruck für die parallele Leitfähigkeit σ_{\parallel} , der die korrekte Formel für die Näherungen geringer Felder liefert [119]:

$$\sigma_{\parallel}(B, T) = \sigma_0 + \frac{e^2}{2\pi^2\hbar} \left[\frac{3}{2}\ln\left(\frac{B_2}{B_1} + \frac{d^2\pi B^2}{12\phi_0 B_0}\right) - \frac{1}{2}\ln\left(\frac{B_3}{B_1} + \frac{d^2\pi B^2}{12\phi_0 B_0}\right) - \ln\left(1 + \frac{d^2\pi B^2}{12\phi_0 B_0}\right) \right] \quad (2.105)$$

Dabei ist d die Dicke der Probe und $\phi_0 = h/2e$ das magnetische Flussquantum ($2.06783372 \cdot 10^{-15}$ Wb), die restlichen Größen sind wie in Gleichung 2.104 gegeben.

Bei der späteren Auswertung des Anteils der schwachen Lokalisierung am Verlauf der Magnetoresistenz werden aufgrund der Dimension des Dephasierungsprozesses die zweidimensionalen Formeln 2.103 und 2.105 für den Fit der Leitfähigkeitsänderung eingesetzt.

2.4.6 Der Lineare Magnetoresistive Effekt (LMR)

Das Hauptthema dieser Arbeit ist der sogenannte „lineare Magnetoresistive Effekt“ (LMR), zu dessen Erklärung mehrere theoretische Modelle vorgeschlagen wurden, unter anderem ein Quantenphänomen. Die von Xu et al. in $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ und $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Te}$ beobachtete lineare Abhängigkeit des Widerstandes vom angelegten Magnetfeld bei hohen Feldstärken [2] konnte mit den bisherigen Modellen aber nicht zufriedenstellend beschrieben werden.

Vor Xu beobachtete Peter Kapitza bei höheren Feldern und Temperaturen zwischen 80 K und 290 K erst in Wismut, dann auch in anderen Metallen einen linearen MR-Effekt [120, 121], der zu dem sogenannten **linearen Kapitza Gesetz** führte. Lifshitz und Peschansky erklärten 1958 dieses Verhalten [122], indem sie die Elektronenbahnen in einem äußeren Magnetfeld klassisch berechneten. Unter der Annahme offener Fermi-Flächen (was für die meisten Metalle zutrifft) leiteten sie her, dass für bestimmte Winkelbereiche $R \sim H^2$ gilt, für polykristalline Proben man hingegen $R \sim H$ findet. Das erklärte zwar die Messungen von Kapitza an Metallen theoretisch, allerdings fehlte dabei die Erklärung des linearen Magnetowiderstands in Materialien mit geschlossenen Fermi-Flächen, wie in Alkali- und Halbmetallen, wobei Wismut selbst sehr kleine geschlossene Fermi-Flächen mit einer Elektronen-Konzentration von 10^{17} cm^{-3} hat.

A. Abrikosov entwickelte später eine allgemeine Theorie galvanomagnetischer Phänomene in isotropen Metallen [123] und erhielt unter der Annahme, dass sich die Elektronen nur in einem Landau-Band aufhalten, eine lineare Abhängigkeit des MR vom äußeren Feld, die er allerdings aufgrund des stattfindenden Mechanismus’ „Quanten-Magnetowiderstand“ (QMR) nannte:

$$\boxed{\rho_{xx} = \rho_{yy} = \frac{N_i H}{\pi n^2 e c}}, \quad R = \frac{1}{nec} \quad (2.106)$$

mit N_i : Dichte der Streuzentren, n : Elektronendichte, R : Hall-Konstante.

Damit Gleichung 2.106 erfüllt ist, müssen zwei Bedingungen erfüllt sein:

$$n \ll \left(\frac{eH}{\hbar c}\right)^{2/3} \quad \text{und} \quad T \ll \frac{eH\hbar}{m^*c} \quad (2.107)$$

Die erste Ungleichung fordert $n \approx 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ für ein Magnetfeld von etwa 10 T; Wismut besitzt eine Ladungskonzentration von etwa $n \approx 10^{17} \text{ cm}^{-3}$. Die zweite Ungleichung ist aufgrund der geringen effektiven Masse $m^* \approx 10^{-2} m_0$ (m_0 : Ruhemasse des Elektrons) von Wismut bis zu Temperaturen von etwa 1000 K erfüllt, so dass die Messungen von Kapitza anhand dieser Theorie erklärt werden konnten.

Es wurde anfangs vermutet, dass die von Xu et al. [2] veröffentlichten Messungen an Silberchalcogeniden ein weiteres Beispiel für den QMR sein könnten. Der lineare MR-Effekt erstreckt sich aber von 10^{-3} T bis 5.5 T in einem Temperaturbereich von 4.5 K bis 300 K, d.h. die zweite Bedingung in Gleichung 2.107 ist nicht erfüllt. A. Abrikosov entwickelte nun in einer weiteren theoretischen Arbeit [10] zur Beschreibung dieses Verhaltens ein Modell eines 2-Komponenten-Systems, bei dem die halbleitende Matrix eine verschwindend kleine Bandlücke besitzt. Dabei setzte er inhomogene Proben, die Silber-Cluster enthalten sowie einen Halbleiter ohne Energielücke mit linearem Energiespektrum voraus.

Die zunehmende Beweglichkeit der Silberionen im Silberselenid bewirkt eine erhebliche Unordnung im Material, die im Leitungs- und Valenzband zu Einschnürungen führt. Dabei können

sich die Bänder überlappen, wodurch das Material metallisch wird. Die nicht-stöchiometrische Verbindung kann somit nicht mehr wie ein Halbleiter betrachtet werden, dessen Bänder mit Ladungsträgern dotiert wurde, sondern es muss von einer anderen Phase ausgegangen werden, die eher einem Halbleiter ohne Energielücke gleicht. Anschaulich kann man sich darunter ein Material mit direkter Energielücke vorstellen, das bei $T=0$ K ein vollständig gefülltes Valenzband und ein leeres Leitungsband hat. Aufgrund der geringen effektiven Masse der Ladungsträger scheint das Energiespektrum in beiden Bändern linear.

Der spezifische Widerstand in inhomogenen Halbleitern mit verschwindender Energielücke wird nach Abrikosov [10] linear zum Feld H sowie zusätzlich temperaturunabhängig:

$$\rho_{xx} = \rho_{yy} = \frac{1}{2\pi} \left(\frac{e^2}{\epsilon_{\infty}\nu} \right)^2 \frac{N_i H}{n_0^2 e c} \ln \epsilon_{\infty} \quad (2.108)$$

mit der Elektronengeschwindigkeit ν und der „Umgebungs-Dielektrizitätskonstanten“ ϵ_{∞} der Atomrümpfe.

Trotzdem zeigen die experimentellen Daten [2] eine Temperaturabhängigkeit, bei der der Widerstand von 4.5 K bis 300 K etwa um das Dreifache abnimmt.

Phononenstreuung würde allerdings eine Zunahme des Widerstandes bewirken, so dass dieser Effekt nicht durch diesen Mechanismus bedingt sein kann, sondern einer Änderung der Dotierung (n_0) zugeschrieben wird, was auch durch die Abnahme der beobachteten Hall-Konstanten und des spezifischen Widerstandes mit steigender Temperatur etwa 60 K bis 70 K bestätigt wird.

1999 erweiterte Abrikosov seine Theorie des Quanten-Magnetowiderstandes auch für geschichtete Halbmetalle [124] und fand für den spezifischen Widerstand ebenfalls eine lineare Abhängigkeit:

$$\rho_{xx} = \frac{N_i H}{\pi n_0^2 e c} \cdot \frac{\sinh(1/\theta)}{\cosh(m/\theta) + \cosh(m/\theta)}. \quad (2.109)$$

Dabei sind $m = \mu/t$ (μ : chemisches Potential), $\theta = T/t$ (T : Temperatur) und $2t$ die Bandweite.

2.4.7 Erklärungsversuch des LMR mittels Effective Medium Approximation

Einen völlig davon abweichenden neuen Ansatz zur Erklärung des linearen Verhaltens des Widerstandes in Silberchalkogeniden machten die Gruppen um Guttal und Stroud [11], Bulgadaev [13] und Magier und Bergmann [14]. In einer klassischen Annäherungen an eine „effective medium approximation“ modellierten sie ein 2-Komponenten-System und sagten eine Abhängigkeit des LMR vom Volumenanteil des Silberüberschusses voraus.

Die „effective medium approximation“ (EMA) ist eine Methode, makroskopisch inhomogene Medien mit örtlich veränderlicher Leitfähigkeit σ und dielektrischer Konstanten ϵ zu behandeln. Viele Materialien gehören dieser Materialklasse an, beispielsweise Metall-Isolator-Proben oder Metall-Supraleiter-Proben, bei denen eines der beiden Materialien oder beide in Körnerform vorliegen.

Die Anfänge der EMA gehen auf Bruggemann [125] und Landauer [126] zurück, welche die Leitfähigkeit einer inhomogenen Mischung zweier Materialien berechneten, indem sie die effektive Leitfähigkeit σ_e des Gesamtsystems aus den Leitfähigkeiten der Einzelkomponenten bestimmten.

Dabei betrachteten sie zwei kristalline Medien mit den Leitfähigkeiten σ_A und σ_B , die homogen miteinander gemischt sind, wobei die einzelnen Kristallite von makroskopischer Größenordnung sind, so dass die für makroskopische Systeme gültigen Regeln (d.h. klassische Maxwell'sche Gleichungen und Ohm'sches Gesetz) angewandt werden können. Der Anteil des Materials A wurde mit p , der des zweiten mit $1 - p$ angenommen. Unter der Annahme, dass die einzelnen Kristalle sphärisch geformt sind und sich so verhalten, als seien sie in ein homogenes Medium eingebettet, dessen Leitfähigkeit der der Gesamtmischung σ_e entspricht, erhielt Landauer für die effektive Leitfähigkeit [126]:

$$\sigma_e = \frac{1}{4}(3(1-p) - 1)\sigma_B + (3p-1)\sigma_A + [((3(1-p) - 1)\sigma_B + (3p-1)\sigma_A)^2 + 8\sigma_A\sigma_B]^{1/2} \quad (2.110)$$

In den folgenden Jahren wurde dieser Ansatz weiterentwickelt [127] und auch dazu benutzt, die Hall-Konstante [128] sowie das magnetoresistive Verhalten [129] von Proben dieser Zusammensetzung vorherzusagen. Dabei wurden schwach nicht-lineare leitende [130], stark nicht-lineare leitende Kompositionen [131] sowie lineare Proben behandelt, deren Bestandteile durch einen nicht-skalaren Leitfähigkeitstensor charakterisiert sind [129, 132]. Letztere Betrachtungen waren nötig, um die nicht-skalare Leitfähigkeit beim Anlegen eines magnetischen Feldes zu berechnen [128, 129, 132, 133].

Da in realen Materialien die Einschlüsse selten rein spärliche oder elliptische Geometrie aufweisen, wurden Verallgemeinerungen der Theorie für unterschiedlich geformte Einschlüsse im Matrixmaterial hergeleitet [132, 134, 135].

Eine grundlegende Herleitung der Theorie, in der auch der Fall betrachtet wird, dass die Körner des einen Materials innerhalb des anderen einen durchgehenden Pfad bilden — also sogenannte „Perkolation“ vorliegt — findet sich bei David Stroud [136]. Er betrachtet zunächst eine zufällige Mischung zweier Arten von Körnern A und B mit den skalaren Leitfähigkeiten σ_A und σ_B , die einen Anteil p und $1 - p$ am Volumen der Gesamtprobe einnehmen. Um die effektive Leitfähigkeit dieser Mischung zu berechnen, wird wie bei Landauer und Bruggemann angenommen, dass jedes Korn anstatt in seiner tatsächlichen Umgebung in einem homogenen *effektiven Medium* der Leitfähigkeit σ_e eingebettet ist. Weiterhin wird angenommen, dass jedes Korn spährisch geformt ist, was bei kompakten Körnern näherungsweise auch der Fall ist. Das elektrische Feld innerhalb eines Kornes i ist dann gleichförmig und gegeben durch:

$$E_{\text{in}} = E_0 \frac{3\sigma_e}{\sigma_i + 2\sigma_e}, \quad (2.111)$$

wobei $\sigma_i = \sigma_A$ oder σ_B und E_0 das elektrische Feld in weiter Entfernung des Kornes ist, d.h. das Feld, das in einem homogenen effektiven Medium der Leitfähigkeit σ_e herrschen würde.

Die Selbstkonsistenz-Bedingung, die von der EMA gefordert ist, besagt, dass das mittlere elektrische Feld innerhalb des Kornes gleich dem Feld innerhalb des homogenen Materials E_0 sein muss, beziehungsweise:

$$pE_0 \frac{3\sigma_e}{\sigma_A + 2\sigma_e} + (1 - p)E_0 \frac{3\sigma_e}{\sigma_B + 2\sigma_e} = E_0 \quad (2.112)$$

Das elektrische Feld E_0 kann weggekürzt werden und man erhält die bekannte Form:

$$p \frac{\sigma_A - \sigma_e}{\sigma_A + 2\sigma_e} + (1-p) \frac{\sigma_B - \sigma_e}{\sigma_B + 2\sigma_e} = 0 \quad (2.113)$$

Für zwei spezielle Fälle ist die EMA besonders interessant:

- σ_A endlich und $\sigma_B = 0$: Metall–Isolator–Gemisch
- σ_A endlich, $\sigma_B \rightarrow \infty$: Metall–Supraleiter–Gemisch

In beiden Fällen liefert die EMA singuläre Eigenschaften bei der Perkolationsgrenze p_c .

Im ersten Fall (Metall–Halbleiter) findet man:

$$\begin{aligned} \sigma_e &= 0 & p < p_c \\ \sigma_e &= \frac{3}{2}\sigma_A(p - p_c) & p > p_c \end{aligned} \quad (2.114)$$

Im zweiten Fall (Metall–Supraleiter) gilt:

$$\begin{aligned} \sigma_e &= \frac{3}{2}\sigma_B(p_c - p)^{-1} & p < p_c \\ \sigma_e &= \infty & p > p_c \end{aligned} \quad (2.115)$$

In drei Dimensionen und annähernd sphärischen Körnern ist $p_c = 1/3$. Im Allgemeinen kann in d Dimensionen und bei Vorliegen kompakter Körner p_c mit $1/d$ angesetzt werden. Für andere Körnerformen oder eine Verteilung der Formen kann die Vorhersage der EMA stark variieren [132].

Die bisherigen Formeln wurden für den elektrischen Transport bei Gleichstrom hergeleitet, sie sind aber nicht nur auf die elektrische Leitfähigkeit eines inhomogenen Leiters beschränkt, sondern können auf jeglichen effektiven Transport angewandt werden, der ein wirbelfreies antreibendes Feld mit einem divergenzfreien Strom verknüpft, wie z.B. bei der thermischen Leitung, wo der negative Temperaturgradient den Wärmefluss angibt, oder bei einem inhomogenen magnetischen Material, wo das magnetische Feld \vec{H} mit der magnetischen Induktion \vec{B} verknüpft ist. Im letzteren Fall ist der effektive Transportkoeffizient durch die effektive magnetische Permeabilität μ gegeben.

Die EMA kann auch für geringe Frequenzen verallgemeinert werden, wenn die relevanten Felder ausreichend lange Wellenlängen aufweisen [136].

Auch das ungewöhnliche magneto-resistive Verhalten von $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ [2, 3, 22] kann zum großen Teil mit der EMA erklärt werden.

Guttal und Stroud [11, 137] erforschten theoretisch den Zusammenhang zwischen dem Magneto-widerstandsverhalten und dem Hallwiderstand einer inhomogenen Probe in einem magnetischen Feld und fanden einen linearen Anstieg des MR–Widerstandes unter bestimmten Voraussetzungen, womit das unübliche Verhalten in A_2Se teilweise erklärt werden kann.

D. Stroud generalisierte 1975 als erster die EMA so weit, dass damit inhomogene Medien mit Kristallen beliebiger Form und Orientierung sowie Leitfähigkeitstensenoren beliebiger Symmetrie behandelt werden konnten [132]. Dabei wurde erst eine Integralgleichung für das elektrische Feld im Medium entwickelt, die dann näherungsweise entkoppelt wurde, was den Mittelwertbildungscharakter der EMA verdeutlicht.

Die formale Herleitung der Theorie nach Stroud [132] geht von einem inhomogenen Medium mit Volumen V aus, das von der Oberfläche S umhüllt ist. Der örtlich veränderliche Leitfähigkeitstensor ist charakterisiert durch $\hat{\sigma}(\vec{x})$, wobei der Leiter ein zufälliges Medium ist, in dem Sinne, dass der Mittelwert $\langle \hat{\sigma}(\vec{x}) \rangle$ unabhängig von der Position \vec{x} ist.

Zusätzlich wird die „ergodische“ Annahme gemacht, dass ein Konfigurationsmittelwert äquivalent zu einem Volumenmittelwert ist, also $\langle \hat{\sigma} \rangle = V^{-1} \int_V \hat{\sigma}(\vec{x}) d^3x$, so dass alle Mittelungen explizit als Volumenmittelungen durchgeführt werden können.

Die messbaren Transporteigenschaften des Leiters sind durch einen effektiven positions-unabhängigen Leitfähigkeitstensor $\hat{\sigma}_e$ gegeben. Wenn ein konstantes elektrisches Feld \vec{E}_0 an den Leiter angelegt wird, das ein skalares Potential $\Phi(\vec{x}) = -\vec{E}_0 \cdot \vec{x}$ auf der Oberfläche S erzeugt, wird $\hat{\sigma}_e$ definiert durch:

$$\langle \vec{J} \rangle \equiv \hat{\sigma}_e \langle \vec{E} \rangle, \tag{2.116}$$

wobei \vec{J} die Stromdichte und $\langle \vec{E} \rangle = E_0$ das angelegte Feld ist (Ohm'sches Gesetz).

Um $\hat{\sigma}_e$ anzunähern, wird $\hat{\sigma}(\vec{x})$ um eine konstante Referenzleitfähigkeit $\hat{\sigma}_0$ entwickelt:

$$\hat{\sigma}(\vec{x}) = \hat{\sigma}_0 + \delta\hat{\sigma}(\vec{x}). \tag{2.117}$$

Damit folgt für die Stromdichte

$$\langle \vec{J} \rangle = \hat{\sigma}_0 \langle \vec{E}_0 \rangle + \langle \delta\hat{\sigma} \vec{E} \rangle. \tag{2.118}$$

Für die Berechnung von $\hat{\sigma}_e$ ist demnach eine gute Näherung von $\langle \delta\hat{\sigma} \vec{E} \rangle$ nötig.

Mit den Gleichungen der Elektrostatik $\vec{\nabla} \cdot \vec{J} = 0$, $\vec{\nabla} \times \vec{E} = 0$ und $\vec{J}(\vec{x}) = \hat{\sigma}(\vec{x}) \vec{E}(\vec{x})$ muss das elektrostatische Potential $\Phi(\vec{x})$ folgender Gleichung genügen:

$$\vec{\nabla} \cdot \hat{\sigma}(\vec{x}) \vec{\nabla} \Phi(\vec{x}) = 0. \tag{2.119}$$

Die Substitution 2.117 führt zu dem Randwertproblem

$$\begin{aligned} \vec{\nabla} \cdot \hat{\sigma}_0 \vec{\nabla} \Phi(\vec{x}) &= -\vec{\nabla} \cdot \delta\hat{\sigma}(\vec{x}) \vec{\nabla} \Phi(\vec{x}) && \text{in } V \\ G(\vec{x}, \vec{x}') &= 0, && \vec{x}' \text{ auf } S \end{aligned} \tag{2.120}$$

Mit Einführung der Green'schen Funktion $G(\vec{x}, \vec{x}')$, die durch

$$\begin{aligned} \vec{\nabla} \cdot \hat{\sigma}_0 \vec{\nabla} G(\vec{x}, \vec{x}') &= -\delta(\vec{x} - \vec{x}') && \text{in } V, \\ \Phi(\vec{x}) &= \Phi_0(\vec{x}) \equiv -\vec{E}_0 \cdot \vec{x} && \text{auf } S, \end{aligned} \tag{2.121}$$

gegeben ist, kann $\Phi(\vec{x})$ geschrieben werden als

$$\Phi(\vec{x}) = \Phi_0(\vec{x}) + \int_V G(\vec{x}, \vec{x}') \vec{\nabla}' \cdot \delta\hat{\sigma}(\vec{x}') \vec{\nabla}' \Phi(\vec{x}') d^3x'. \tag{2.122}$$

Partiell integriert und nach Bildung des Gradienten auf beiden Seiten der Gleichung erhält man mit $\delta\hat{J}(\vec{x}') = \delta\hat{\sigma}(\vec{x}') \vec{E}(\vec{x}')$ und $G(\vec{x}, \vec{x}') = G(\vec{x}', \vec{x})$:

$$\vec{E}(\vec{x}) = \vec{E}_0 - \int_V [\delta \vec{J}(\vec{x}') \cdot \vec{\nabla}'] \vec{\nabla} G(\vec{x}, \vec{x}') d^3 x' \quad (2.123)$$

Gleichung 2.123 kann in einer kompakteren Form geschrieben werden:

$$\vec{E}(\vec{x}) = \vec{E}_0 + \int d^3 x' \hat{G}(\vec{x}, \vec{x}') \delta \hat{\sigma}(\vec{x}') \vec{E}(\vec{x}') \quad (2.124)$$

wobei der Tensor $\hat{G}(\vec{x}, \vec{x}')$ definiert ist durch:

$$\hat{G}(\vec{x}, \vec{x}') = \frac{\partial}{\partial x'_\alpha} \frac{\partial}{\partial x_\beta} G(\vec{x}, \vec{x}') \quad (2.125)$$

Die exakte formale Lösung für $\hat{\sigma}_e$ folgt nun mit 2.124 aus

$$\delta \hat{\sigma}(\vec{x}) \vec{E}(\vec{x}) = \delta \hat{\sigma}(\vec{x}) \vec{E}_0 + \delta \hat{\sigma}(\vec{x}) \int d^3 x' \hat{G}(\vec{x}, \vec{x}') \delta \hat{\sigma}(\vec{x}') \vec{E}(\vec{x}')(\vec{x}'). \quad (2.126)$$

Durch die Definition eines Tensors $\hat{\chi}(\vec{x})$

$$\delta \hat{\sigma}(\vec{x}) \vec{E}(\vec{x}) = \hat{\chi}(\vec{x}) \vec{E}_0 \quad (2.127)$$

erhält man:

$$\hat{\chi}(\vec{x}) = \delta \hat{\sigma}(\vec{x}) + \delta \hat{\sigma}(\vec{x}) \int d^3 x' \hat{G}(\vec{x}, \vec{x}') \hat{\chi}(\vec{x}'). \quad (2.128)$$

Vergleicht man nun die Gleichungen 2.116 und 2.118 mit 2.127, erhält man

$$\hat{\sigma}_e = \hat{\sigma}_0 + \langle \hat{\chi} \rangle \quad (2.129)$$

Damit ist das Problem darauf reduziert worden, $\langle \hat{\chi} \rangle$ zu berechnen.

Die Berechnung von $\langle \hat{\chi} \rangle$ hängt von dem genauen Charakter der Inhomogenitäten innerhalb des betrachteten Materials ab. Stroud betrachtet in seiner Theorie ein polykristallines Material, das aus einer zufälligen Anordnung aus Zellen oder Kristalliten besteht, die jeweils individuell rein sind und wohldefinierte Transportkoeffizienten haben. Die Kristallite können in Form, Größe, Komposition und Orientierung der kristallographischen Achsen voneinander abweichen.

Wenn \vec{x} im i -ten Kristalliten mit Volumen v_i liegt, kann Gleichung 2.128 geschrieben werden als:

$$\hat{\chi}(\vec{x}) = \delta \hat{\sigma}_i + \delta \hat{\sigma}_i \int_{v_i} d^3 x' \hat{G}(\vec{x}, \vec{x}') \hat{\chi}(\vec{x}') + \delta \hat{\sigma}_i \int_{V-v_i} d^3 x' \hat{G}(\vec{x}, \vec{x}') \hat{\chi}(\vec{x}'), \quad (2.130)$$

wobei $\delta \hat{\sigma}_i = \hat{\sigma}_i - \hat{\sigma}_0$ (mit $\hat{\sigma}_i$: Leitfähigkeitstensor der i -ten Zelle). Die Näherung besteht nun darin, das letzte Integral in 2.130 durch seinen Mittelwert zu ersetzen, wodurch in Gleichung 2.130

$$\delta\hat{\sigma}_i \int_{V-v_i} d^3x \hat{G}(\vec{x}, \vec{x}') \hat{\chi}(\vec{x}') \approx \delta\hat{\sigma}_i \int_{V-v_i} d^3x \hat{G}(\vec{x}, \vec{x}') \langle \hat{\chi} \rangle \quad (2.131)$$

wird für \vec{x} in der i -ten Zelle. Gleichung 2.131 ermöglicht es, $\chi(\vec{x})$ durch $\langle \hat{\chi} \rangle$ zu berechnen, das wiederum aus $\hat{\chi}(\vec{x})$ bestimmt werden kann. Die Näherung 2.131 hängt nun von der Wahl der Referenzleitfähigkeit σ_0 ab. Die beste Wahl für diese Größe ist der selbst-konsistente Wert (d.h. das elektrische Feld im Inneren eines Kristalliten ist gleich dem Feld, das in einem äußeren homogenen Medium in weiter Entfernung des Kristalliten herrschen würde), so dass

$$\langle \hat{\chi} \rangle = 0 \quad (2.132)$$

Damit und mit Gleichung 2.129 wird $\hat{\sigma}_e = \hat{\sigma}_0$.

Im Endeffekt wird das Medium, das jeden Kristalliten umschließt, durch ein selbst-konsistent bestimmtes effektives Medium ersetzt.

Die hierdurch definierte Näherung kann im Prinzip auf Proben angewandt werden, die aus Kristalliten beliebiger Form mit Leitfähigkeitstensoren beliebiger Symmetrie bestehen.

Wenn die Körner durch Ellipsoide angenähert werden können, führt die Näherung 2.131 zu einem $\hat{\chi}(\vec{x})$, das in jedem Korn gleichförmig ist und $\hat{\sigma}_e$ kann in einer sehr kompakten Form bestimmt werden.

Dazu wird 2.131 in 2.130 eingesetzt, die beiden Integrale in 2.130 partiell integriert und die Randbedingung in 2.121 eingesetzt, was zu

$$\chi_i^{\alpha\beta} = \delta\sigma_i^{\alpha\beta} - \delta\sigma_i^{\alpha\gamma} \left(\int_S d^2x' \frac{\partial}{\partial x_\gamma} G(x, x') n'_\delta \right) \times \left(\chi_i^{\delta\beta} - \langle \chi \rangle_{\delta\beta} \right) \quad (2.133)$$

führt. Dabei ist $\hat{\chi}_i$ der Wert von $\hat{\chi}(\vec{x})$ für x im i -ten Korn und n'_δ eine Komponente von \hat{n}' , dem Einheitsvektor der Außenseite der Oberfläche S' . In Gleichung 2.133 bezeichnen die griechischen Indizes kartesische Komponenten und über wiederholte Indizes wird summiert. Im Grenzfall eines großen Volumens geht $G(\vec{x}, \vec{x}')$ über in die Green'sche Funktion des freien Raums, wodurch Gleichung 2.121 und die Randbedingung $G(\vec{x}, \vec{x}') \rightarrow 0$ wenn $|\vec{x} - \vec{x}'| \rightarrow \infty$. Dadurch ist $G(\vec{x}, \vec{x}')$ nur noch eine Funktion von $\vec{x} - \vec{x}'$. Das Oberflächenintegral ist dann konstant, unabhängig von \vec{x} und wird zu:

$$\hat{\chi}_i = \delta\hat{\sigma}_i + \delta\hat{\sigma}_i \hat{\Gamma}_i (\hat{\chi}_i - \langle \hat{\chi} \rangle), \quad (2.134)$$

wobei

$$\Gamma_i^{\alpha\beta} = - \oint_S \frac{\partial}{\partial x_\alpha} G(\vec{x} - \vec{x}') n'_\beta d^2x'. \quad (2.135)$$

Löst man 2.134 für $\hat{\chi}_i$ in Einheiten von $\langle \hat{\chi} \rangle$, erhält man:

$$\hat{\chi}_i = (\hat{1} - \delta\hat{\sigma}_i \hat{\Gamma}_i)^{-1} \delta\hat{\sigma}_i (\hat{1} - \hat{\Gamma}_i \langle \hat{\chi} \rangle), \quad (2.136)$$

wobei $\hat{1}$ die 3×3 Einheitsmatrix ist.

Nun kann Gleichung 2.136 gemittelt und für $\langle \hat{\chi} \rangle$ gelöst werden. Das Ergebnis kann in 2.129 eingesetzt werden, was zu

$$\hat{\sigma}_e = \hat{\sigma}_0 + \langle (\hat{1} - \delta\hat{\sigma}\hat{\Gamma})^{-1} \rangle^{-1} \langle (\hat{1} - \delta\hat{\sigma}\hat{\Gamma})^{-1} \delta\hat{\sigma} \rangle \quad (2.137)$$

mit

$$\begin{aligned} \langle (\hat{1} - \delta\hat{\sigma}\hat{\Gamma})^{-1} \rangle &= \lim_{V \rightarrow \infty} V^{-1} \sum_i v_i (\hat{1} - \delta\hat{\sigma}_i \hat{\Gamma}_i)^{-1} \\ \langle (\hat{1} - \delta\hat{\sigma}\hat{\Gamma})^{-1} \delta\hat{\sigma} \rangle &= \lim_{V \rightarrow \infty} V^{-1} \sum_i v_i (\hat{1} - \delta\hat{\sigma}_i \hat{\Gamma}_i)^{-1} \delta\hat{\sigma}_i . \end{aligned}$$

führt.

Die Selbstkonsistenzbedingung ist definiert durch

$$\langle (\hat{1} - \delta\hat{\sigma}\hat{\Gamma})^{-1} \delta\hat{\sigma} \rangle = 0 \quad (2.138)$$

Wenden wir nun die EMA auf ein leitfähiges polykristallines Metall in einem magnetischen Feld $\vec{H} = H\hat{z}$ an. Nun ist $\hat{\sigma}_e$ kein Skalar, sondern ein Tensor der Form [146]:

$$\hat{\sigma}_e = \begin{pmatrix} \sigma_{e,xx} & \sigma_{e,xy} & 0 \\ \sigma_{e,yx} & \sigma_{e,yy} & 0 \\ 0 & 0 & \sigma_{e,zz} \end{pmatrix} \quad (2.139)$$

Hierbei gilt aus Symmetriegründen $\sigma_{e,yx} = -\sigma_{e,xy}$ und $\sigma_{e,yy} = \sigma_{e,xx}$. Gleichung 2.121 kann nun für $G(x - x')$ berechnet werden, indem eine Skalentransformation mit dem Ergebnis

$$G(\vec{x}, \vec{x}') = \frac{1}{4\pi\sigma_{e,xx}(\sigma_{e,zz})^{1/2}} \times \left(\frac{(x - x')^2}{\sigma_{e,xx}} + \frac{(y - y')^2}{\sigma_{e,xx}} + \frac{(z - z')^2}{\sigma_{e,zz}} \right)^{-1/2} \quad (2.140)$$

eingesetzt wird. Das Oberflächenintegral 2.135 kann für die Elemente von $\hat{\Gamma}$ ausgewertet werden. Wenn die Kristallite beispielsweise sphärisch sind, erhalten wir eine diagonale Matrix $\hat{\Gamma}$ mit den Matrixelementen

$$\begin{aligned} \Gamma_{zz} &= -\frac{1}{\varepsilon\sigma_{e,zz}} \left(1 - (1 - \varepsilon)^{1/2} \frac{\sin^{-1}\sqrt{\varepsilon}}{\sqrt{\varepsilon}} \right) \\ \Gamma_{xx} = \Gamma_{yy} &= -\frac{1}{2} \left(\Gamma_{zz} + \frac{1}{(\sigma_{e,xx}\sigma_{e,zz})^{1/2}} \frac{\sin^{-1}\sqrt{\varepsilon}}{\sqrt{\varepsilon}} \right), \end{aligned}$$

wobei $\varepsilon = 1 - \sigma_{e,xx}/\sigma_{e,zz}$. Die Gleichungen aus 2.141 können dann in die Selbst-Konsistenz-Bedingung 2.138 eingesetzt werden, um die Gleichungen für $\sigma_{e,xx}$, $\sigma_{e,xy}$ und $\sigma_{e,zz}$ zu erhalten.

Zur Vereinfachung machen Guttal und Stroud die Annahme, dass die Kristallite als Kugeln angenähert werden können und der Radius der Kugeln keine Auswirkungen auf die Transporteigenschaften des Materials hat, solange er im Vergleich zu den Probenabmessungen klein genug ist [11]. Dann kann die Probe durch einen passenden Leitfähigkeitstensor beschrieben werden. Für einen inhomogenen Halbleiter, in dem die beiden Komponenten A und B unmagnetisch sind,

allerdings Ladungsträger von entgegengesetztem Vorzeichen haben, sind in einem magnetischen Feld die Komponenten des Leitfähigkeitstensors für die Komponente A gegeben durch:

$$\boxed{\sigma_{A,xx} = \sigma_{A,yy} = \frac{\sigma_{A,0}}{1 + h^2}}, \quad (2.141)$$

$$\boxed{\sigma_{A,xy} = -\sigma_{A,yx} = \frac{h\sigma_{A,0}}{1 + h^2}, \quad \sigma_{A,zz} = \sigma_{A,0}}. \quad (2.142)$$

Dabei ist $\sigma_{A,0}$ die Leitfähigkeit im Nullfeld und $h = \omega_A \tau_A = \mu_A H/c$ ein magnetisches Feld, das über die Zyklotronfrequenz $\omega_A = q_A H/(m^*c)$, die Relaxationszeit τ_A und die Mobilität der Ladungsträger im Material A $\mu_A = q_A \tau_A/m_A^*$ mit der Ladung q_A und der effektiven Masse m_A^* gegeben ist. Alle anderen Komponenten des Tensors $\hat{\sigma}_A$ sind Null. Analog wird für das Material B definiert:

$$\boxed{\sigma_{B,xx} = \sigma_{B,yy} = \frac{\sigma_{B,0}(k)}{1 + k^2 h^2}}, \quad (2.143)$$

$$\boxed{\sigma_{B,xy} = -\sigma_{B,yx} = \frac{kh\sigma_{B,0}(k)}{1 + k^2 h^2}, \quad \sigma_{B,zz} = \sigma_{B,0}}. \quad (2.144)$$

Damit beschreiben σ_B und σ_A einen Leiter mit freien Ladungsträgern, aber mit einer Mobilität $\mu_B = k\mu_A$.

Abhängig von k können damit zwei Modelle behandelt werden:

- *Modell I:* $\sigma_{B,0}/\sigma_{A,0} = |k|$. Damit haben die beiden Komponenten die gleiche Ladungsträgerdichte, so dass das Verhältnis ihrer Nullfeld-Leitfähigkeiten gleich dem Verhältnis ihrer Mobilitäten ist.
- *Modell II:* In diesem Modell liegen in den Komponenten A und B unterschiedliche Ladungsträgerdichten vor. Damit wird $n_A = |k| n_B$ angenommen und $\sigma_{A,0} = \sigma_{B,0}$, wodurch $\mu_B = k\mu_A$ wird, wie in Modell I.

In einem realen Halbleiter mit positiven und negativen Ladungsträgern sollten sowohl die Ladungsträgerdichten als auch die Beweglichkeiten in den beiden Materialien unabhängig voneinander verändert werden können — also entspricht keines der beiden Modelle der physikalisch vorliegenden Realität. Trotzdem geben die beiden Modelle interessante Eigenschaften eines solchen Materials wieder, mit denen die experimentellen Befunde näherungsweise erklärt werden können.

Die Selbst-Konsistenz-Bedingung 2.138 kann im betrachteten Modell auch als Summe geschrieben werden:

$$\sum_{i=A,B} p_i \delta \sigma_i (\hat{1} - \hat{\Gamma} \delta \sigma_i)^{-1} = 0 \quad (2.145)$$

Die gekoppelten Gleichungen können numerisch gelöst und daraus die interessierenden Matrixelemente des Leitfähigkeits- oder Widerstandstensors berechnet werden.

Guttal und Stroud führten das in [11] durch und berechneten den transversalen MR-Effekt $\Delta\rho_{e,xx}(h)$, definiert durch

$$\Delta\rho_{e,xx}(h) = \frac{\rho_{e,xx}(h) - \rho_{e,xx}(0)}{\rho_{e,xx}(0)}. \quad (2.146)$$

$\rho_{e,ij}(h)$ ist dabei die ij -te Komponente des effektiven Leitfähigkeitstensors $\hat{\rho}_e(h) \equiv [\sigma_e(h)]^{-1}$.

Die zweite interessierende Größe ist ein mit dem Feld skaliertes Hallkoeffizient $R_{H,e}(h)$, definiert durch

$$R_{H,e}(h) = \frac{\rho_{e,xy}(h)}{h}, \quad (2.147)$$

wobei $\rho_{e,xy}$ den Hall-Widerstand angibt. Der longitudinale Magnetowiderstand $\Delta\rho_{e,zz}(h) = [\rho_{e,zz}(h) - \rho_{e,zz}(0)]/\rho_{e,zz}(0)$ ist Null, falls $\sigma_{A,0} = \sigma_{B,0}$, ansonsten klein und positiv, sättigt aber für $\sigma_{A,0} \neq \sigma_{B,0}$.

Die Ergebnisse von Guttal und Stroud für Modell I (gleiche Dichte der Ladungsträger, entgegengesetztes Vorzeichen) sind als Funktion der Magnetfeldstärke h für unterschiedliche Volumenanteile der Inhomogenitäten in Abbildung 2.20 gezeigt. Links wird der MR-Effekt in Abhängigkeit von der Magnetfeldstärke für die Volumenanteile $p_A=0.4$ bis 0.7 gezeigt, die Einfügung zeigt den entsprechenden Hall-Widerstand.

Im Modell I tritt der höchste MR-Effekt also auf, wenn $p_A = p_B$ ist und in allen Fällen (außer für $p_A = 0$) sättigt der MR nicht bei hohen Feldern. Im entsprechenden 2D-Modell [137] hingegen erhält man nur für gleiche Konzentrationen der Komponenten A und B einen nichtsättigenden MR, bei allen anderen Kompositionen sättigt diese Größe bei hohen Feldern.

Betrachtet man sowohl den MR bei einer bestimmten festen Feldstärke als auch den Hall-Widerstand in Abhängigkeit der Komposition des Materials, so stellt man fest, dass der MR mit steigendem p_A zunimmt, ein Maximum bei $p_A = p_B$ durchläuft und dann wieder abfällt, der Hallwiderstand aber genau in dem Punkt des Maximums des MRs Null wird (Abb. 2.20, rechts). Auch für höhere Felder ist das gleiche Verhalten zu beobachten: Der MR wird maximal, wenn $R_{H,e}$ den Nullpunkt durchläuft.

Im Modell II treten das Maximum der Magnetoresistenz sowie der Nulldurchgang des Hallwiderstandes auch bei anderen Volumenverhältnissen auf.

In Abbildung 2.21 werden die Vorhersagen von Modell II bei einer Konzentration von $p_A = 0.7$ für unterschiedliche Werte des Mobilitätsverhältnisses k dargestellt. Der MR nimmt in Abhängigkeit von h immer weiter zu, wenn auch nicht strikt linear, zeigt aber keinerlei Sättigungsverhalten. Die Hallwiderstände entsprechen denen, die für die Majoritätsladungsträger erwartet werden (Abb. 2.21, links).

Die rechte Seite von Abbildung 2.21 zeigt den Hallkoeffizienten sowie den MR bei variierender Konzentration p_A für $k = -5$ und eine konstante Feldstärke. Auch hier nimmt der MR $\Delta\rho_{e,xx}$ sein Maximum genau an der Stelle an, wo der Hallkoeffizient durch den Nullpunkt verläuft, qualitativ übereinstimmend mit den Experimenten von Lee et al. [4].

Doch Guttal und Stroud finden kein präzises lineares MR-Verhalten bei jeder Konzentration p_A , auch wenn der berechnete MR für einige Konzentrationen über einen weiten Bereich linear

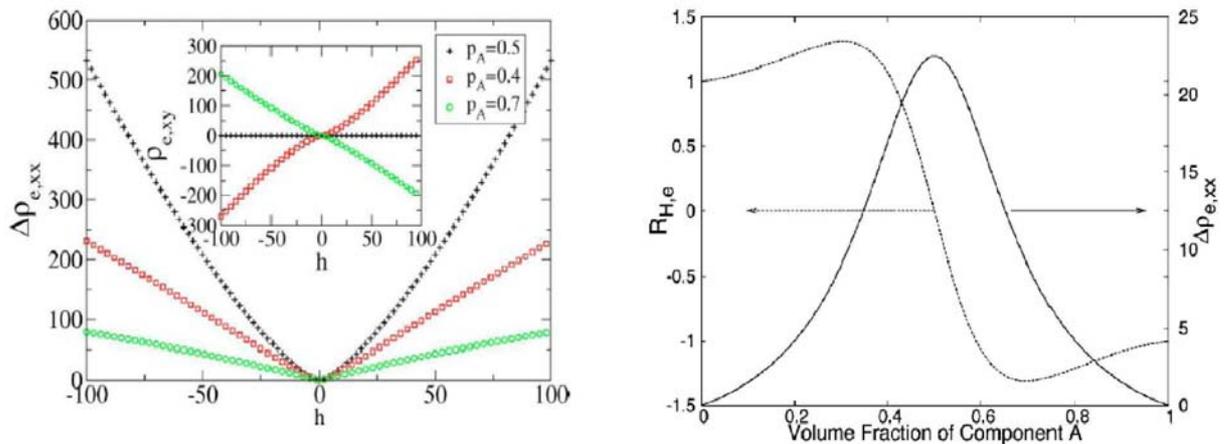


Abbildung 2.20: Magnetowiderstand $\Delta\rho_{e,xx}$ und Hallkonstante R_H gemäß der EMA nach Guttal und Stroud, Modell I. Links: MR $\Delta\rho_{e,xx}$ für unterschiedliche Volumenanteile p der Komponente A sowie im kleinen Fenster die dazugehörige Hall-Komponente $\Delta\rho_{e,xy}$. Rechts: $R_{H,e}$ und $\Delta\rho_{e,xx}$ in Abhängigkeit des Volumenanteils der Komponente A (aus [11]).

zu verlaufen scheint. Das nicht sättigende Verhalten des MR für alle Konzentrationen resultiert aus Stromverwirbelungen im Material aufgrund der Inhomogenität des Zwei-Komponenten-Systems. Beim Einbringen spärlicher (leitender oder nichtleitender) Einschlüsse in das leitende Material ist der Stromfluss rund um den Einschluss stark gestört [141]. Der Magnetowiderstand solcher Einschlüsse ist strikt linear für niedrige Verunreinigungskonzentrationen [133, 141].

Die bisher dargestellten Ergebnisse wurden für inhomogene Halbleiter erzielt, in denen die Ladungsträger der beiden Phasen entgegengesetzte Vorzeichen aufweisen. Aber auch in entsprechenden Berechnungen für Metalle, in denen die EMA für Ladungsträger gleichen Vorzeichens angewandt wurde, erhielt man kein perfekt lineares Verhalten in Abhängigkeit von der Magnetfeldstärke [142, 143, 144, 145].

Die bisherigen Näherungen gelten für sphärisch geformte Einschlüsse, da in diesem Fall der Depolarisationstensor $\hat{\Gamma}$ einfach berechnet werden kann. In vielen Materialien ist aber die Annahme ellipsoider Einschlüsse nur eine sehr grobe Näherung, die bei genauerer Betrachtung nicht mehr korrekt ist.

Magier und Bergmann [14] bestätigten diese Ergebnisse und weiteten die Betrachtungen auf inhomogene Systeme aus, in denen die Hallmobilitäten nicht auf gleiche Beträge mit entgegengesetzten Vorzeichen beschränkt sind. Dabei fanden sie einen bei großen Feldstärken H linearen effektiven Widerstand, der aber auch schon bei mittleren Feldstärken beobachtet werden kann.

Bulgadaev [12, 13] beschäftigte sich mit unterschiedlichen Formen für die in der Matrix eingeschlossenen Inhomogenitäten und berechnete den effektiven Widerstand und den Hall-Widerstand eines stark inhomogenen Systems in einem Magnetfeld anhand dreier unterschiedlicher Modelle für vorliegende inhomogene Strukturen:

- a) zufällige kompakte tropfenförmige Einschlüsse (Tropfenmodell)
- b) zufällig verteilte streifenförmige Einschlüsse („zufälliges Parkett“-Modell)
- c) magnetische Transformation der „klassischen“ EMA

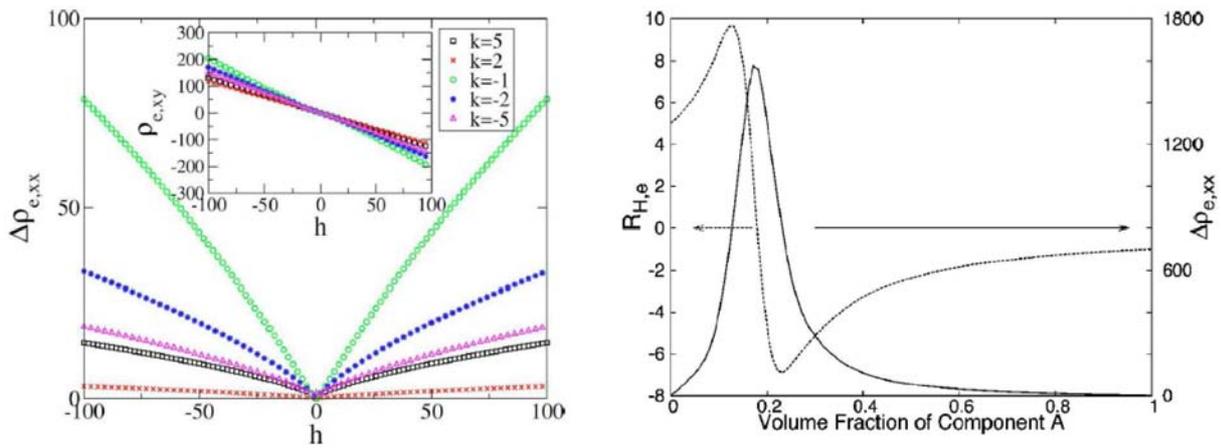


Abbildung 2.21: Magnetowiderstand $\Delta\rho_{e,xx}$ und Hallkonstante R_H gemäß der EMA nach Guttal und Stroud, Modell II. Links: MR $\Delta\rho_{e,xx}$ bei einem Volumenanteil von $p_A = 0.7$ für unterschiedliche Beweglichkeitsverhältnisse k sowie im kleinen Fenster die dazugehörige Hall-Komponente $\Delta\rho_{e,xy}$. Rechts: $R_{H,e}$ und $\Delta\rho_{e,xx}$ in Abhängigkeit des Volumenanteils der Komponente A (aus [11]).

Das MR-Verhalten wurde für beliebige Konzentrationen x und $1 - x$ der beiden vorliegenden Phasen sowie einen weiten Bereich des Leitfähigkeitsverhältnisses $z = \sigma_B/\sigma_A$ ($0 \leq z \leq 1$) und Beweglichkeitsverhältnisses $\eta = \mu_B/\mu_A$ ($-\infty \leq \eta \leq \infty$) berechnet und zeigt die Existenz des LMR in den studierten Modellsystemen.

Die Abbildungen 2.22 und 2.23 zeigen eine Zusammenfassung der Ergebnisse: den Widerstand R für die drei Modellsysteme **a)**, **b)** und **c)** in Abhängigkeit von der Zusammensetzung x des Materials bei konstanter Magnetfeldstärke (Abb. 2.22) sowie den Widerstand bei konstanter Zusammensetzung x in Abhängigkeit von der Magnetfeldstärke (Abb. 2.23).

Im Tropfenmodell erhält man eine symmetrische Verteilung des Magnetowiderstandes mit einem Maximum bei $x \approx 0.37$, das sich bei höheren Feldstärken leicht zu höheren x -Werten verschiebt (Abb. 2.22 a)). Betrachtet man den Widerstand in Abhängigkeit von der Feldstärke bei festen Werten von x , so erkennt man für $x = 0.37$ einen linearen Verlauf in H , für andere Zusammensetzungen entweder leicht abfallende Kurven oder auch lineare Verläufe (Abb. 2.23 a)).

Das Parkett-Modell liefert ein sehr bemerkenswertes Verhalten: Der MR zeigt nahezu konstante Höhe für alle Zusammensetzungen x , bis auf sehr geringe Konzentrationsbereiche nahe an den Kanten $x, 1 - x \ll 1$ (Abb. 2.22 b)). Dementsprechend variiert der MR in Abhängigkeit der Feldstärke für konstante x kaum (Abb. 2.23 b)).

Die Transformation der „klassischen“ EMA zeigt stark asymmetrische, sehr enge und hohe Peaks knapp unterhalb von $x = 1/2$ sowie lange, dünne Ausläufer für $x < 1/2$ (Abb. 2.22 c)). Dementsprechend liefert auch der MR in Abhängigkeit von der Feldstärke sehr unterschiedliches Verhalten für feste x -Werte — in einigen Bereichen sättigt der MR mit zunehmender Feldstärke, bei x in dem engen Bereich um $1/2$ hingegen steigt er steil an (Abb. 2.23 (c)).

Die Ergebnisse zeigen, dass das Verhalten trotz der Unterschiede der drei Modelle und Sättigung in einigen Bereichen von x zwei Gemeinsamkeiten aufweisen (Abb. 2.22 und 2.23):

- Die Absolutwerte des Magnetowiderstandes R sind sehr groß, vor allem bei den Peaks.

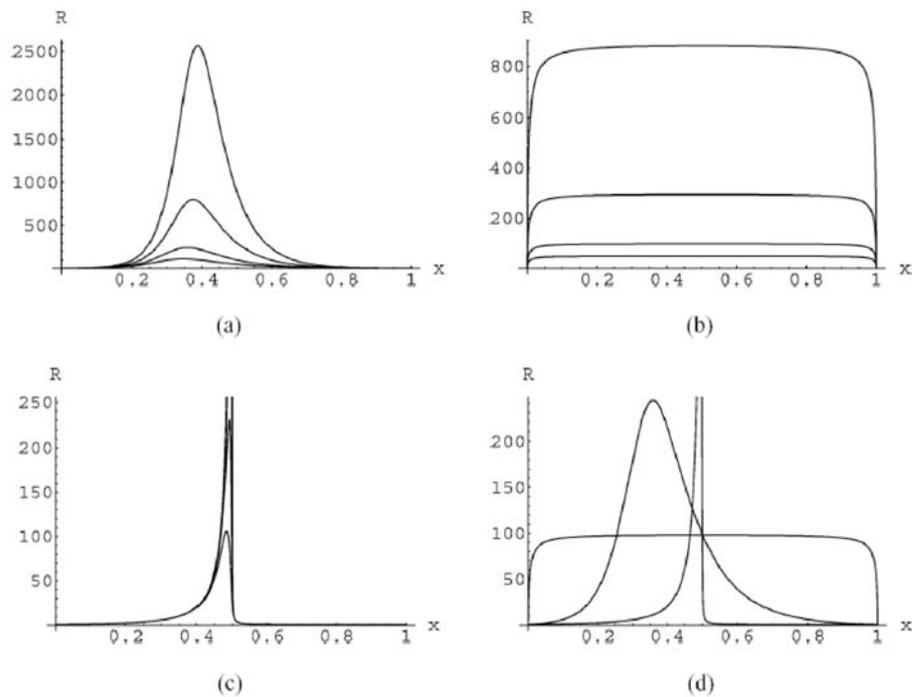


Abbildung 2.22: Magnetowiderstand $R(x, H)$ in Abhängigkeit von der Zusammensetzung des Mediums für drei Inhomogenitätsmodelle: (a): Tropfenmodell, (b): Parkett-Modell, (c): Transformation der EMA. Ergebnisse für ein Verhältnis der Leitfähigkeiten $z = 0.01$ und vier dimensionslose Magnetfeldwerte (50, 100, 300 und 900 in (a) und (b), 25, 50 und 100 in (c)). (d) zeigt einen Vergleich der Ergebnisse von $R(x, H)$ für alle drei Modelle für $H = 100$ (aus [13]).

- **Alle Werte in den Bereichen großen Magnetowiderstandes R wachsen mit steigendem Magnetfeld H bei hohen Feldstärken annähernd linear.**

Die unterschiedlich geformten Einschlüsse haben unterschiedlichen Einfluss auf das MR-Verhalten. Das Tropfenmodell liefert den größten Einfluss, wenn der Volumenanteil des in der Matrix eingeschlossenen Materials in einem Konzentrationsbereich von 30 % bis 50 % liegt. In diesem Bereich wirken die zufällig verteilten leitfähigen Tropfen wie Ladungsträgerfallen, an denen die Ladungsträger lokalisiert werden. Für größere Konzentrationen vergrößern sich die eingeschlossenen Tropfen und können sich über signifikante Entfernungen innerhalb des Materials erstrecken, wodurch sich der Widerstand verringert. Das nahezu lineare Wachstum des Widerstands in Abhängigkeit vom Magnetfeld interpretierte Bulgadaev so, dass das Magnetfeld einen Einschluss der Ladungsträger innerhalb der Körner bewirkt.

Zusammenfassung

Bei der EMA wird die effektive Leitfähigkeit σ_e eines Gesamtsystems, das aus einer inhomogenen Mischung zweier Materialien A und B besteht, aus den Leitfähigkeiten der Einzelkomponenten σ_A und σ_B berechnet [125, 126, 136].

Guttal und Stroud behandeln für sphärisch geformte Einschlüsse des Materials A in einer Matrix B mit den Volumenanteilen p_A und p_B zwei unterschiedliche Fälle des Verhältnisses der Ladungsträgerdichten der Komponenten $n_A = n_B$ [11]:

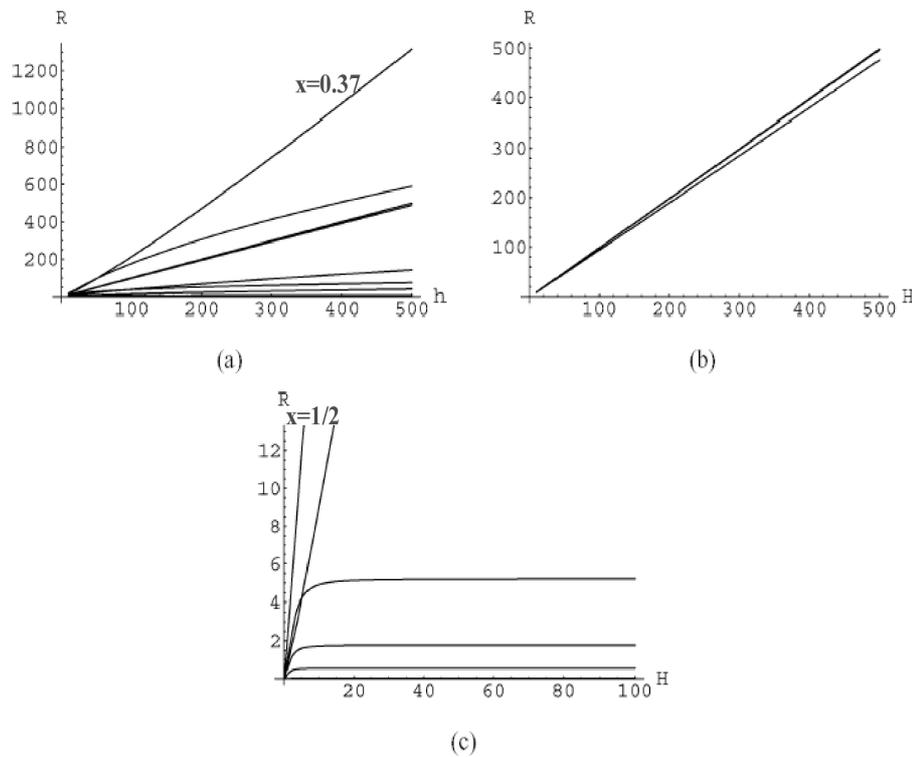


Abbildung 2.23: Magnetowiderstand R als Funktion des Magnetfeldes für die drei Modelle **a)**, **b)** und **c)** bei einem Verhältnis der Leitfähigkeiten $z = 0.01$ und einem Beweglichkeitsverhältnis $\eta = 1$ für einige charakteristische Konzentrationen x (aus [13]).

- $n_A = n_B$:
 - Bei Variation von p_A bzw. p_B erhält man den höchsten MR bei $p_A = p_B$.
 - Der Magnetoresistenz sättigt nicht bei hohen Feldern, es zeigt sich aber auch kein präzises lineares Verhalten, auch wenn die Magnetoresistenz über einen weiten Feldbereich linear ist.
 - Bei konstanter Feldstärke steigt der MR mit steigendem Volumenanteil p_A , bis das Maximum bei $p_A = p_B$ erreicht ist, dann sinkt der MR wieder. Gleichzeitig zeigt der Hallwiderstand R_H bei der Konzentration, bei der das Maximum des MR auftritt, einen Nulldurchgang.

- $n_A = |k| n_B, -5 < k < 5$:
 - Das Maximum des MR und der Nulldurchgang des Hallwiderstandes treten bei anderen Volumenverhältnissen als $p_A = p_B$ auf.
 - Der Magnetowiderstand steigt mit steigender Feldstärke, wenn auch wieder nicht strikt linear, zeigt aber auch hier keine Sättigung.

Bulgadaev berechnet den MR für drei verschiedene geometrische Formen der eingeschlossenen Strukturen: Tropfenmodell, „zufälliges Parkett“-Modell und magnetische Transformation der „klassischen“ EMA [12, 13]. Er erhält folgende Ergebnisse:

- Der Magnetowiderstand ist stark geometrieabhängig: Bei den drei Modellen zeigt sich in Abhängigkeit von der Zusammensetzung x komplett unterschiedliches Verhalten.
- Die Absolutwerte der Magnetoresistenz sind sehr groß, vor allem bei den Maxima des Widerstandes in Abhängigkeit von der Zusammensetzung.
- Alle Werte in den Bereichen großen Magnetowiderstandes wachsen mit steigendem Magnetfeld bei hohen Feldstärken annähernd linear.

2.4.8 Erklärungsversuch des LMR anhand der Theorie von Parish und Littlewood

Ein alternativer Ansatz zur Behandlung des LMR wurde von Parish und Littlewood [15, 16] vorgestellt (**PL-Modell**), die einen stark inhomogenen Leiter als zweidimensionales Widerstandnetzwerk modellierten, das sie numerisch untersuchten. Damit können der Magnetowiderstand und der Hall-Effekt beschrieben werden und führen zu dem Ergebnis, dass eine inhomogene Verteilung der Mobilität der Ladungsträger generell zu einem transversalen LMR führt. Zusätzlich wurde gezeigt, dass das Übergangsfeld B_c , bei dem der Übergang vom quadratischen zum linearen Verhalten stattfindet, von der Variation der Mobilität, d.h. der Mikrostruktur abhängt. Grundbedingung zur Anwendung dieses klassischen Ansatzes ist, dass die mittlere freie Weglänge der Ladungsträger viel kleiner ist als die typische Längenskala der Verunreinigungen, so dass das Ohm'sche Gesetz im Raum lokal gilt,

$$\vec{E}(\vec{r}) = \hat{\rho}(\vec{r})\vec{j}(\vec{r}), \tag{2.148}$$

wobei \vec{j} die Stromdichte, \vec{E} das elektrische Feld und $\hat{\rho}$ der Widerstandstensor ist.

Im Falle eines einfachen Leiters mit einer einzigen Ladungsträgerart und isotropen Inhomogenitäten nimmt der Widerstandstensor in einem Magnetfeld H folgende Form an:

$$\hat{\rho} = \rho_0 \begin{pmatrix} 1 & \beta & 0 \\ -\beta & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \tag{2.149}$$

Dieser Tensor ist durch ρ_0 und über $\beta \equiv \mu H$ auch durch die Ladungsträgermobilität μ bestimmt. Der effektive Widerstand ρ_{eff} in inhomogenen Leitern ist definiert durch $\langle \vec{E} \rangle_v = \rho_{\text{eff}} \langle \vec{j} \rangle_v$, wobei $\langle \dots \rangle_v$ eine Mittelung über das Volumen v bedeutet. Wenn ein geordnetes System vorliegt, ist der Magnetowiderstand $\Delta R/R \equiv [\rho_{\text{eff}}(H) - \rho_{\text{eff}}(0)]/\rho_{\text{eff}}(0)$ Null bei beliebigen Magnetfeldorientierungen. Im Allgemeinen hängt der Magnetowiderstand von der Orientierung des Magnetfeldes in Bezug zur Stromrichtung ab, d.h. von transversaler ($B \perp I$) oder longitudinaler ($B \parallel I$) Ausrichtung dieser beiden Größen. Weiterhin muss jeder transversale MR aufgrund der Rotationssymmetrie um die Stromachse eine gerade Funktion des Feldes sein. Damit ist $\Delta R/R \propto H^2$ im Grenzfalle niedriger Felder, der durch $\beta \ll 1$ definiert ist. Der Übergang vom Grenzfalle niedriger Felder zu dem hoher Felder ist in ungeordneten Systemen nicht immer offensichtlich.

Das einfachste Widerstandsmodell, mit dem auch der Hall-Widerstand beschrieben werden kann, ist ein zweidimensionales quadratisches Gitter, das aus leitfähigen Scheiben mit jeweils vier Anschlüssen aufgebaut ist.

Damit kann der transversale MR simuliert werden, während für die Simulation des longitudinalen MR ein dreidimensionales Modell nötig ist. Ein entsprechendes Modell wurde von Sarychev et al. [143] für perkolierendes Material in einem magnetischen Feld berechnet, doch wurden die einzelnen Elemente mit einem bestimmten, festen Widerstand belegt, während in dem Modell von Parish und Littelwood jedem Element ein beliebiger Wert zugewiesen werden kann.

Prinzipiell kann die Form der Netzwerkseinheit beliebig sein, doch zur Vereinfachung wird eine homogene runde Scheibe mit vier Stromanschlüssen sowie vier Spannungsdifferenzen zwischen den Anschlüssen benutzt (Abb. 2.24).

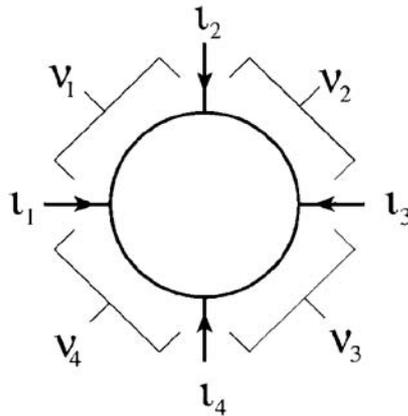


Abbildung 2.24: Grundlegendes Netzwerkelement des Modells von Parish und Littlewood (aus [16]).

Diese Ströme i und Spannungen v stehen über eine 4×4 -Matrix \hat{z} miteinander in Verbindung:

$$v_i = z_{ij} i_j \tag{2.150}$$

Die Koeffizienten z_{ij} können durch Lösen der Laplace-Gleichung für das elektrische Potential einer homogenen, leitfähigen Scheibe bestimmt werden, wobei die Ströme als Randbedingungen benutzt werden. Diese Formulierung setzt aber implizit voraus, dass eine gleichförmige Einspeisung des Stroms in alle Anschlüsse bei allen magnetischen Feldstärken stattfindet. In der Praxis wird der Stromfluss an einer Grenze zwischen unterschiedlichen Leitern durch ein Magnetfeld gestört, was allerdings bei diesem Modell vorerst vernachlässigt wird.

Unter der Annahme, dass die Anschlüsse gleich weit voneinander entfernt sind und die Winkelweite φ konstant gehalten wird, hat die Widerstands-Impedanz-Matrix folgende Form:

$$\hat{z} = \frac{\rho}{\pi t} \begin{pmatrix} a & b & c & d \\ d & a & b & c \\ c & d & a & b \\ b & c & d & a \end{pmatrix}. \tag{2.151}$$

Hierbei ist ρ der skalare Widerstand und t die Dicke der Scheibe. Die Matrixelemente a , b , c und d hängen von φ und β ab:

- $a = -g(\varphi) + (\pi/4)\beta$
- $b = g(\varphi) + (\pi/4)\beta$

- $c = 0.35 - (\pi/4)\beta$
- $d = -0.35 - (\pi/4)\beta$

Im Grenzfall $\varphi \rightarrow 0$ gilt $g(\varphi) \rightarrow \infty$, so dass der Widerstand der Scheibe wie erwartet divergiert. Die Impedanz-Matrix z jedes Widerstandes hängt nur von der Mobilität μ und der Größe $s = \rho/(\pi t)$ ab. Durch die zyklische Permutation der Matricelemente kann jeder n -anschlüssige Widerstand, der unter Rotation von $2\pi/n$ dreihinvariant ist, behandelt werden. Als Randbedingung gilt $\sum_i v_i = 0$, so dass $a + b + c + d = 0$ gelten muss.

Aus diesen Einzelbausteinen wird ein $N \times M$ Widerstands-Netzwerk aufgebaut (Abb. 2.25), indem die Einzelwiderstände miteinander verbunden und dann μ und s für jeden Widerstand variiert werden. Positive Ladungsträger können dabei durch eine positive Beweglichkeit, negative durch ein negatives μ dargestellt werden. Im Hinblick auf reale Materialien kann das Netzwerk beispielsweise als Modell für ein Array aus Silberionen-Clustern und Leerstellen innerhalb des Halbleiters interpretiert werden.

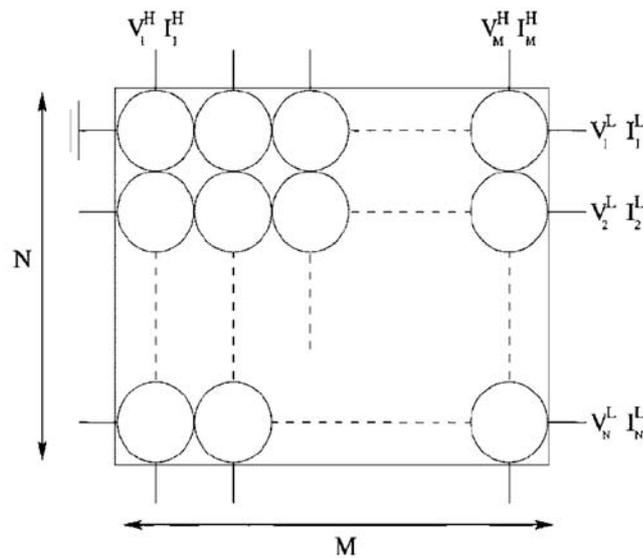


Abbildung 2.25: $N \times M$ -Netzwerkmodell von Parish und Littlewood (aus [16]).

Nun kann eine Netzwerk-Impedanz-Matrix Z definiert werden, so dass die angelegten Spannungen $V_i = Z_{ij}I_j$ sind, wobei I dem eingespeisten Strom entspricht. Die Impedanz-Matrix ist dadurch bestimmt, dass ein Anschluss geerdet wird, um einen Bezugspunkt für alle Spannungen zu erzeugen. Nun können über das Kirchhoff'sche Gesetz alle Ströme am geerdeten Anschluss sowie innerhalb des Netzwerks eliminiert werden. Die Spannungen und Ströme werden hierzu in $2N - 1$ longitudinale Komponenten V_i^L, I_i^L und $2M$ Hall-Komponenten V_i^H, I_i^H eingeteilt, so dass die $(2M + 2N - 1) \times (2M + 2N - 1)$ -Impedanz-Matrix \hat{Z} dann folgendermaßen geschrieben werden kann:

$$\hat{Z} = \begin{pmatrix} Z^{HH} & Z^{HL} \\ Z^{LH} & Z^{LL} \end{pmatrix} \tag{2.152}$$

Um den Magnetowiderstand eines $N \times M$ -Netzwerks zu bestimmen, wird $I_i^H = 0$ gesetzt und die komplette linke Seite der longitudinalen Spannungen aus Abbildung 2.25 geerdet, während die rechte Seite auf ein konstantes Potential U gesetzt wird. Der Widerstand des Netzwerks $R_{NM}(H)$ ist dann gegeben durch:

$$R_{NM}(H) = \frac{U}{\sum_i^N I_i^L} = \frac{U}{\sum_i^N (Z^{LL})_{ij}^{-1} V_j^L}, \tag{2.153}$$

wobei die Summe über die Ströme entlang der ungeerdeten (rechten) Kante berechnet wird. Analog dazu können die Hall-Spannungen durch

$$V^H = Z^{HL}(Z^{LL})^{-1}V^L \tag{2.154}$$

gegeben werden. Wenn das Verhältnis N/M konstant gehalten wird und der Grenzfall $N \rightarrow \infty$ betrachtet wird, liefert das Widerstandsnetzwerk das galvanomagnetische Verhalten eines realen Materials. Gleichung 2.153 ist analytisch für große Netzwerke schwer zu lösen und in der Praxis benutzten Parish und Littlewood die Kirchhoffschen Gesetze, um numerische Lösungen für die Ströme und Spannungen im Netzwerk zu erhalten. Aber schon allein eine Analyse der Symmetrie von \hat{Z} liefert viele Ergebnisse, die das Verhalten der Silberchalkogenide widerspiegeln.

Kleine Netzwerke und Netzwerksymmetrien

Um die grundlegenden Eigenschaften dieser Netzwerke zu erläutern, betrachten wir zunächst kleine Netzwerke mit den Abmessungen $1 \times M$ und $N \times 1$. Das einfachste Netzwerk ist ein einzelner Widerstand (Abb. 2.26 (a)) und zeigt wie erwartet eine Magnetoresistenz von $\Delta R/R = 0$, da die Scheibe als konventioneller Leiter ohne intrinsischen MR angesetzt ist.

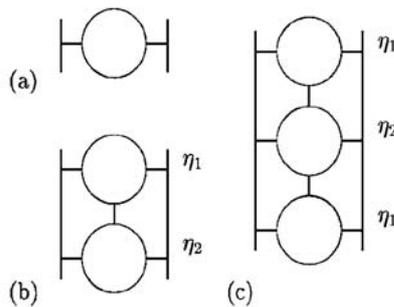


Abbildung 2.26: Beispiele kleiner Netzwerke (aus [16]).

Weiterhin gilt das Verhalten der Einzelscheibe generell für $1 \times M$ -Netzwerke, die äquivalent zu Ketten von Widerständen mit zwei Anschlüssen sind. $N \times 1$ -Netzwerke hingegen zeigen nicht-triviales Verhalten, da sie eine Vielzahl von Strompfaden innerhalb des Netzwerks erlauben, wenn $N > 1$ ist. Ein 2×1 -Netzwerk von identischen Widerständen ($\eta_1 = \eta_2$ in Abb. 2.26 (b)) liefert $\Delta R/R \propto \beta^2$ während bei einem 3×1 -Netzwerk ein MR entsteht, der für $\beta \gg 1$ sättigt. Als allgemeines Ergebnis für gleichförmige $N \times 1$ -Netzwerke erhielten Parish und Littlewood einen nicht-sättigenden Magnetowiderstand für Netzwerke mit geradem N , während Netzwerke mit

ungeradem N eine sättigende Magnetoresistenz zeigen, wobei die Sättigungsgrenze $\Delta R(\infty)/R$ mit N^2 skaliert (siehe Abb. 2.27). Die Unterschiede für Netzwerke mit geradzahligem und ungeradzahligem N verringern sich mit steigendem N , wobei der MR für N und $N + 1$ für geringe β auf der gleichen Kurve liegen.

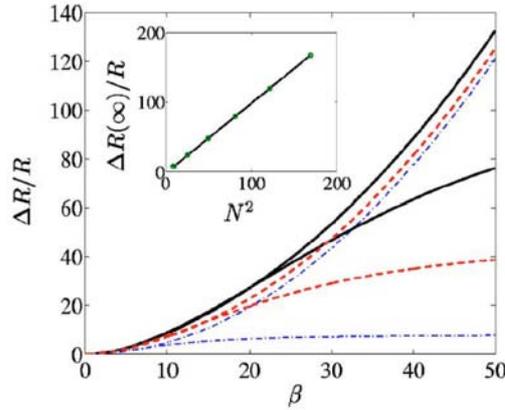


Abbildung 2.27: Magnetowiderstand $\Delta R/R$ für $N \times 1$ -Netzwerke mit geradem und ungeradem N . Die sättigenden Kurven entsprechen $N = 3, 7, 11$ mit steigender MR-Größe. Die nicht-sättigenden Kurven entsprechen $N = 2, 6, 10$, ebenfalls mit steigender MR-Größe. Für ungerade N ist der Sättigungswert $\Delta R(\infty)/R \simeq N^2$ (aus [16]).

In einem 2×1 -Netzwerk mit zwei unterschiedlichen Widerstandsarten $s_1\mu_1 \neq s_2\mu_2$ sättigt der MR, wobei der Sättigungswert von $(s_1\mu_1 - s_2\mu_2)$ abhängt. Hingegen liefert eine Einstellung von $\mu_1 \neq \mu_2$ und $s_1\mu_1 = s_2\mu_2$ immer einen nicht-sättigenden Magnetowiderstand. Ein 3×1 -Netzwerk (wie in Abb. 2.26 (c)) liefert immer einen sättigenden MR, außer für den Fall dass $s_1\mu_1 = 2s_2\mu_2$. Ähnliche Ergebnisse erhält man für Netzwerke mit größerem N .

Die Bedeutung dieser Symmetrien kann man anhand der Impedanz-Matrix \hat{Z} verstehen. Diese hat die generelle Form:

$$\hat{Z} = \hat{S} + \beta\hat{A}, \tag{2.155}$$

wobei \hat{S} und \hat{A} symmetrische bzw. antisymmetrische Matrizen sind. Für Widerstandsketten, auch für den Fall nur eines einzigen Widerstandes, sind \hat{S} und \hat{A} immer unabhängig von β , aber im allgemeinen sind sie nur in den Grenzfällen $\beta \rightarrow 0$ und $\beta \rightarrow \infty$ konstant.

\hat{Z} selbst muss aufgrund von Energiebetrachtungen im Nullfeld eine symmetrische Matrix sein. Die relevante Quantität, mit der die Magnetoresistenz berechnet werden kann, ist die $(2N - 1) \times (2N - 1)$ -Matrix Z^{LL} , ebenfalls von der Form $Z^{LL} = S^{LL} + \beta A^{LL}$. Nun wird $Z^{LL} = \beta Z_\beta$, so dass $Z_\beta \rightarrow A^{LL}$ für $\beta \rightarrow \infty$. Darüber hinaus ist A^{LL} eine ungerade antisymmetrische Matrix für alle N , so dass Z_β mindestens einen Eigenwert besitzt, der bei hohen Feldern Null wird.

Damit kann die Summe der eingespeisten Ströme entlang der rechten Kante geschrieben werden als

$$\sum_i^N I_i^L = \frac{1}{\beta} \sum_i^N \sum_n^{2N-1} \frac{w_{n,i} w_{n,j}^T}{\lambda_n} V_j^L, \tag{2.156}$$

wobei w_n und λ_n der n -te Eigenvektor und Eigenwert von Z_β sind. Da β im Nenner ist, verschwinden bei hohen Feldern alle Terme, außer denen, die zu den Eigenwerten gehören, die gegen Null gehen. Deren Verhalten bestimmt, ob der MR sättigend oder nicht-sättigend ist. Wenn nur ein Eigenwert λ_0 im Grenzwert hoher Felder Null wird, erhält man

$$\sum_i^N I_i^L \simeq \frac{U}{\beta\lambda_0} \left(\sum_i^N w_{0,i} \right)^2 + O\left(\frac{1}{\beta}\right), \tag{2.157}$$

wobei $O(1/\beta)$ weitere Funktionen höherer Ordnung in $(1/\beta)$ bezeichnet, die vernachlässigbar werden. Das Verhalten von λ_0 ist bestimmt durch S^{LL}/β , so dass $\lambda_0 \propto 1/\beta$, wenn $\beta \gg 1$. Daher kürzen sich λ_0 und β weg und der Magnetowiderstand ist nur dann nicht sättigend, wenn $\sum_i^N w_{0,i} \rightarrow 0$ geht bei hohen Feldstärken. Das erklärt, warum bestimmte Konfigurationen in Netzwerken mit geringem N einen nicht-sättigenden MR liefern. In den Fällen, in denen der Magnetowiderstand sättigt, dominiert λ_0 den elektrischen Transport und $I_i^L \rightarrow w_{0,i}$. Noch allgemeiner gesehen wird $\sum_i^N w_{0,i}$ die genaue Abhängigkeit von $R_{NN}(H)$ vom Feld bestimmen, wenn $\beta \rightarrow \infty$.

Zur Veranschaulichung betrachten Parish und Littlewood den einfachen Fall, in dem

$$A^{LL} = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}. \tag{2.158}$$

Der nullte Eigenwert hat den (normalisierten) Eigenvektor $w_{0,i} = (-1)^i/\sqrt{2N-1}$ und im Grenzfalle hoher Felder erhält man

$$\sum_i^N I_i^L \propto \frac{U}{2N-1} \left[\left(\sum_i^N (-1)^i \right)^2 + \delta(\beta, N) \right], \tag{2.159}$$

wobei $\delta(\beta, N)$ ein Korrektur-Faktor für endliche Felder ist, der mit $\beta \rightarrow \infty$ verschwindet. Damit erhält man für den Widerstand in hohen Feldern:

$$R_{NN}(H) \propto \begin{cases} 2N-1 & \text{für ungerade } N \\ \frac{2N-1}{\delta(\beta, N)} & \text{für gerade } N \end{cases} \tag{2.160}$$

Der Magnetowiderstand ist nicht sättigend für Netzwerke mit geradem N und sättigend für Netzwerke ungerader N . Da Gleichung 2.160 unabhängig von M ist, wird erwartet, dass sie für alle Netzwerke mit gleichen Widerständen gültig ist.

Im Falle großer, beliebiger Netzwerke ist die Situation allerdings komplizierter, da hier im Allgemeinen eine Verteilung von Eigenwerten vorliegt, die bei hohen Feldern Null werden.

Große Netzwerke

In [16] behandeln Parish und Littlewood beim Übergang zu großen Netzwerken der Einfachheit halber quadratische $N \times N$ -Netze, da deren Nullfeld-Widerstand endlich bleibt, wenn $N \rightarrow \infty$ und sie numerisch einfacher zu behandeln sind als nicht-quadratische Netze.

Der einfachste Fall liegt vor, wenn alle Widerstände identisch sind. Dann ist der Nullfeld-Widerstand konstant, während die Systemgröße erhöht wird. In Übereinstimmung mit Gleichung 2.160 zeigen Netzwerke mit ungeradzahligem N einen sättigenden Magnetowiderstand, während er bei solchen mit geradem N nicht in die Sättigung geht (Abb. 2.28). Der Hauptunterschied ist, dass sich die $\Delta R/R$ -Kurven für $\beta > 1$ einer Geraden nähern, während $N \rightarrow \infty$ geht, das Niedrig-Feld-Verhalten ($\beta < 1$) sich aber nicht ändert. Dieses nicht sättigende, lineare Verhalten entspricht genau dem, das bei den Silberchalkogeniden beobachtet wird.

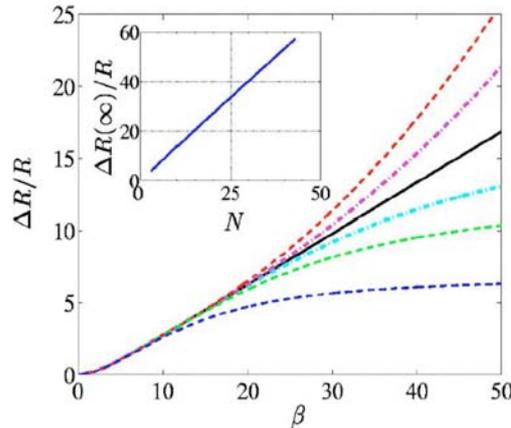


Abbildung 2.28: Magnetowiderstand $\Delta R/R$ für $N \times N$ -Netzwerke gleichartiger Widerstände. Die sättigenden gepunkteten Kurven entsprechen $N = 5, 9, 13$ mit steigender MR-Größe, die verbleibenden gepunkteten Kurven entsprechen $N = 10, 14$ mit sinkender MR-Größe. Die durchgezogene Kurve zeigt die Gerade $\Delta R/R \simeq 0.35\beta$, welcher sich die Kurven nähern, wenn $1 < \beta < 2N$. Für ungerade N ist der Sättigungswert $\Delta R(\infty)/R \simeq 1.4N$ (aus [16]).

Um real existierende inhomogene Leiter nachzubilden, werden den einzelnen Widerständen des Netzwerkes unterschiedliche Beweglichkeiten zugewiesen. Parish und Littlewood benutzen in ihrer Arbeit eine Gaussverteilung für die Beweglichkeit μ mit einer Breite von $\Delta\mu$. Eine numerische Berechnung dieser zufälligen $N \times N$ -Netzwerke führt zu einem positiven Magnetowiderstand, der für kleine N von der vorliegenden Konfiguration der Netzwerkes abhängt und für hohe magnetische Felder H einen weiten Bereich an Verhaltensmustern zeigt. Mit steigendem N verringert sich die Bandbreite der Verhaltensmuster und die Verteilung wird für große N gleichmäßig. Daher sollte der Magnetowiderstand eines unendlichen Netzwerkes durch den mittleren Magnetowiderstand eines endlichen Netzwerkes gegeben werden.

Abbildung 2.29 zeigt die wichtigsten Ergebnisse von Parish und Littlewood für ein Netzwerk aus 20×20 beliebigen Widerständen: Die mittlere Widerstandsänderung $\Delta R/R$ ist linear abhängig vom Magnetfeld und wird überdies stark von der Beweglichkeit μ beeinflusst, ist allerdings unabhängig von dem Verhältnis aus spezifischem Widerstand und Scheibendicke $s = \rho/(\pi t)$.

Diese lineare Abhängigkeit interpretierten Parish und Littlewood so, dass ein Strom in einem stark ungeordneten Medium bei hohen Feldern dazu gezwungen wird, die meiste Zeit senkrecht zum angelegten Feld zu fließen, so dass der Hall-Widerstand $\rho_{xy} \propto H$ zu dem effektiven Magnetowiderstand beiträgt. Der Charakter der Leitfähigkeitsverteilung bestimmt die Stärke des relativen Magnetowiderstands, da bei hohen Feldern $\Delta R/R \propto \langle \mu \rangle$ wird, wenn $\Delta\mu/\langle \mu \rangle < 1$ und $\Delta R/R \propto \langle \Delta\mu \rangle$ für $\Delta\mu/\langle \mu \rangle > 1$, wobei die Proportionalitätskonstanten von den genauen Details

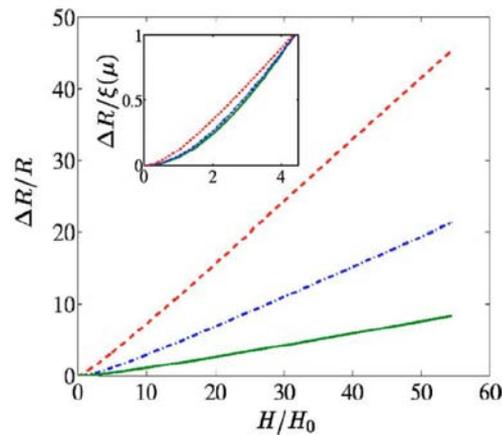


Abbildung 2.29: Mittlerer Magnetowiderstand $\Delta R/R$ als Funktion eines dimensionslosen Magnetfeldes H/H_0 für 20×20 -Netzwerke mit 3 unterschiedlichen Mobilitätsverteilungen (typische Feldskala: $H_0 = 1$ kOe). Mit zunehmender Größe entsprechen die Kurven folgenden Einstellungen: (i) $\langle \mu \rangle = 0.1H_0^{-1}$, $\Delta\mu = H_0^{-1}$; (ii) $\langle \mu \rangle = H_0^{-1}$, $\Delta\mu = 0$; (iii) $\langle \mu \rangle = 0$, $\Delta\mu = 5H_0^{-1}$. Durch Normierung der Kurven auf den maximalen erhaltenen MR-Wert erkennt man, dass die Linearität sich zu niedrigeren Feldstärken verschiebt, wenn die Beweglichkeitsverteilung groß ist ($\Delta\mu \gg H_0^{-1}$). (aus [16]).

der Verteilung abhängen. Daher erwartet man einen sich mit der Temperatur vermindern MR in einem inhomogenen Halbleiter, da dies einer Verringerung von μ aufgrund steigender Phononenstreuung entspricht

Der Übergang von linearem zu quadratischem Verhalten tritt bei Feldern $\langle \mu \rangle^{-1}$ auf wenn $\Delta\mu/\langle \mu \rangle < 1$ und bei $(\Delta\mu)^{-1}$ wenn $\Delta\mu/\langle \mu \rangle > 1$ ist. Also auch wenn das charakteristische Feld $\langle \mu \rangle^{-1}$ in der Größenordnung von 1 T ist, kann das gemessene Übergangsfeld eines ungeordneten Halbleiters einige Größenordnungen kleiner sein, wenn $\Delta\mu$ groß ist. Das wäre eine mögliche Erklärung dafür, dass das lineare Verhalten des MRs bei Silberchalkogeniden auch bei so geringen Feldern wie 1 mT beobachtet werden kann.

Randeffekte

Im Falle eines gleichförmigen Netzwerkes ist der auftretende Magnetowiderstand eigentlich nicht logisch: Ein einzelner Widerstand bewirkt keinen Magnetowiderstand und durch die Translationssymmetrie ist die Stromstärke, die oben in den Widerstand eingespeist wird, gleich der Stromstärke, die den Widerstand unten wieder verlässt. Durch die Annahme, dass der Stromfluss senkrecht zur angelegten Spannung Null ist, wie von den Randbedingungen vorgegeben, wird der Magnetowiderstand des gleichförmigen Netzwerkes äquivalent zu dem eines einzelnen Widerstandes, daher sollte im gleichförmigen Netzwerk der MR Null sein.

Die Lösung dieses Widerspruchs liegt in den Randeffekten, die durch die Annahme perfekt leitender Elektroden zur Einspeisung des Stroms bzw. zum Anlegen der Spannung entstehen. Wenn ein magnetisches Feld H senkrecht zur Probenebene angelegt wird, befolgt der klassische elektrische Transport in homogenen Medien das Ohm'sche Gesetz. Das elektrische Feld E_y , das parallel zur Probenebene steht, muss über die Grenze zur Elektrode hin stetig sein, um den Maxwell-Gleichungen zu genügen. Da das elektrische Feld innerhalb eines idealen Leiters aber Null ist, muss $E_y = 0$ sein und daher senkrecht zu der perfekt leitenden Oberfläche stehen.

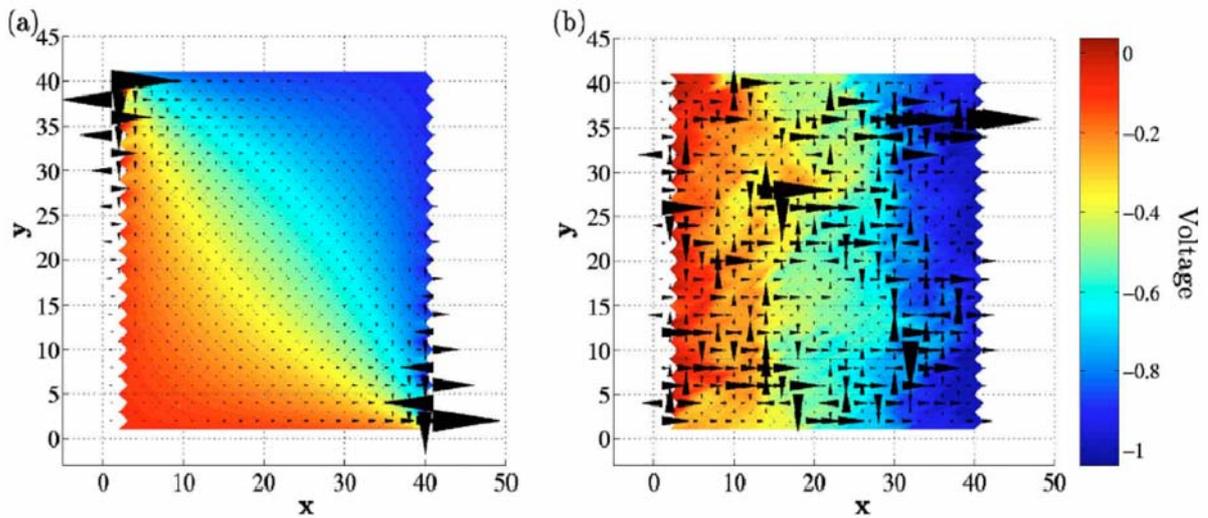


Abbildung 2.30: Visualisierung von Stromfluss und Spannung in einem 20×20 -Netzwerk bei (a): gleichen Widerständen, (b) beliebigen Widerständen (aus [16]).

Dadurch wird der Strom die perfekt leitenden Elektroden unter einem Winkel $\theta = \arctan(\beta)$ verlassen bzw. in sie eintreten. Bei starken Magnetfeldern ist $\beta \gg 1$ und der Strom nahezu 90° gegenüber dem elektrischen Feld verdreht, so dass der effektive Widerstand des Materials in der Nähe der Elektroden zu

$$\rho_{eff} \simeq \left| \frac{E_x}{j_y} \right| \simeq \rho_1 \beta . \tag{2.161}$$

Das erklärt den linearen MR des unendlich großen gleichförmigen Netzwerks. Im allgemeinen werden Ströme an einer Grenzfläche senkrecht zur x - y -Ebene gestört, wenn eine Fehlanpassung des elektrischen Hall-Felds E_y auftreten würde, falls $j_y = 0$ ist.

In Abbildung 2.30 werden die Ströme und Spannungen in einem 20×20 -Netzwerk graphisch dargestellt und man erkennt die Beeinflussung des Stromflusses durch das angelegte Magnetfeld.

Die bisherigen Betrachtungen bezogen sich allerdings alle auf ein zweidimensionales System, mit dem man den transversalen MR erklären kann. Die Modellierung und theoretische Erklärung des longitudinalen Magnetowiderstandes ist damit nicht möglich.

Zusammenfassend kann man festhalten, dass dieses Modell zu einer mittleren Widerstandsänderung führt, die linear vom äußeren Feld abhängt und stark von der Beweglichkeit der Ladungsträger beeinflusst wird.

2.4.9 Erklärungsversuch des LMR als Spezialfall des Außergewöhnlichen Magnetoresistiven Effekts (EMR)

Eine zu den Widerstandseinheiten des PL-Modells [15, 16] ähnliche Struktur wurde von der Arbeitsgruppe um Solin untersucht [17, 18, 147, 148]. In einer symmetrischen van-der-Pauw-Platte aus homogenem nichtmagnetischem Indiumantimonid (InSb) wurde eine konzentrische Goldscheibe eingeschlossen und der Hall-Widerstand sowie der MR der Struktur gemessen.

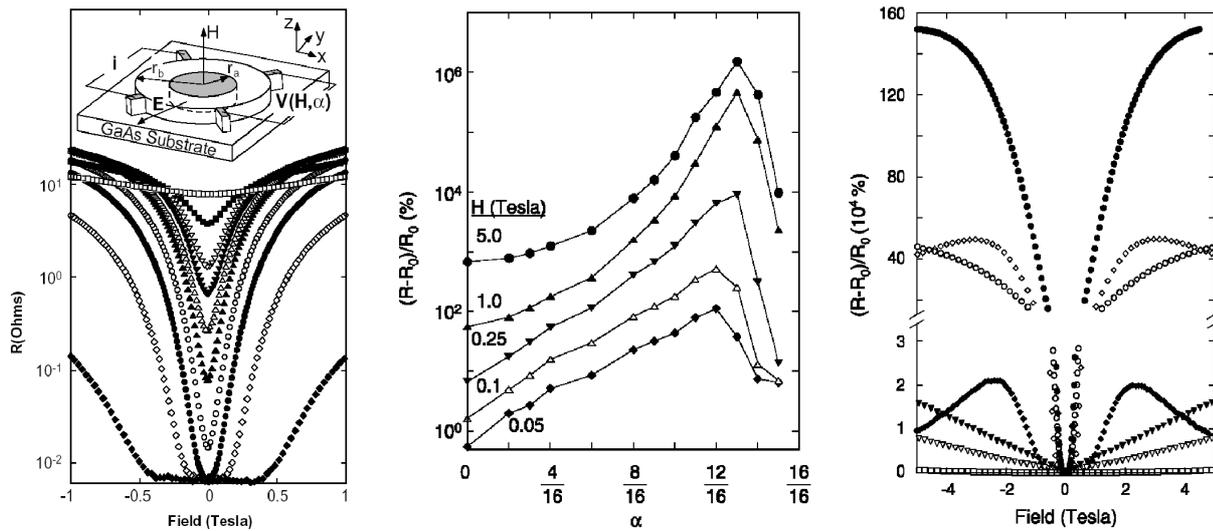


Abbildung 2.31: Modell des geometrischen magnetoresistiven Effekts von Solin et al. [17]. Links: Schaltbild der van-der-Pauw-Scheibe (oben) und Widerstand einer van-der-Pauw-Scheibe bei Raumtemperatur für verschiedene Werte von α (unten). Die Symbole entsprechen $\square \equiv \alpha = 0$; $\blacksquare \equiv \alpha = 6/16$; $\nabla \equiv \alpha = 8/16$; $\blacktriangledown \equiv \alpha = 9/16$; $\triangle \equiv \alpha = 10/16$; $\blacktriangle \equiv \alpha = 11/16$; $\circ \equiv \alpha = 12/16$; $\bullet \equiv \alpha = 13/16$; $\diamond \equiv \alpha = 14/16$; $\blacklozenge \equiv \alpha = 15/16$. Mitte: MR bei Raumtemperatur als Funktion des Füllfaktors α für verschiedene Flussdichten. Rechts: MR bei Raumtemperatur, die Symbole entsprechen denen der linken Abbildung.

Die Leitfähigkeit der Goldscheibe mit Radius r_a wird mit σ_0 bezeichnet, während dem Halbleiter (Radius r_b) eine Leitfähigkeit von $\sigma \ll \sigma_0$ zugewiesen wird (Abb. 2.31, links oben).

Definiert man nun einen Füllfaktor von $\alpha = r_a/r_b$ und das Leitfähigkeitsverhältnis $s = \sigma_0/\sigma$, erhält man bei Nullfeld einen mit steigendem α monoton fallenden Widerstandswert, da mit steigender Größe der Goldinhomogenität die Leitfähigkeit der gesamten Struktur steigt. Da die Leitfähigkeit von Gold endlich ist, sättigt der Widerstand bei $\alpha > \approx 13/16$. Im Sättigungsbereich von α ist der Widerstand in Abhängigkeit von einem äußeren angelegten Feld bis zu einem kritischen Feld konstant, steigt ab diesem kritischen Punkt allerdings sehr stark mit der Feldstärke an (Abb. 2.31, links).

Betrachtet man bei konstantem Magnetfeld die Abhängigkeit des MR vom Füllfaktor α , so erkennt man, dass der MR bis zu einem bestimmten Wert ($\alpha \approx 12/16$) ansteigt, dann wieder steil abfällt (Abb. 2.31, Mitte). Weiterhin entwickelt sich der MR von einem quadratischen zu einem quasi-linearen Verhalten bis zu $\alpha = 13/16$. Für Feldstärken über 2 T beobachtet man entweder eine Sättigung oder (bei $\alpha = 14/16$ und $\alpha = 15/16$) ein Maximum (Abb. 2.31, rechts). Das Bemerkenswerteste aber ist die Größe des Magnetoresistiven Effekts: für $\alpha = 13/16$ erhält man einen Wert von 9100 % bei einer Feldstärke von 0.25 T und 750000 % bei 4 T bei Raumtemperatur.

Anschaulich erklärt wird dieser außergewöhnlich hohe Magnetowiderstand durch die Umlenkung des Stroms aufgrund der Inhomogenität, wobei diese bei Nullfeld einen Kurzschluss, bei hohen Feldern eine Stromunterbrechung darstellt.

Um dies zu verstehen, werden die Komponenten des Leitfähigkeitstensors $\hat{\sigma}(H)$ des Halbleiters betrachtet [17]:

$$\begin{aligned} \sigma_{xx}(\beta) &= \sigma_{yy}(\beta) = \frac{\sigma}{1+\beta^2} \\ \sigma_{zz}(\beta) &= \sigma \\ \sigma_{xy}(\beta) &= -\frac{\sigma\beta}{1+\beta^2} = -\sigma_{yx}(\beta) \end{aligned} \tag{2.162}$$

mit $\beta = \mu H$. Alle anderen Tensorkomponenten verschwinden.

Das elektrische Feld \vec{E} steht normal zur Äquipotentialfläche der stark leitenden Inhomogenität. Die Stromdichte ist gegeben durch $\vec{J} = \hat{\sigma}(H)\vec{E}$. Für $H = 0$ ist der Leitfähigkeitstensor $\hat{\sigma}(H)$ diagonal, so dass $\vec{J} = \sigma\vec{E}$ ist und der Stromfluss durch die Inhomogenität stattfindet, die sich daher für den Strom wie ein Kurzschluss verhält. Für hohe Feldstärken ($\beta > 1$) dominieren die nicht-diagonalen Elemente von $\hat{\sigma}(H)$, so dass $\vec{J} \perp \vec{E}$ wird. Äquivalent hierzu wird der Hall-Winkel zwischen \vec{E} und \vec{J} 90° und der Strom wird tangential zum elektrischen Feld, d.h. der Strom wird um die Inhomogenität herum geleitet. In diesem Fall wirkt der Goldeinschluss wie eine Stromunterbrechung.

Der Übergang der Inhomogenität von einem Kurzschluss bei niedrigen Feldstärken zu einer Stromunterbrechung bei hohen Feldstärken resultiert in einer geometrischen Verstärkung des Magnetowidertandes des Halbleiters.

Über das näherungsweise quadratische Verhalten des EMR bei $\alpha \leq 13/16$ kann dieser nach der Formel $[\Delta R(H, \alpha)]/R_0^\alpha = [\mu_{schein}^\alpha (H - H_0)]^2$ mit der Beweglichkeit der Ladungsträger in der Struktur verknüpft werden, wobei μ_{schein}^α die scheinbare Beweglichkeit und H_0 ein geringer Null-Feld-Offset ist. Die scheinbaren Beweglichkeiten, die über diesen Fit erhalten werden, sind dabei allerdings größer als die tatsächliche Beweglichkeit des Halbleiters: Für $\alpha = 13/16$ erhalten Solin et al. beispielsweise $\mu_{schein}^{13/16}/\mu = 22.3$.

In einer späteren Arbeit zeigen Solin et al. [147], dass der EMR, der in der van-der-Pauw-Scheibe aus einem Halbleiter mit einem internen Shunt beobachtet wird, auch in elektrisch äquivalenten, extern überbrückten Strukturen auftritt. Der gleiche Effekt wurde auch in Silizium-dotierten InSb-Quanten-Wells mit enger Bandlücke beobachtet [18], so dass diese beiden Strukturen hervorragend zum Einsatz als Magnetosensoren geeignet sind.

In Anlehnung an das Vorgehen bei Parish und Littlewood [15, 16] bauen Solin et al. in [148] aus den einzelnen van-der-Pauw-Platten ein Netzwerk auf und untersuchen das resultierende MR-Verhalten bis zu Feldstärken von 8 T, wobei das Feld senkrecht zu der Oberfläche der Probe steht. In den so konstruierten Arrays ist der MR im Vergleich zu der einfachen van-der-Pauw-Struktur vermindert, was aus der Erhöhung des Gesamtwiderstandes durch die flaschenhalsartigen Verbindungen zwischen den einzelnen Scheiben resultiert.

Über einen Fit der erhaltenen MR-Kurven an die Gleichung $\Delta\rho/\rho_0 = \alpha|\mu B| + \beta(\mu B)^2$ kann die Linearität der Kurve quantifiziert werden. Das Verhältnis α/β ist ein Anzeichen für die Linearität des MR. Daran zeigen Solin et al., dass ein 9×9 - und 10×10 -Netzwerk eine signifikant erhöhte lineare Komponente im Vergleich zur einfachen van-der-Pauw-Platte haben. Trotzdem entspricht auch in der einzelnen Platte der MR eher einem linearen als einem quadratischen Verhalten und es gibt keinen Beweis für eine Sättigung des MRs bis zu einer Feldstärke von 8 T.

Die Parallele der Struktur von Solin et al. zu dem in dieser Arbeit untersuchten Silbersele-nid besteht darin, dass in beiden Fällen ein Metalleinschluss in einen Halbleiter mit geringer Bandlücke betrachtet wird: Im $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ der vorliegenden Arbeit sind Silbercluster in der halb-leitenden Ag_2Se Matrix eingeschlossen (im Silbergoldtellurid entsprechend Goldcluster in der AgAuTe_3 -Matrix), während bei Solin et al. eine Goldinhomogenität in InSb eingebettet ist.

Modell und Autoren	Stärken	Schwächen
QMR Abrikosov [10, 124]	- lineares Verhalten des Widerstandes	Bedingungen: 1. $n \ll (\frac{eH}{\hbar c})^{3/2}$, (für 10 T: $n \ll 10^{18} \text{m}^{-3}$) 2. $T \ll \frac{eH\hbar}{m^*c}$ (für 10 T und Wi mit $m^* = 0.01m_0$: $T \ll 1000K$, für Ag_2Se mit $m^* = 0.32m_0$: $T \ll \approx 62K$) - Temperaturunabhängigkeit des Widerstands steht im Widerspruch zum Experiment
EMA Guttal, Stroud [11] Bulgadaev [12, 13] Magier, Bergmann [14]	- linearer, nicht sättigender MR	- der lineare, nicht-sättigende MR tritt nur bei bestimmten Volumenverhältnissen auf, - starke Abhängigkeit des Verhaltens von der Geometrie der Einschlüsse
PL-Modell Parish, Littlewood [15, 16]	- klassisches, sehr anschauliches Strommodell - Verknüpfung des MR mit der Beweglichkeit - lineares, nicht sättigendes Verhalten	- die Modelle sind zweidimensional, können also nur den transversalen MR erklären - 3D-Modell steht noch aus
EMR Solin et al. [17, 18]	- lineares Verhalten bei einem Netzwerk bestehend aus vielen van-der-Pauw-Einheiten	- quadratisches Verhalten bei geringen Feldstärken - MR sättigt bei hohen Feldern - 3D-Modell steht noch aus

Tabelle 2.1: Modelle zur Erklärung des LMR.

Daher ist die Annahme naheliegend, dass bei den in dieser Arbeit untersuchten Systemen ein Spezialfall des EMR vorliegt, wobei die $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ und $\text{AgAu}_{1.1}\text{Te}_3$ -Proben als Grenzfall unendlich vieler van-der-Pauw-Plättchen angesehen werden können.

Eine abschließende Zusammenfassung aller Erklärungsmodelle des LMR wird in Tabelle 2.1 gegeben.

Kapitel 3

Experimentelle Grundlagen

Inhaltsverzeichnis

3.1 Silberselenid $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$	77
3.1.1 Kristallstruktur und elektrische Eigenschaften	78
3.1.2 Magnetoresistive Eigenschaften	79
3.2 Silber	83
3.3 Silbergoldtellurid Ag_3AuTe_2	85
3.4 Aufbau des Messplatzes	86
3.4.1 Hochfeldmagnet	86
3.4.2 Probenhalter	87
3.4.3 Messprogramm	91
3.5 Hall-Messungen	92
3.6 Probenherstellung und Charakterisierung	94

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurden dünne Filme und Proben zweier unterschiedlicher Materialien (Silberselenid: Ag_xSe mit $x = 2 + \delta$, wobei δ die Stöchiometrieabweichung angibt, und Silbergoldtellurid: $\text{Ag}_3\text{Au}_{1.1}\text{Te}_2$) untersucht, um die Überprüfung der theoretischen LMR-Modelle auf eine ausreichende experimentelle Basis zu stellen. Die allgemein bekannten Eigenschaften der Materialien, die im Hinblick auf diese Arbeit wichtig sind, die Herstellung und strukturelle Charakterisierung der Proben sowie die Messmethoden werden in diesem Kapitel vorgestellt.

3.1 Silberselenid $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$

Die Silberchalkogenide sind aufgrund ihrer guten Ionenleitfähigkeit eine bereits gut untersuchte Materialklasse und wurden seitens der chemischen Disziplinen intensiv erforscht. Seit der Entdeckung des linearen MR-Effektes in den Silberchalkogeniden Ag_xSe und Ag_xTe durch Xu et al. [2] rückte Silberselenid auch für die Festkörperphysiker immer mehr in den Mittelpunkt des wissenschaftlichen Interesses und wurde in zahlreichen Arbeiten untersucht [6, 4, 22, 149, 150, 151]. Die theoretischen Erklärungsversuche des beobachteten MR-Effektes wurden in Kapitel 2.4 vorgestellt, doch sind bislang das PL-Modell (Kapitel 2.4.8), der EMR (Kapitel 2.4.9) oder alternative Modelle (EMA, Kapitel 2.4.7) noch nicht experimentell belegt worden. Im Folgenden wird

ein Überblick über die Eigenschaften dieses Materials gegeben sowie die aktuellsten Messungen und Ergebnisse aus der Literatur vorgestellt.

3.1.1 Kristallstruktur und elektrische Eigenschaften

Silberselenid gehört zu der Gruppe der $A^I B^{VI}$ -Halbleiter, die sich durch eine hohe Ladungsträgerdichte auszeichnen. Es liegt in einer Hochtemperatur- (β - Ag_2Se) und einer Tieftemperaturphase (α - Ag_2Se) vor, wobei der Phasenübergang bei 133 °C liegt (Abb. 3.1). Die Tieftemperaturphase α - Ag_2Se wird in der Literatur sowohl mit orthorhombischer als auch monokliner Struktur beschrieben [153, 154] und verhält sich bei Raumtemperatur wie ein Halbleiter, während β - Ag_2Se eine kubische (bcc) Struktur hat und metallische Eigenschaften zeigt. Die kubische Phase hat ein kubisch innenzentriertes Chalkogenuntergitter und weist eine sehr große Silberionenleitfähigkeit auf, die auf eine weitgehende strukturelle Fehlordnung des Kationenuntergitters zurückzuführen ist.

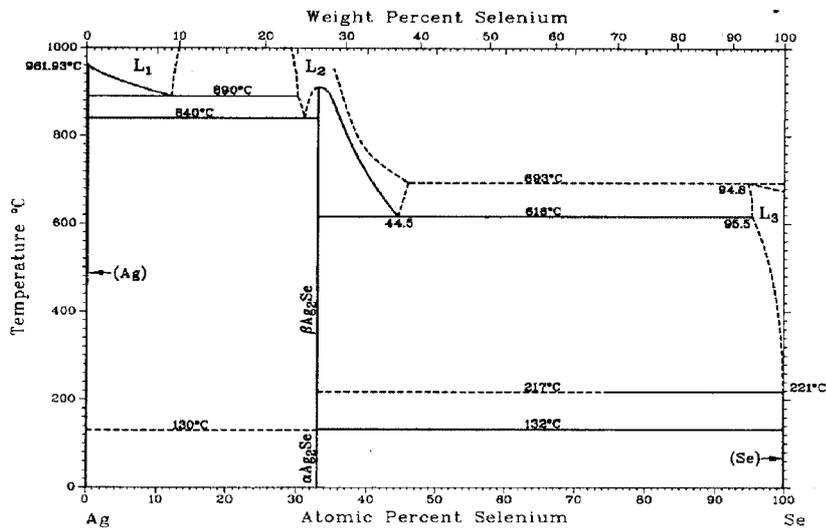


Abbildung 3.1: Phasendiagramm von $Ag_{2+\delta}Se$ (aus [152]).

Die Gitterstruktur der Tieftemperaturphase in Silberselenid wird meist als orthorhombisch beschrieben, es existieren allerdings auch Veröffentlichungen, die diese Phase als tetragonal beschreiben. Bei Günther [154] findet sich eine zusammenfassende Darstellung aller Arbeiten zur Strukturbestimmung und man sieht, dass im Bereich dünner Schichten sowohl orthorhombische als auch tetragonale, monokline und kubische Strukturen zu finden sind.

Silberselenid ist bei tiefen Temperaturen ein Halbleiter mit sehr kleiner Bandlücke (0.07 eV). Durch Metallunter- oder überschuss kann sowohl die Loch- bzw. die Elektronenkonzentration als auch die Konzentration der Kationenleerstellen und Zwischengitterkationen variiert werden. Aufgrund beider Mechanismen wird die Leitfähigkeit des Materials beeinflusst, da damit die Konzentration der Ladungsträger verändert wird. Die elektronische Leitfähigkeit σ setzt sich zusammen aus der Teilleitfähigkeit beider Ladungsträgerarten

$$\sigma = \sigma_e + \sigma_h. \tag{3.1}$$

Da allerdings die intrinsische Konzentration an Elektronen und Löchern bereits sehr groß ist (siehe Tabelle 3.1.1), ist die Änderung der elektronischen Teilleitfähigkeit eher gering [8]. Bei Erhöhung der Löcherkonzentration ist praktisch kein Effekt festzustellen, da die Beweglichkeit der Löcher wesentlich kleiner als die der Elektronen ist.

Die elektronischen Eigenschaften von $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ wurden ausführlich studiert — erst nur für den oberen Temperaturbereich der α -Phase [155, 156], in den letzten Jahren auch für tiefere Temperaturen [2, 8, 9].

Die referierten Ladungsträgerdichten schwanken von $2.5 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ bei Xu et al. [2] über $2.16 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ bei Gruhl [9] bis $6 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ bei Damodara Das [156]. Die Ladungsträgerbeweglichkeiten wurden von Junod [157] zu $\mu_e = 1920 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ und $\mu_h = 505 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ bestimmt, während Gruhl anhand ihrer Messungen auf $\mu_e = 2220 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ und $\mu_h = 350 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ kommt. Auch für die effektive Ladungsträgermasse m^* findet man bei verschiedenen Autoren unterschiedliche Angaben. Xu et al. [2] benutzen in ihrer Arbeit den von Aliev [158] berechneten Wert $m^* = 0.08m_0$ (wobei m_0 die Ruhemasse des Elektrons ist), während Gorbach et al. [159] $0.17m_0$ angeben. Beck findet in ihrer Arbeit noch höhere Werte von $m_e^* = 0.32m_0$ und $m_h^* = 0.53m_0$, jedoch gemessen bei einer Temperatur von $100 \text{ }^\circ\text{C}$ [8], woraus sich ein spezifischer Widerstand der Proben von etwa $10^{-5} \text{ }\Omega\text{m}$ ergibt, der auch bei Xu [2] angegeben wird.

Für die Fermi-Energie geben Damodara Das [155] 0.175 eV an und die von ihnen berechnete mittlere freie Weglänge beträgt bei Raumtemperatur 128 nm , während Gruhl [9] nur 63 nm findet. Die Schallgeschwindigkeit innerhalb des Materials für die Abschätzung der Phononenwellenlänge wurde leider nur für sehr hohe Temperaturen von über $800 \text{ }^\circ\text{C}$ gemessen [160], allerdings nehmen Aivazov et al. [161] aufgrund experimenteller Befunde an, dass die Schallgeschwindigkeit in der flüssigen Phase in etwa gleich der in der festen Phase ist, so dass dieser Wert hier verwendet werden kann.

Das Phänomen der schwachen Lokalisierung in dünnen $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ -Schichten wurde von Gruhl [9] zwar dokumentiert, aber nicht systematisch untersucht und es finden sich keine Angaben zu spezifischen Dephasierungszeiten τ_x in der Literatur.

Tabelle 3.1 gibt eine Zusammenstellung der wichtigsten in der Literatur dokumentierten elektronischen Eigenschaften von Silberselenid. Die Ergebnisse wurden bei Xu [2] in Bulkproben in der Größenordnung von mm erzielt, während die Proben von Beck [8] mit mehreren μm Dicke zwar einige Größenordnungen dünner sind, aber immer noch als Bulk-Proben angesehen werden können. Die anderen Autoren hingegen führten Messungen im Bereich dünner Schichten durch: Damodara Das [156, 155] untersuchte Proben zwischen 50 nm und 200 nm , während Gruhl [9] von Ergebnissen an Schichten mit Dicken zwischen 6 nm und $2 \mu\text{m}$ berichtet. Von Kreutzbruck et al. [22] untersuchten polykristalline Silberselenidschichten mit einer konstanten Dicke von 150 nm , die eine Stöchiometrie-Bandbreite x von 1.5 bis 18 aufwiesen.

Es bleibt zu bemerken, dass aufgrund des engen Phasendiagramms von $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ der elektrische Transport sehr stark von der Stöchiometrieabweichung und von der Mikrostruktur abhängig ist, welche wiederum insbesondere bei Schichtsystemen von den präparativen Methoden abhängt. Die Angaben können daher allenfalls als grobe Richtwerte aufgefasst werden.

3.1.2 Magneto-resistive Eigenschaften

1997 untersuchten Xu et al. [2] erstmals den transversalen MR-Effekt von silberreichem Silberselenid und Silbertellurid mit einer Phasenzusammensetzung außerhalb des homogenen Gebiets

Autor	δ	n [cm ⁻³]	μ [cm ² /Vs]	m^*	λ [nm]
Xu [2]	0.01 - 0.33	$2.5 \cdot 10^{17} - 9 \cdot 10^{17}$		0.08 m_0	
Damodara Das [156, 155]		$6 \cdot 10^{18}$	$\mu = 2000$	0.07 m_0 0.12 m_0	128
Beck [8]	$10^{-6} - 0.33$	$\simeq 10^{18}$ (bei 100C)	$\mu_e = 1920$ $\mu_p = 505$	$m_e = 0.32 m_0$ $m_p = 0.53 m_0$	
Gruhl [9]		$2.16 \cdot 10^{18}$	$\mu_e = 2200$ $\mu_p = 350$		63 (bei 290K)
Kreutzbruck [22]	$-0.5 < x < 16$	$\lambda \cdot n^{2/3} = 10^8 - 10^{11}$			

Tabelle 3.1: Elektronische Eigenschaften von Ag_{2+δ}Se (δ : Stöchiometrieabweichung, n : Ladungsträgerkonzentration, μ : Ladungsträgerbeweglichkeit, m^* : effektive Ladungsträgermasse, λ : elastische mittlere freie Weglänge der Elektronen).

und fanden einen ungewöhnlich großen Magnetowiderstandseffekt von 100 % für Silberselenid und 120 % für Silbertellurid bei 300 K und 5.5 T sowie 370 % bei 4.5 K und 5.5 T. Neben der erstaunlich hohen Widerstandsänderung war auch der lineare Verlauf des Effekts bis zu kleinen Magnetfeldern von ca. 1 mT bemerkenswert (Abb. 3.2).

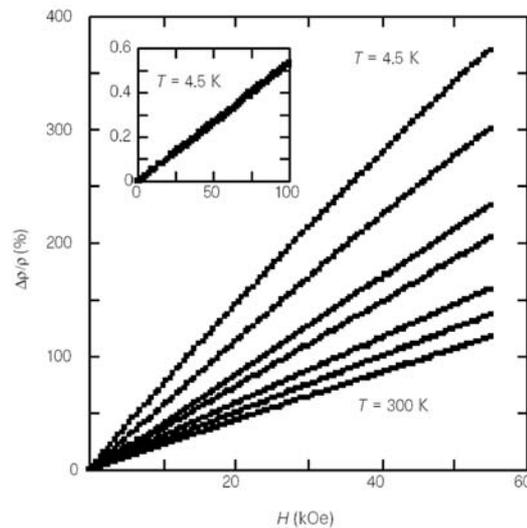


Abbildung 3.2: Magnetowiderstand von Ag_{2+δ}Se für Temperaturen von 4.5 K, 30 K, 60 K, 90 K, 180 K, 270 K und 300 K. Die Einfügung zeigt die Linearität des MR bis zu Werten von wenigen Oe [2].

Ogorelec et al. [7] fanden hingegen wesentlich geringere Magnetowiderstandseffekte von maximal 30 % bei 5.5 T und einen linear deutlich weniger ausgeprägten Verlauf als bei Xu. Hier wurde erst bei Feldern von 3 T (bei einer Temperatur von 4.5 K) bzw. 6 T (bei einer Temperatur von 273 K) ein linearer Verlauf des MR-Effektes gemessen. Allerdings führten Ogorelec et al. ihre Messungen an stöchiometrischen Proben durch, bei denen keiner oder nur im Rahmen der

Reinheit sehr geringer Silberüberschuss vorlag. Heute weiß man, dass bereits ein Silberüberschuss von $\delta > 10^{-4}$ den LMR bewirken kann und eine Bestimmung von δ mit einer Genauigkeit im %-Bereich schwer erreichbar ist. Derartige geringe Ag-Überschusskonzentrationen sind nur mittels hochempfindlicher coulometrischer Titration meßbar. Diese wurden erstmals an Ag_2Se von Beck et al. demonstriert [8], so dass bei Ogorelec gar nicht mit Sicherheit gesagt werden kann, wie hoch der Ag-Überschuss tatsächlich war.

Auch bei Manoharan et al. [6] zeigte sich bei einem MR-Effekt von 250 % bei 16 T ein linearer Verlauf erst für Felder $B > 3$ T. Beck [8] hingegen fand in Abhängigkeit von der Probenstöchiometrie für Felder $B < 0.1$ T bei 303 K einen linearen MR-Effekt in $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$, auch wenn er bei 8 T nur insgesamt 35 % erreichte.

Trotz der Schwierigkeiten, die von Xu et al. erzielten Ergebnisse zu reproduzieren, steht außer Frage, dass der lineare Verlauf nicht mit dem Zwei-Band-Modell zu erklären ist und in hohem Maße von der Probenpräparation und der dadurch erzielten Mikrostruktur abhängt.

Typische Strukturdefekte in Festkörpern sind Versetzungen, Korngrenzen, Einschlüsse und Poren. Die Dichte der Versetzungslinien liegt zwischen 10^0 cm^{-2} in sehr guten Siliziumkristallen und 10^{12} cm^{-2} in stark deformierten Metallen [25]. Über den duktilen Charakter schätzt Beck die Versetzungsdichte im Silberselenid mit 10^8 cm^{-2} ab.

Einen entscheidenden Einfluss auf die Leitfähigkeit und damit den MR-Effekt haben Einschlüsse in Form metallischer Silberausscheidungen, die sich an Nicht-Gleichgewichtsdefekten wie Korngrenzen und Versetzungen bilden, wie von Taniguchi et al. [183, 162] gezeigt. Diese Silberausscheidungen wurden auch von anderen Arbeitsgruppen gefunden und dokumentiert. G. Beck zeigt eine Reihe REM-Aufnahmen von $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ -Proben, in denen die Silberausscheidungen deutlich zu erkennen sind (Abb. 3.3).

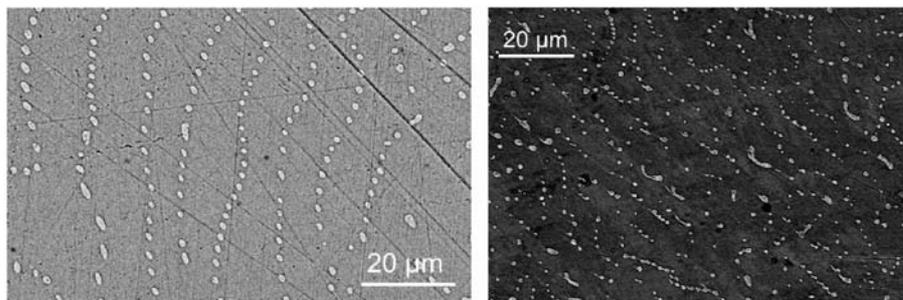


Abbildung 3.3: REM-Aufnahmen von Silberausscheidungen in $\text{Ag}_{2.33}\text{Se}$ (links) und $\text{Ag}_{2.17}\text{Se}$ (rechts). Man erkennt regelmäßige Ketten sowie teilweise zusammenwachsene Silberausscheidungen (aus [8]).

Auch bei Kreuzbruck et al. [22] finden sich in HRTEM und elektronenmikroskopischen Messungen direkt die Silbercluster und -pfade innerhalb des Silberselenids (Abb. 3.4). Die Bilder verdeutlichen, dass das Zusammenwachsen von Silberclustern in den Proben — also die Bildung durchgehender Silberpfade (Perkolation) — ein wichtiger Faktor bei der Untersuchung der Leitfähigkeit dieses Materials ist.

Die Menge der Silberausscheidungen hängt stark von der Korngröße ab, die annähernd proportional zur Schichtdicke ist [163].

Ausführliche Untersuchungen zum MR in Silberselenid finden sich bei Beck [8] und Gruhl [9]. Beck hat in ihrer Arbeit den Schwerpunkt auf die möglichst genaue Einstellung von δ gelegt

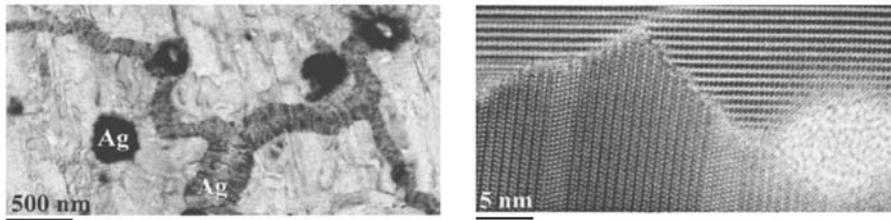


Abbildung 3.4: HRTEM-Aufnahmen von Nanopartikeln und Silberlamellen in $(\text{Cu,Ag})_{2+\delta}\text{Se}$ (aus [22]).

und an entsprechenden Proben MR-Messungen bis 8 T durchgeführt. Da Silberselenid ein diamagnetischer Halbleiter ist, erwartet man im Magnetfeld einen OMR-Effekt, den Beck in Übereinstimmung mit den Arbeiten von Ogorelec [7] in stöchiometrischem Ag_2Se auch findet. Qualitativ verringert sich der OMR-Effekt bei Beck mit zunehmendem Silbergehalt und zeigt bis zu Feldstärken von 8 T keine Sättigung. In heterogenen Proben mit geringem Silberüberschuss ($\delta < 10^{-2}$) treten in Abhängigkeit von der Art der Silberausscheidungen sowohl lineare positive als auch sättigende negative MR-Effekte bzw. eine Überlagerung derselben auf. Der von Beck beobachtete lineare Effekt stimmt mit dem von Xu et al. [2] erwähnten überein, auch wenn er nicht die dort gefundene Größe erreicht. Die lineare Feldabhängigkeit wird von Beck mit dem von Abrikosov eingeführten QMR-Effekt [10] erklärt, der voraussetzt, dass die Elektronen aus den Silberausscheidungen in die umgebende Matrix mit geringerer Ladungsträgerkonzentration diffundieren.

Abrikosov [10] sagte voraus, dass der elektrische Widerstand in Silberselenid nicht von der Temperatur abhängen sollte, allerdings findet sich bei experimentellen Untersuchungen stets eine leichte Temperaturabhängigkeit. Damodara Das [155, 156] zeigten, dass der Widerstand bei Dünnschicht-Proben ab einer Temperatur von 300 K mit steigender Temperatur abnimmt, bis er beim α - β -Phasenübergang schlagartig abfällt. Bei weiterer Temperaturerhöhung steigt er wieder an. Bei Messungen zwischen 4.2 K und 300 K fanden Manoharan [6] unterhalb von $T < 30$ K keine nennenswerte Widerstandsänderung, dann einen Anstieg des Widerstandes bis zu einer Übergangstemperatur T_C , oberhalb derer der Widerstand nahezu linear wieder abnimmt. Dabei hängt T_C von der Silberkonzentration ab. Das deutet auf einen Metall-Halbleiter-Übergang bei der Temperatur T_C hin, dessen Wert abhängig vom Silberüberschuss δ ist. Im metallischen Temperaturbereich $T < T_C$ bleibt die Elektronenkonzentration n konstant und der Widerstand nimmt aufgrund erhöhter Elektron-Phonon-Streuung nach dem Bloch-Grüneisen-Gesetz (Gl. 2.55) mit der Temperatur zu.

Damodara Das [156] untersuchten auch die Abhängigkeit des Widerstandes dünner Silbersele-nidschichten von der Schichtdicke und fanden eine lineare Abhängigkeit des spezifischen Widerstandes ρ_F von $1/d$, während die Bandlücke linear mit der Schichtdicke zunimmt.

Gruhl findet in Silberselenid-Proben mit variierendem Silbergehalt ebenfalls eine Abhängigkeit des MR und der Übergangstemperatur T_C vom Silbergehalt der Probe [9]. Während in unterstöchiometrischem Ag_xSe der maximale MR bei tiefen Temperaturen erreicht wird (bei ca. 70 K in $\text{Ag}_{1.18}\text{Se}$), verschiebt sich der maximale MR mit steigendem Silbergehalt zu höheren Temperaturen (ca. 240 K bei $\text{Ag}_{2.95}\text{Se}$). Dabei variiert der maximale MR zwischen ca. 20 % in $\text{Ag}_{1.89}\text{Se}$ und 6 % in $\text{Ag}_{2.95}\text{Se}$. Bei den untersuchten Proben zeigt der Magnetowiderstand kein ausschließlich lineares Verhalten wie bei Xu et al. [2], sondern bei geringen Feldstärken liegt ein ausgeprägt quadratischer Verlauf vor, der erst ab einer bestimmten Feldstärke B_{linear} , die von

der Probenzusammensetzung abhängig, linear wird. Der Widerstand in den von ihr untersuchten Schichten änderte sich in Abhängigkeit von der Temperatur nur um einen Faktor 1.5 im Bereich von 4.2 bis 300 K — sogar noch weniger als in den bisher in der Literatur dokumentierten Ergebnissen. Qualitativ entspricht das Verhalten dem von Ogorelec [7] und Manoharan [6] beobachteten: ein Anstieg des Widerstandes bis zu einer Übergangstemperatur T_C , ab der dann der Widerstand wieder abnimmt. In Abhängigkeit von der Silberkonzentration findet Gruhl die erwartete Zunahme der Leitfähigkeit mit steigendem Silbergehalt — aber auch eine starke Streuung der gemessenen Werte bei konstantem Silbergehalt, etwa bei $x \approx 2.3$. Es wird vermutet, dass diese Streuung durch ein Perkolations-Phänomen der Silberpfade innerhalb der halbleitenden Matrix zustande kommt.

In einer späteren Arbeit von Kreuzbruck [22] wird auf diese Schwankungen genauer eingegangen und der Verlauf des Produkts aus mittlerer freier Weglänge und Ladungsträgerkonzentration (Abb. 3.5) eindeutig als Perkolationsphänomen identifiziert.

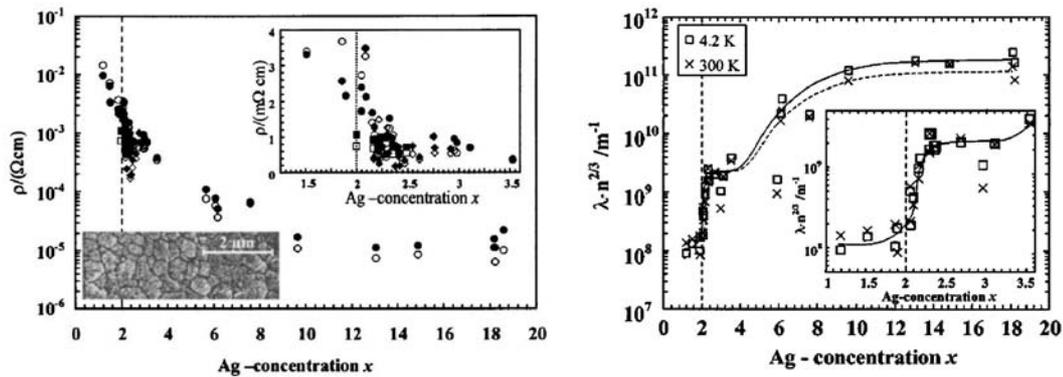


Abbildung 3.5: Spezifischer Widerstand (links) und $\lambda \cdot n^{2/3}$ (rechts) in Abhängigkeit der Silberkonzentration x in Ag_xSe -Proben (aus [22]).

Bei Tieftemperaturmessungen an dünnen Schichten beobachtete Gruhl einen weiteren sehr interessanten Effekt, der aber nicht intensiver untersucht wurde — eine Erhöhung des Magnetowiderstandes bei tiefen Temperaturen, der durch die schwache Lokalisierung, bzw. in den in dieser Arbeit untersuchten Proben aufgrund der starken Spin-Orbit-Streuung durch die schwache Antilokalisierung, zustande kommt (Abb. 3.6).

Dumpich et al. nutzten dieses Phänomen zur Strukturbestimmung in perkolierenden Goldfilmen und magnetischen Systemen [164, 189, 190, 191] und konnten damit Aussagen über die Mikrostruktur untersuchter Proben machen.

Die Bestimmung der charakteristischen Streulängen sowie des daraus erkennbaren Perkolationszustandes der Silberpfade in den Proben ist neben der Untersuchung des linearen Magnetowiderstandes mit ein Inhalt dieser Arbeit und wird anhand der Messungen in Kapitel 4 ausführlich dargelegt.

3.2 Silber

Durch die Annahme, dass der Transport vornehmlich in den perkolierten Silberpfaden stattfindet, müssen auch die Eigenschaften mikroskopischer Silberstrukturen näher betrachtet werden.

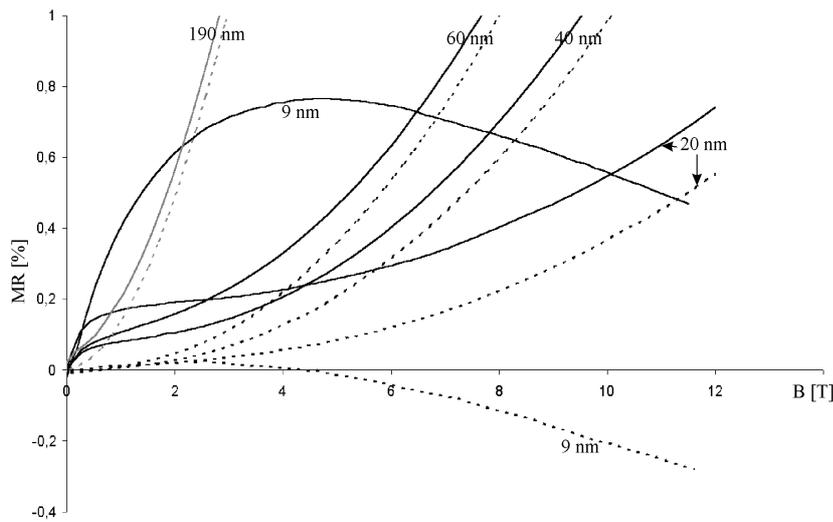


Abbildung 3.6: Magnetowiderstand von fünf dünnen $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ -Schichten mit unterschiedlichen Schichtdicken. Für $d \leq 60$ nm beobachtet man zusätzlich zu der erwarteten quadratischen Abhängigkeit des MR einen steilen Anstieg der Kurve bei 4.2 K und geringen Feldstärken (durchgezogene Linie), der bei höheren Temperaturen verschwindet (gestrichelte Linien, bei 50 K) (aus [9]).

Als Edelmetall ist Silber ein sehr intensiv untersuchtes Element und seine elektronischen sowie galvanomagnetischen Eigenschaften sind in der Standardliteratur leicht zu finden. Bulk-Silber hat einen spezifischen Widerstand ρ von $1.59 \cdot 10^{-8} \Omega\text{m}$ und eine Ladungsträgerdichte n von $5.85 \cdot 10^{28} \text{ m}^{-3}$ bei 300 K. Daraus berechnet sich eine Ladungsträgerbeweglichkeit $\mu = \sigma/(ne)$ von $6.71 \cdot 10^{-3} \text{ m}^2/\text{Vs}$. Die mittlere Schallgeschwindigkeit beträgt 2600 m/s.

Die Dephasierung in dünnen Silberstrukturen wurde von diversen Arbeitsgruppen untersucht: Cavalloni und Joss [165] untersuchten zylindrische, 16 nm und 20 nm dünne Ag-Filme und berechneten aus den MR-Kurven die entsprechenden Dephasierungslängen L_{SO} und L_i . Bei einer Temperatur von 4.2 K erhielten sie für die Spin-Orbit-Dephasierungslänge L_{SO} Werte zwischen $0.286 \mu\text{m}$ und $0.405 \mu\text{m}$, während die inelastische Dephasierungslänge L_i zwischen $0.62 \mu\text{m}$ und $1.24 \mu\text{m}$ lag. Henzler et al. [166] untersuchten epitaktisch auf Si aufgewachsene Ag-Filme mit einer Dicke von wenigen Monolagen und stellten fest, dass die Spin-Orbit-Dephasierungszeit τ_{SO} ab einer Dicke von 2.5 Monolagen Ag unabhängig von der Schichtdicke ist, während τ_i mit zunehmender Schichtdicke leicht ansteigt.

Schad et al. [167] und Bergmann et al. [168] hingegen berichten von einer Abhängigkeit der Spin-Orbit-Streuzzeit von der elastischen freien Weglänge und damit von der Schichtdicke dünner Filme.

Petta et al. [169] maßen die Dephasierungszeit in Nano-Ag-Strukturen, die in eine Aluminium-Matrix eingebettet waren und erhielten Werte für $1/\tau_{SO}$ von $3 \cdot 10^{11} \text{ s}^{-1}$ bis $2 \cdot 10^{12} \text{ s}^{-1}$.

Der Einfluss von Silber auf die Dephasierung in unterschiedlichen Systemen wurde von Sahnoune et al. [170] untersucht, die dabei zeigten, dass eine Ag-Dotierung zu erheblicher Spin-Orbit-Streuung in einem Material führen kann. Bei $\text{Ca}_{70}\text{Al}_{30}$ -Proben wurde das Aluminium nach und nach durch Silber ersetzt bis zu einer Konzentration von $\text{Ca}_{70}\text{Al}_{28}\text{Ag}_2$, was zu einer Erhöhung der Spin-Orbit-Dephasierungszeit $1/\tau_{SO}$ von $0.8 \cdot 10^{11} \text{ s}^{-1}$ auf $5.5 \cdot 10^{11} \text{ s}^{-1}$ führte.

Tabelle 3.2 gibt eine Übersicht über die für diese Arbeit wichtigen in der Literatur referierten Größen.

Autor	L_i [nm]	L_{SO} [nm]	untersuchte Struktur	Abhängigkeiten bzw. Verhalten
Cavalloni, Joss [165]	620 - 1240	286 - 405	zylindrische Ag-Filme, 16 und 20 nm dick	
Henzler et al. [166]			epitaktische Ag-Filme, 1.8 - 20 Monolagen	τ_{SO} unabhängig von d τ_i steigt mit d
Schad et al. [167]			epitaktische Ag-Filme, 0 - 125 Monolagen	τ_{SO} abhängig von l_0 und d
Gougam et al. [72]	≈ 2000	85	lange, dünne Ag-Drähte	
Chandrasekhar et al. [72]	1300 - 3000 bei 1.25 K	300 - 650	kurze Ag-Drähte	
Giordano, Pennington [171]	1300	500	dünne Ag-Filme	

Tabelle 3.2: Elektronischen Eigenschaften von Silber (L_i : inelastische Streulänge, L_{SO} : Spin-Orbit-Streulänge).

3.3 Silbergoldtellurid Ag_3AuTe_2

Ein weiteres Material, an dem im Rahmen der vorliegenden Arbeit die Theorie von Parish und Littlewood zum LMR [15, 16] überprüft wird, ist das Mineral Silbergoldtellurid Ag_3AuTe_2 , das aufgrund seiner Defektstruktur das gleiche Magnetoresistenzverhalten erwarten lässt wie Silberselenid.

Ag_3AuTe_2 ist ein Halbleiter mit schmaler Bandlücke (0.004 eV beim indirekten Übergang, 0.21 eV beim direkten Übergang am Γ -Punkt [172]). Wie Silberselenid zeigt es bei niedriger Temperatur einen Phasenumwandlungspunkt und daher wird eine dominante Defektstruktur mit einer nanoparkett-ähnlichen Charakteristik ähnlich wie beim Ag_2Se erwartet, die als Hauptursache für das Auftreten des LMR vermutet wird. Da Ag_3AuTe_2 keine Phasenbreite bei Raumtemperatur besitzt, sollten durch einen geringfügigen Goldüberschuss Gold-Nanocluster entstehen, die analytisch wesentlich einfacher nachzuweisen sind als die Silbercluster im Silberselenid.

Ag_3AuTe_2 ist in der Literatur nur sehr unzureichend beschrieben und obwohl die Aufklärung seiner Struktur nicht Gegenstand dieser Arbeit ist, ist sie im Rahmen des wissenschaftlichen Gesamtbildes wichtig. Die grundlegende Kristallstruktur besteht aus spiralförmigen Zylindern mit eingebetteten AuTe_2 -Hanteln [172]. Schon ein geringer Goldüberschuss reduziert den spezifischen Widerstand des Gesamtmaterials erheblich [172] und führt zu der Annahme, dass der Goldüberschuss an Korngrenzen und Kristallrändern kumuliert und zu perkolierenden Goldpfaden innerhalb des Materials führt, was aber noch nicht eindeutig belegt wurde.

Bei der Beschreibung der Herstellung und optischen Untersuchung der Probe in Kapitel 3.6 wird diese Annahme bestätigt und die Eignung des Materials als geeignetes Parallelsystem für $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ untermauert.

3.4 Aufbau des Messplatzes

3.4.1 Hochfeldmagnet

Die in dieser Arbeit beschriebenen Messungen wurden an dem 17-Tesla-Magnetsystem der Firma Oxford Instruments durchgeführt, das auch F. Gruhl für ihre Aufnahmen verwendete [9] (Abb. 3.7).



Abbildung 3.7: Foto des 17-Tesla-Kryo-Magnetsystems zur Untersuchung des MR-Verhaltens. Rechts ist der zum größten Teil im Boden versenkte Magnet zu sehen, links befinden sich auf dem Rack die Multimeter und Steuergeräte, auf dem Tisch der zugehörige Messrechner (aus [9]).

Der Magnet besteht aus zwei konzentrischen Magnet- und Kompensationsspulen, die zur Stabilisierung in eine Kupfer-Matrix eingebettet sind. Die äußere Spule ist aus supraleitendem Niob-Titan-Draht (NbTi) gewickelt, während die innere Spule aus einer Niob-Zinn Legierung (Nb_3Sn) besteht, die ein höheres kritisches Feld als NbTi bereitzustellen vermag. Bei 4.2 K erreicht der Magnet eine maximale Feldstärke von 15.2 T, was einem maximalen Stromfluss von 103.32 A entspricht. Die maximale Feldänderungsrate liegt bei 1.35 T/min.

Das Laden und Entladen des Magneten erfolgt über eine PS 120-10 der Firma Oxford Instruments, die über einen PC ferngesteuert, bei Bedarf aber auch manuell bedient werden kann. Der Feldverlauf im Inneren des Magneten wurde über eine Finite-Elemente-Simulation (Kap. 4.1.4) der beiden Magnetspulen berechnet und visualisiert. Abbildung 3.8 zeigt die Spulen des Magnetsystems sowie das von ihnen aufgebaute Magnetfeld. Man erkennt, dass im Bereich des Probenraums (Radius ~ 1.5 cm) das Feld auf konstant hohem Niveau liegt. Der vergrößerte Ausschnitt verdeutlicht die Homogenität des Feldes sowie die Verschlechterung bei einer Abweichung von der Spulenmitte in z -Richtung. Zur longitudinalen Positionierung der Proben im Spulenzentrum wurde der Probenhalter in der Länge genau an den Magneten angepasst, so dass die Proben bei vollständig heruntergeschobenem Messstab exakt im Spulenzentrum sind.

Im Inneren des Magneten befindet sich ein temperierbarer Probenraum, in dem Proben bis zu einer maximalen Länge von 30 mm untersucht werden können. Die Temperaturkontrolle im

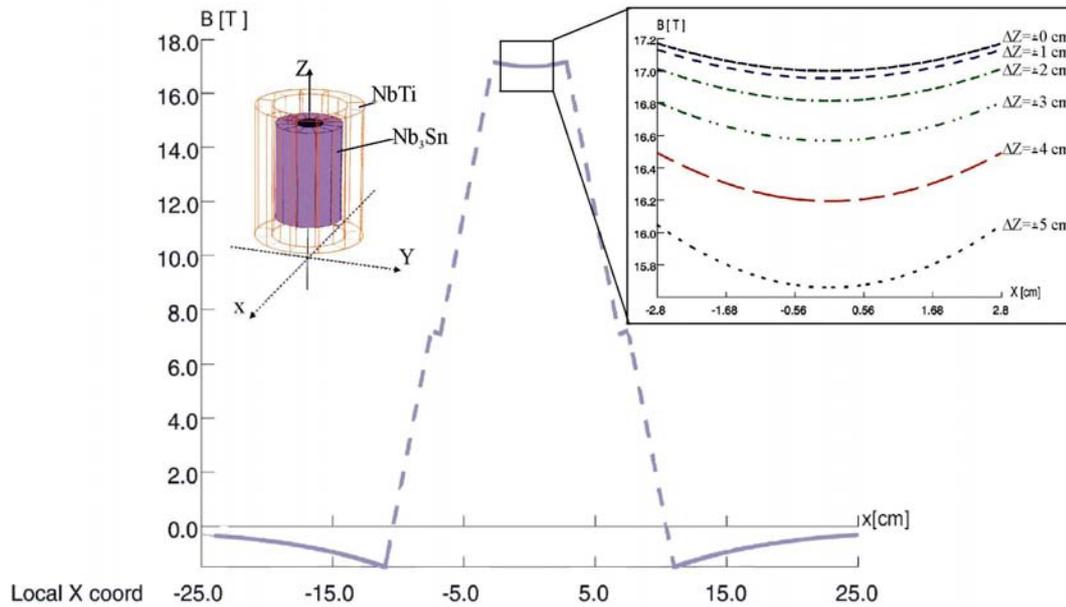


Abbildung 3.8: FEM-Modell des Magneten und berechnete Magnetfeldstärke (aus [9]).

Probenraum erfolgt über einen Heliumstrom, der durch ein Nadelventil kontrolliert wird, das anhand der Daten eines Temperatursensors (Cernox-Sensor) im Probenhalter über die Software im PC ferngesteuert wird. Zum Erhöhen der Temperatur wird ausnahmslos eine auf dem Probenhalter montierte Heizspule verwendet, die eine sehr konstante Temperaturregelung während der Messreihen erlaubt ($\Delta T < 1$ mK).

Abbildung 3.9 zeigt den Querschnitt des Kryomagnetes mit den beiden Spulen zur Felderzeugung, dem temperierbaren Probenraum, dem Nadelventil zur Steuerung des Heliumdurchflusses zur Regelung der Temperatur im Probenraum sowie das Heliumbad mit dem äußeren Isoliervakuum.

3.4.2 Probenhalter

Zum Einbringen der Proben in den Magneten sowie zur Durchführung der Messungen wurde der gleiche Probenhalter wie in [9] benutzt, allerdings mit leichten Modifikationen und Anpassungen an das aktuelle Messproblem.

Der Probenhalter besteht aus einem Neusilber-Rohr, das genau auf die Länge des Magneten abgestimmt ist, so dass der Probenhalterkopf an dessen unterem Ende sich bei vollständig heruntergeschobenem Probenhalter genau in der Mitte des Magneten befindet. Am oberen Ende des Probenhalters befinden sich die Anschlüsse für die Multimeter- sowie die Temperatursteuerung; die Messkabel sind geschützt im Inneren des Rohres verlegt. Der Probenhalterkopf besteht zwecks optimaler Wärmeleitfähigkeit aus Kupfer, in das zur Temperaturkontrolle ein Cernox-Sensor eingebettet ist. Die Temperatursteuerung findet durch eine bifilar aus Konstantan-Draht (Durchmesser $200 \mu\text{m}$) gewickelte Spule am untersten Ende des Probenhalterkopfes statt (siehe Abb. 3.10). Durch die bifilare Wicklung wird das durch die Spule erzeugte Störfeld am Ort der Probe minimiert und ist gegenüber dem durch den Magneten erzeugten Magnetfeld vernachlässigbar, wie durch FEM-Simulationen bestätigt wurde (siehe [9]).

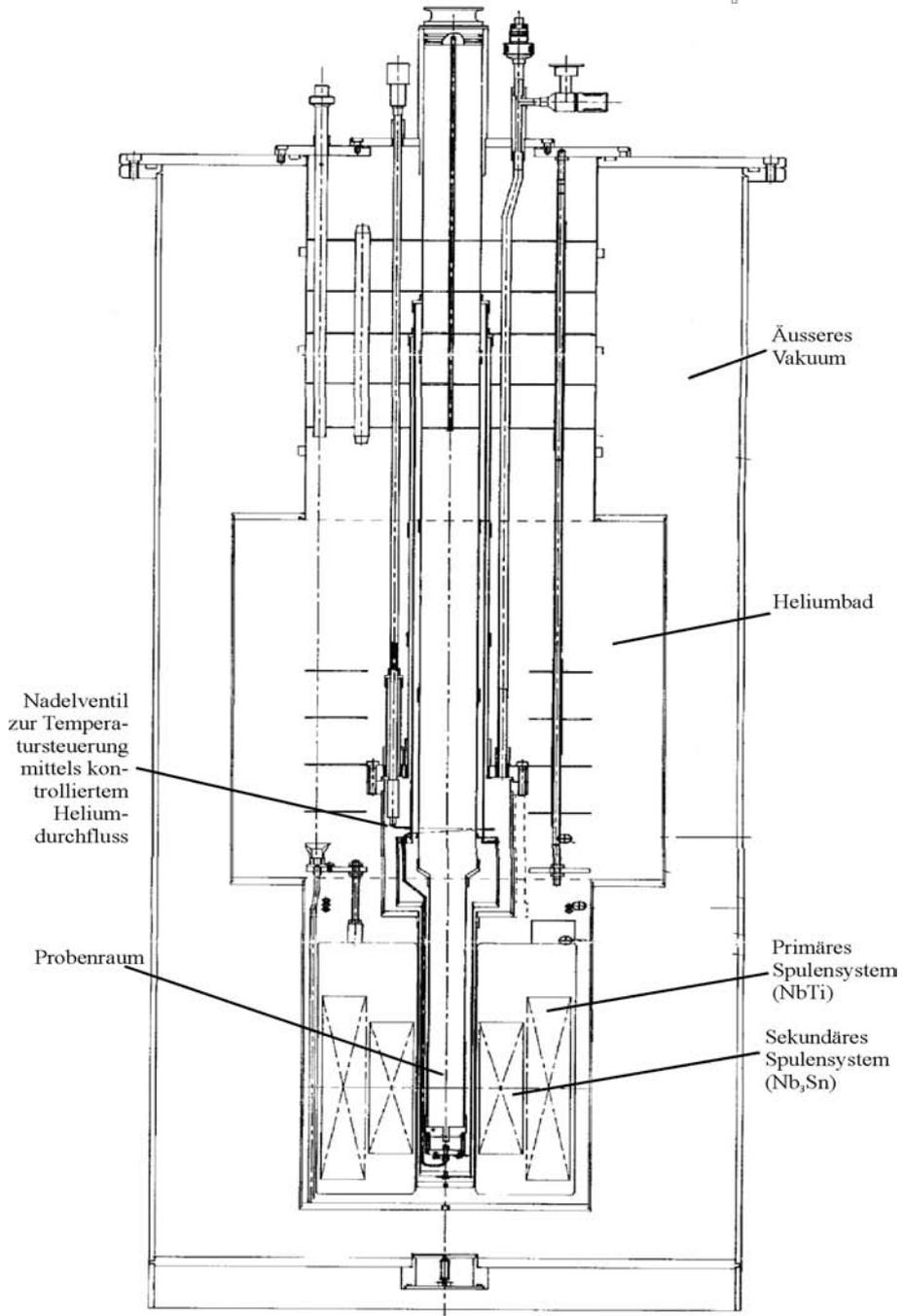


Abbildung 3.9: Querschnitt des 17-Tesla-Kryo-Magnetsystems zur Untersuchung des MR-Verhaltens (aus [9]).

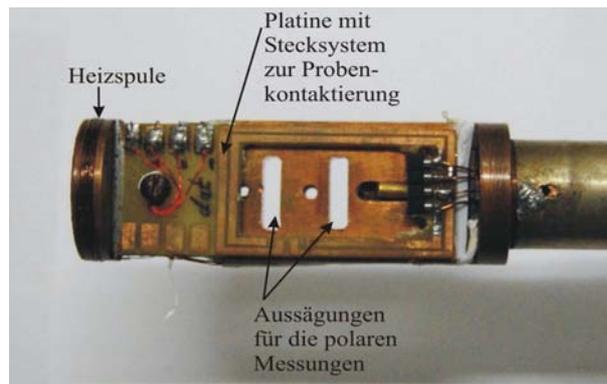


Abbildung 3.10: Probenhalterkopf.

Auf dem Kupferblock kann von zwei Seiten jeweils eine Platine mit den Kontaktflächen für die Probenanschlüsse befestigt werden, so dass jeweils zwei Proben zeitgleich untersucht werden können. Zum besseren Wärmeaustausch gegenüber den Messungen von F. Gruhl aus [9] wurde das Platinenlayout so gewählt, dass die Einspannvorrichtung für die Probe direkt auf dem Kupferblock aufgeschraubt wird. Dazu wurden die Kupferkontaktbahnen auf der Außenseite der Platine entlang geführt und in der Mitte der Platine eine Aussparung eingesägt, in der die Befestigungsvorrichtung für die Probe (Abb. 3.11) Platz findet. Diese wird dann nach Einspannen der Probe am Kupferblock angeschraubt. Die Einspannvorrichtung und Kontaktierung für die Proben wurden für drei unterschiedliche Messarten konzipiert: transversal ($B \perp I$ und $B \parallel \square$, wobei \square die Probenebene ist), longitudinal ($B \parallel I$ und $B \parallel \square$) und polar ($B \perp I$ und $B \perp \square$) (siehe Abb. 3.11).

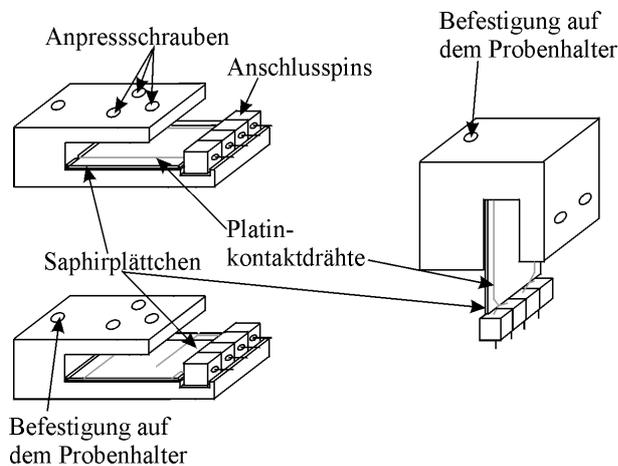


Abbildung 3.11: Probenbefestigung für die drei Messkonfigurationen transversal (links oben), longitudinal (links unten) und polar (rechts).

Die Kontaktierung der Proben erfolgte über Platindrähte, die zwecks optimalen Wärmeaustauschs bei gleichzeitiger Isolierung gegen das Kupfer auf Saphirplättchen fixiert wurden, indem die Drahtteile, die nicht in Kontakt mit der Probe kamen, in dafür vorgesehene Einkerbungen geklebt wurden. Die Proben wurden dann mittels Teflon-Anpressschrauben auf die Plättchen gedrückt, bis sich der Widerstand der Probe durch weiteres Anziehen der Schrauben nicht weiter verminderte. Bei der transversalen Messung verliefen die Platindrähte parallel zur Probenhalterlängsachse und damit parallel zum Magnetfeld, wodurch der Stromfluss transversal stattfindet

(Abb. 3.11, oben links). Für die longitudinalen Messungen wurden die Platindrähte um 90° gedreht und verliefen dementsprechend transversal zum Magnetfeld, so dass der Strom durch die Probe parallel zum Feld floss. Bei den polaren Messungen wurde eine verkürzte Einspannvorrichtung benutzt, die senkrecht zum Magnetfeld positioniert wurde, so dass das Feld die Probenebene senkrecht durchdrang. Die Probe, die länger war als die Einspannvorrichtung, ragte dabei in die Aussparungen des Kupferblocks hinein, die in Abbildung 3.10 zu sehen sind.

Die Widerstandsmessungen erfolgten über zwei digitale Multimeter (hp 3458A), die ebenso wie die Temperatur und das Magnetfeld über die automatisierte Messsteuerung direkt ausgelesen wurden. In Abhängigkeit von den Widerstandswerten lag der Messstrom zwischen 0.1 mA und 1 mA.

Durch den Aufbau in einer Vier-Punkt-Geometrie (siehe Abb. 3.12) wurde der Widerstand der Zuleitungen nicht mitgemessen. Auf diese Weise können auch Widerstände gemessen werden, die in der Größenordnung der Messkabel oder darunter liegen, ohne die großen Fehler der üblichen Zwei-Punkt-Messung in Kauf zu nehmen.

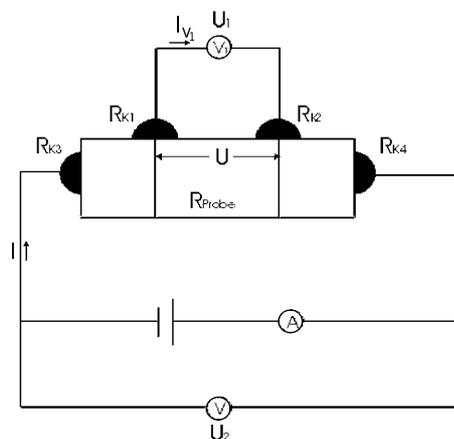


Abbildung 3.12: 4-Punkt-Methode zur Widerstandsmessung.

Anhand der Abbildung 3.12 sieht man:

$$U = (I - I_{V_1})R_{\text{Probe}} \tag{3.2}$$

und

$$U_1 = R_I I_{V_1}. \tag{3.3}$$

Dabei ist R_I der Innenwiderstand des Voltmeters V_1 . Aus der Maschenregel folgt $U = (R_{K_1} + R_{K_2} + R_I)I_{V_1}$, was mit Gleichung 3.2 gleichgesetzt wird und zu

$$I_{V_1} = \frac{IR_{\text{Probe}}}{R_{K_1} + R_{K_2} + R_I + R_{\text{Probe}}} \tag{3.4}$$

führt. Durch Einsetzen in 3.3 erhält man nun

$$U_1 = R_{\text{Probe}}I \left[1 - \left(1 + \frac{R_I}{R_{K_1} + R_{K_2} + R_{\text{Probe}}} \right)^{-1} \right]. \tag{3.5}$$

Solange der Innenwiderstand des Messgerätes $R_I \gg R_{P_{\text{Probe}}}$, wird der Term $\alpha = (1 + R_I / (R_{K_1} + R_{K_2} + R_{P_{\text{Probe}}}))^{-1} \ll 1$ und der gemessene Widerstand entspricht dem tatsächlichen Widerstand der Probe.

An dieser Rechnung ist ersichtlich, dass diese Messmethode nur für kleine Widerstände sinnvoll ist, da für deutlich größere Widerstände als die Kontakt- oder Leitungswiderstände der Term α gegen 1 geht und der Spannungsabfall verschwindet.

3.4.3 Messprogramm

Zur automatisierten Aufnahme der Messwerte wurde die Messsteuerung aus [9] benutzt, die sowohl einzelne Feld- bzw. Temperaturwerte als auch im Sequenz-Modus mehrere Schritte nacheinander abarbeiten kann. Die Messreihen können mit variierenden Magnetfeldern bei verschiedenen Temperaturen mit zeitlich angepassten Feldrampen und Pausen zur Temperaturstabilisierung aufgenommen werden.

Abbildung 3.13 zeigt die Benutzeroberfläche des Messprogramms.

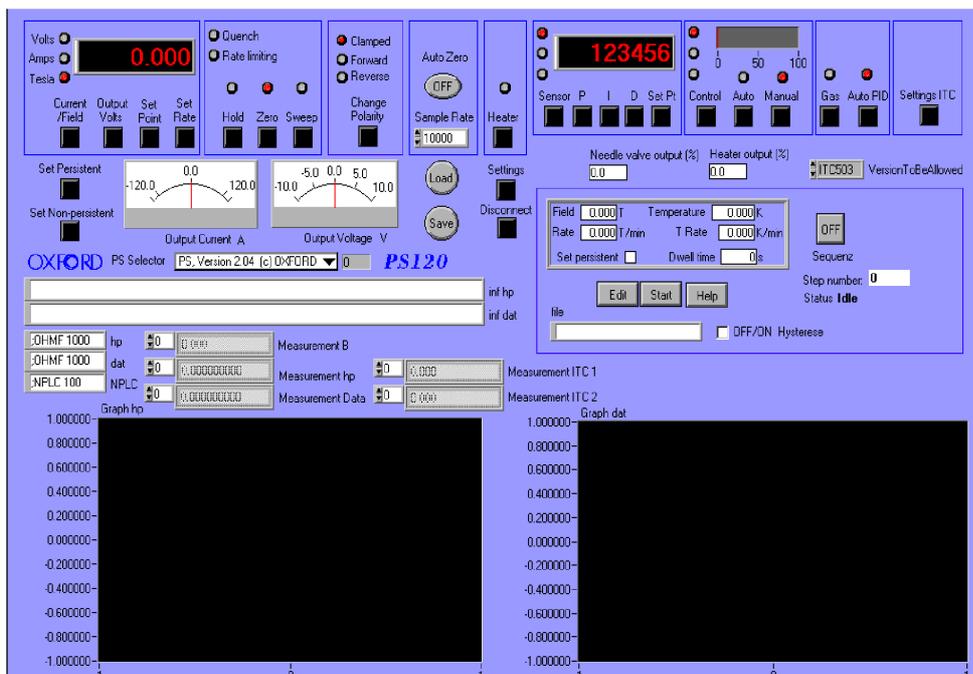


Abbildung 3.13: Screenshot der Benutzeroberfläche des LabVIEW Messprogramms.

Das Programm enthält folgende Teile:

- die Magnetfeldsteuerung (links oben), mittels derer die gewünschte Feldstärke eingestellt und angefahren werden kann,
- die Temperatursteuerung (rechts oben), mit der die gewünschte Temperatur eingestellt werden kann,
- den Sequenzer (Mitte, rechts), der dazu dient, automatisiert mehrere Messschritte über einen längeren Zeitraum durchzuführen,

- zwei Felder zur graphischen Darstellung der Messwerte (unten), wo die aufgenommenen Daten während der Messung visualisiert werden.

Die Ansteuerung der beiden Digitalmultimeter zur Widerstandsmessung ist in die Magnetsteuerung integriert. Vor dem Start der Messung können hier die Sample-Rate, die Integrationszeit sowie der Messbereich der Multimeter eingestellt werden. Während der Messung können die Daten online auf der Benutzeroberfläche abgelesen werden. Die Messdaten werden in zwei Dateien gespeichert:

- einer Datei mit Informationen zur Messung (*.inf) — den Paramtern Messbereich, Stromstärke, anvisierte Feldstärke, Feldrampe, anvisierte Temperatur;
- einer Datei mit den Messdaten (*.dat) im ASCII-Format, so dass die Daten zur Auswertung problemlos in andere Programme importiert werden können.

3.5 Hall-Messungen

Am I. Physikalischen Institut der JLU Gießen wurden an einigen Proben Hall-Messungen in einer van-der-Pauw-Anordnung [173] durchgeführt. Diese dient der Bestimmung des elektrischen Flächenwiderstandes und des Hall-Koeffizienten dünner, homogener Schichten beliebiger Form, woraus die Ladungsträgerkonzentration sowie die Elektronenbeweglichkeit ermittelt werden kann.

Hierbei wird die beliebig geformte Probe an ihrem Rand an vier Punkten A–D kontaktiert (siehe Abb. 3.14) und durch die Kontakte A und B ein Strom eingepreßt, wobei die an den Kontakten C und D abfallende Spannung gemessen wird.

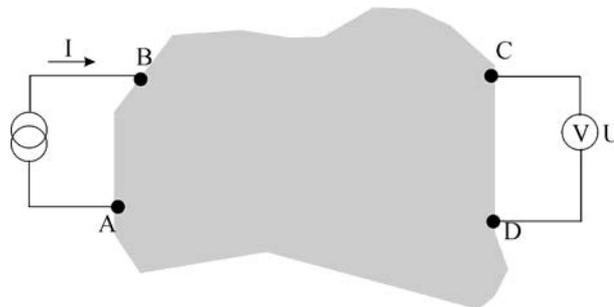


Abbildung 3.14: Van-der-Pauw-Anordnung zur Messung des Flächenwiderstandes.

Dabei erhält man den Widerstand

$$R_{AB,CD} = \frac{U_C - U_D}{I_{AB}} \tag{3.6}$$

Nach zyklischer Vertauschung der Kontakte wird der Widerstand $R_{BC,DA}$ analog gemessen.

$$R_{BC,DA} = \frac{U_D - U_A}{I_{BC}} \tag{3.7}$$

Anhand der Methode der konformen Abbildung zeigte van der Pauw, dass man aus diesen beiden Widerstandswerten den Schichtwiderstand berechnen kann und dass in diese Rechnung weder

die spezielle Form der Struktur noch die Position der Kontakte eingeht [173]. Es ergibt sich folgende Abhängigkeit:

$$\exp\left(-\frac{\pi d}{\rho} \cdot R_{AB,CD}\right) + \exp\left(-\frac{\pi d}{\rho} \cdot R_{BC,DA}\right) = 1, \quad (3.8)$$

wobei d die Schichtdicke und ρ der spezifische Widerstand ist. Wenn sowohl die Schichtdicke als auch die Widerstände $R_{AB,CD}$ und $R_{BC,DA}$ bekannt sind, ergibt sich eine Gleichung mit der gesuchten Unbekannten ρ .

Für eine beliebig geformte Struktur lässt sich der Flächenwiderstand mathematisch allerdings nicht durch eine geschlossene Formel ausdrücken. In der Praxis verwendet man daher eine Form, die mindestens eine Symmetrieachse besitzt und deren Kontakte ebenfalls entsprechend dieser Symmetrie angeordnet sind. Es gilt dann $R_{AB,CD} = R_{BC,DA}$ und für den Flächenwiderstand ergibt sich die Formel:

$$\rho = \frac{\pi d}{\ln 2} \cdot R_{AB,CD} \simeq 4.532 \cdot d \cdot R_{AB,CD} \quad (3.9)$$

Das Verfahren ist nur für ideale punktförmige Kontakte exakt; bei Wahl einer geeigneten Form der Messstruktur ist der Einfluss der Kontaktgrösse in der Praxis aber vernachlässigbar.

Die Messung des Hall-Koeffizienten geschieht in analoger Weise, allerdings wird der Strom durch die Kontakte A und C eingepreßt und der Widerstand $R_{AC,BD}$ gemessen. Anschließend wird ein homogenes Magnetfeld B senkrecht zur Probe angelegt, wodurch sich $R_{AC,BD}$ um den Wert $\Delta R_{AC,BD}$ ändert.

Der Hall-Koeffizient A_H ergibt sich durch:

$$A_H = \frac{d}{B} \cdot \Delta R_{AC,BD} \quad (3.10)$$

Durch Anlegen eines Magnetfelds \vec{B} wirkt auf die Ladungsträger q eine Lorentzkraft senkrecht zur Stromrichtung und zum Magnetfeld:

$$\vec{F} = q \cdot \vec{v} \times \vec{B}. \quad (3.11)$$

Mit der Stromdichte $\vec{j} = q \cdot n \cdot \vec{v}$, Ausrechnen der einzelnen Raumkomponenten, Umformen nach v_x und Einsetzen erhält man eine Feldstärke von:

$$E_H = \frac{1}{nq} j_x B_z = A_H j_x B_z, \quad (3.12)$$

mit der Hallkonstanten $A_H = 1/(nq)$, aus der bei bekannter Ladung q die Ladungsträgerdichte n bestimmt werden kann.

3.6 Probenherstellung und Charakterisierung

Silberselenid–Proben ($\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$)

Die $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ –Schichten wurden von B. Mogwitz und C. Korte am Institut für Physikalische Chemie der JLU Gießen hergestellt. Bei der Herstellung der Schichten mittels PLD wird durch hochenergetische Laserpulse Material von der Oberfläche eines Targets verdampft und dann als dünne Schicht auf einem Substrat kondensiert (siehe Abb. 3.15).

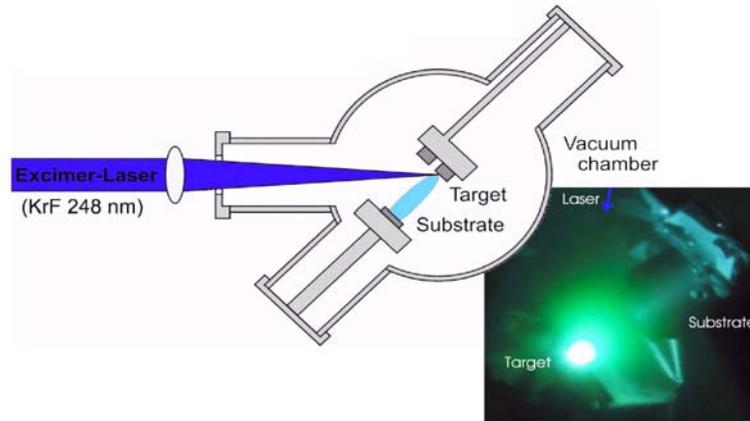


Abbildung 3.15: Schematische Darstellung der PLD und Foto des PLD–Vorgangs (aus [174]).

Das verdampfte Material bewegt sich senkrecht vom $\text{Ag}_{2.35}\text{Se}$ –Target weg zum MgO –Substrat, wo durch Kondensation die Schicht entsteht. Der Prozess findet in einer Vakuum–Kammer statt, die mit Prozess–Gas geflutet werden kann. Mit der PLD können auch für größere Schichtdicken ($d \approx 1 \mu\text{m}$) sehr dichte Schichten hergestellt werden. Die Schichtdicken sowie die genaue Zusammensetzung der Proben wurde ebenfalls am Institut für Physikalische Chemie der JLU Gießen mittels REM und EDX bestimmt. Zur Bestimmung der Schichtdicke mittels REM wurden die Proben senkrecht auf dem Probenhalter des REMs positioniert und die Stirnseite der Schicht abgerastert. Damit konnten Probendicken bis 50 nm auf wenige nm genau bestimmt werden. Geringere Schichtdicken konnten aus der Ablationszeit bis auf etwa 10 % genau bestimmt werden.

Abbildung 3.16 zeigt beispielhaft eine REM–Aufnahme einer 730 nm dicken $\text{Ag}_{2.4}\text{Se}$ –Schicht, deren polykristalline Natur deutlich zu sehen ist, sowie die lineare Abhängigkeit der Korngröße von der Schichtdicke, die ebenfalls aus den REM–Messungen bestimmt wurde.

Zur Bestimmung der Zusammensetzung mittels EDX wurde an mehreren Stellen der Probe die Silberkonzentration gemessen und anschließend über die einzelnen Werte gemittelt. Trotzdem erreicht man hierdurch nur eine Genauigkeit von etwa 5 %. Zudem konnte die Silberkonzentration für Schichten unterhalb von 100 nm Dicke nicht mehr bestimmt werden, da ein starker Mg–Peak des MgO –Substrats, auf dem die Schichten aufgebracht sind, den Silberpeak überlagerte.

Eine Übersicht über die Zusammensetzung der Proben gibt Tabelle 3.3.

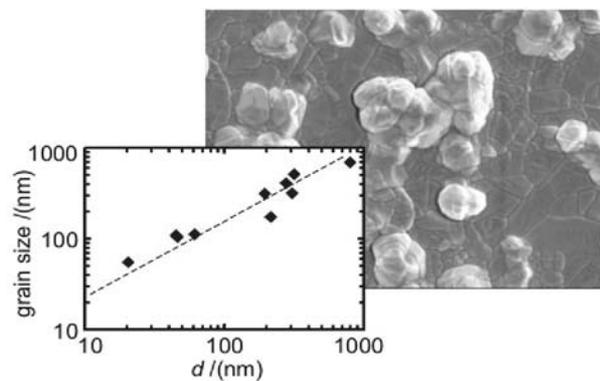


Abbildung 3.16: REM-Bild einer 730 nm dicken $\text{Ag}_{2.4}\text{Se}$ -Schicht sowie Abhängigkeit der Korngröße von der Schichtdicke.

Silbergoldtellurid-Proben ($\text{Ag}_3\text{Au}_{1.1}\text{Te}_2$)

Die $\text{Ag}_3\text{Au}_{1.1}\text{Te}_2$ -Probe wurde am Max-Planck-Institut in Stuttgart durch direkte Festkörperreaktion hergestellt. Dazu wurde ein stöchiometrisches Gemenge der Elemente in evakuierten und ausgeglühten Quarzampullen auf 700 °C erhitzt und rasch abgeschreckt. Der resultierende Schmelzregulus wurde durch Mörsern homogenisiert, zu einer Tablette gepresst und bei 300 °C einen Monat getempert und erneut abgeschreckt.

Aufgrund der unregelmäßigen Oberfläche der Probe erwies sich deren Kontaktierung als sehr kompliziert — die Kontaktdrähte wurden darauf gepresst und mit Teflon-Band daran fixiert (siehe Abb. 3.17).



Abbildung 3.17: Kontaktierung der Ag_3AuTe_2 -Bulk-Probe.

Durch das Abkühlen und wieder Aufwärmen der Probe ist allerdings ungewiss, ob die so fixierten Kontakte über den ganzen Temperaturbereich konstant waren, so dass zur nochmaligen Messung mit sicherer Kontaktierung die Bulk-Probe am Institut für Physikalische Chemie der JLU Gießen in dünne Scheiben geschnitten wurde. Dabei entstanden zwei Proben mit glatten Oberflächen zur Auflage auf die Kontaktdrähte und Befestigung mittels der Anpressschrauben. Die genaue Struktur der Probe wurde am MPI in Stuttgart mittels HRTEM-Messungen an einem Elektronenmikroskop CM 30ST der Firma *Philips* bestimmt. An diesem Gerät können drei verschiedene strukturbestimmende Methoden angewandt werden: Elektronenbeugung zur Bestimmung des reziproken Gitters eines Kristalls, Abbildung der untersuchten Schicht und Bestimmung der Schichtzusammensetzung über EDX.

Probenbezeichnung	Probendicke [nm]	Zusammensetzung x
131103	115	2.7692
071103	130	2.9236
240703	190	2.4129
121103	210	2.6214
050503	270	2.4237
240303	300	2.4734
061103	305	2.7574
300603	310	2.4125
020703	540	2.4008
010703	680	2.3162
060603	720	2.2406
030603	730	2.2921
091003	780	2.3023
250403	1140	2.2186
161003	1845	2.3667
081003	2305	2.4043

Tabelle 3.3: Zusammensetzung der Ag_xSe -Schichten. Die Schichten mit Dicken $d < 100$ nm sind hier nicht aufgeführt, da ihre Stöchiometrie nicht bestimmt werden konnte.

Bei der Abbildung der Schicht ist zu beachten, dass die Kontraste der erhaltenen Bilder durch unterschiedliche Mechanismen zustande kommen. Bei dicken und nicht orientierten Proben dominiert der Massendickekontrast, bei ausreichend dünnen und orientierten Objekten hingegen wird der Beugungskontrast bildbestimmend. Kontrastinformationen werden durch geeignete Blenden akzentuiert, z. B. der Beugungskontrast in Hell- bzw. Dunkelfeldaufnahmen, so dass Übersichtsabbildungen von Domänenkristallen angefertigt werden können.

In hochaufgelösten Abbildungen dünner Objekte dominiert der Phasenkontrast, der nicht nur durch die Probe, sondern auch durch den Abbildungsvorgang selbst beeinflusst wird. Die Abbildungen entsprechen somit in keinem Fall exakt einem direkten optischen Bild des Objektes. Die Kontrastübertragung in Abhängigkeit von Mikroskopparametern wird durch die komplexe Objektivlinsen-Kontrasttransferfunktion (OKTF) beschrieben [175]. Eine besonders günstige Übertragung ergibt sich für den sog. Scherzer Fokus [176], bei dem maximaler und negativer Phasenkontrast auftritt. Die Phaseninformation bricht allerdings bei endlicher Raumfrequenz ab, so dass die Übertragung höherer Raumfrequenzen durch Defokussierung verstärkt werden muss. Aus diesem Grunde wurden systematische Defokussierungen („Fokussieren“) bei der Untersuchung des Materials durchgeführt — eine zeitaufwendige und experimentell schwierige Technik.

Im Scherzer Fokus können strukturell direkt interpretierbare Abbildungen an dünnen Kristallen aufgenommen werden. Unter der Näherung des schwachen Phasenobjekts [175] ist eine direkte Beziehung zwischen dem projizierten Kristallpotential und dem Kontrast gegeben: Die dunklen Kontraste entsprechen Positionen mit hohem Betrag des projizierten Kristallpotentials — also Atomsäulen; die weißen Kontraste korrelieren mit niedrigem Betrag des projizierten Kristallpotentials — also mit Lücken der Struktur in der gegebenen Projektion.

Der entscheidende Punkt an der Auswertung dieser Bilder ist das Auffinden des zugrundeliegenden Strukturmodells, das mittels Simulationen bestimmt wird. Im Falle aperiodischer Defekt-

strukturen müssen die Defekte in geeignete Strukturmodelle eingebracht werden.

Abbildung 3.18 zeigt die Ergebnisse der HRTEM–Aufnahmen der Probe. Wie erwartet, ist die Struktur polykristallin, mit gegeneinander verkippten Nanodomänen, die vermutlich durch das Abschrecken der Probe und der damit verbundenen Phasenumwandlung bei der Herstellung entstanden. Im rechten Bild der Abbildung wird für die einzelnen Domänen ein Röntgenbeugungsbild gezeigt, in das die Lage der Achse weiß eingetragen ist, um die Verkipfung der Domänen zu verdeutlichen. Der Goldüberschuss kumuliert an den Kristallrändern und an der Oberfläche der Probe und ist in Abbildung 3.18 links als Punkte in der Struktur der Nanokristalle zu erkennen.

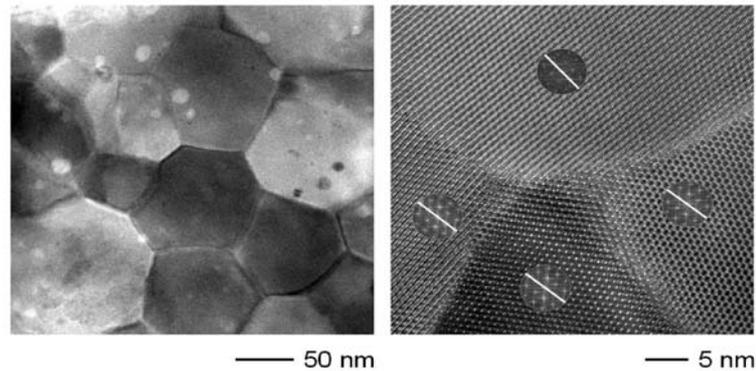


Abbildung 3.18: HRTEM–Aufnahmen der Ag_3AuTe_2 –Probe. Der Maßstab ist unter den Bildern dargestellt. In der rechten Abbildung sind zusätzlich die Beugungsbilder der jeweiligen Nanodomäne dargestellt sowie die Symmetrieachse der Domäne, wobei man erkennt, dass die Achsen leicht gegeneinander verkippt sind.

Abbildung 3.19 zeigt die HRTEM–Aufnahmen für die beiden kubischen Achsen $[100]$ und $[111]$, die daraus berechneten Potentiale sowie die aus Simulationen erhaltene zugrundeliegende Kristallstruktur, die das in der Literatur beschriebene Basistrukturmodell bestätigen.

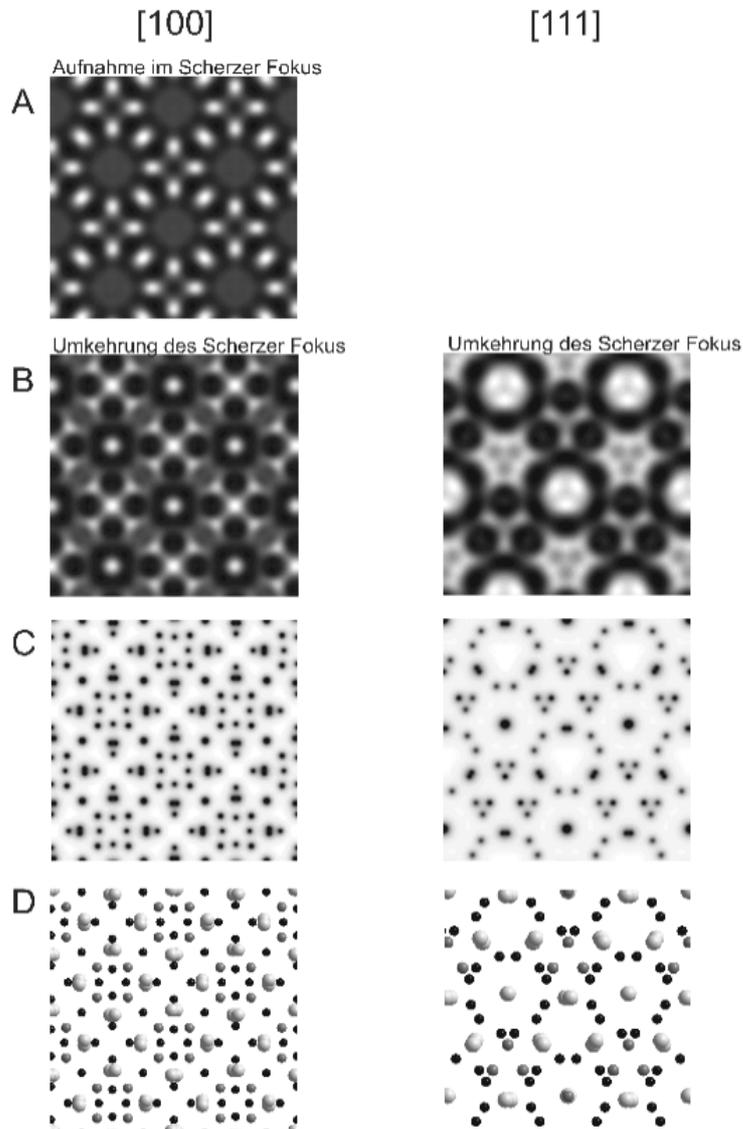


Abbildung 3.19: HRTEM-Aufnahmen der [100]- und [111]-Ebenen der Ag_3AuTe_2 -Probe. Links sind die Ergebnisse der [100]-Ebene, rechts die der [111]-Ebene dargestellt. A: Aufnahme im Scherzer Fokus (lieferte nur für die Ebene [100] ein brauchbares Bild). B: Aufnahme bei einer Fokussierung, die der Umkehrung des Scherzer Fokus entspricht. C: Aus den Abbildungen berechnete Potentiale. D: Aus den Potentialen berechnete Atomverteilung. Dabei entsprechen die weißen Kugeln den Silberatomen, die hellgrauen repräsentieren die Au-Atome und die schwarzen die Te-Atome.

Kapitel 4

Messungen und Ergebnisse

Inhaltsverzeichnis

4.1 Messungen an Silberselenid $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$	99
4.1.1 Hall-Messungen an den Silberselenid-Schichten	101
4.1.2 Magnetoresistive Messungen an den Silberselenid-Schichten	104
4.1.3 Auswertung der Schwachen Lokalisierung	110
4.1.4 Modellierung und Erklärung zur Mikrostruktur in dünnen $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ - Schichten	121
4.1.5 Auswertung des LMR	134
4.1.6 Messungen bei Raumtemperatur	138
4.2 Messungen an Silbergoldtellurid Ag_3AuTe_2	139

In diesem Kapitel werden die Magnetowiderstands-Messungen an den in Kapitel 3.6 vorgestellten Proben, die Auswertung und Interpretation der Daten sowie die daraus resultierenden Zusammenhänge mit der Theorie präsentiert.

4.1 Messungen an Silberselenid $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$

An den Silberselenid-Proben wurden folgende Messungen durchgeführt:

- Messung des transversalen MR ($B \perp I$ und $B \parallel \square$) über eine vier-Punkt-Geometrie bei Temperaturen von 4.2 K und 290 K bis zu einer Feldstärke von 14 T am 17-Tesla-Kryo-Magnetsystem des Instituts für Angewandte Physik der JLU Gießen,
- Messung des longitudinalen MR ($B \parallel I$ und $B \parallel \square$) über eine vier-Punkt-Geometrie bei einer Temperatur von 4.2 K bis zu einer Feldstärke von 12 T,
- Messung des polaren MR ($B \perp I$ und $B \perp \square$) über eine vier-Punkt-Geometrie bei einer Temperatur von 4.2 K bis zu einer Feldstärke von 14 T,
- Messung des spezifischen Widerstandes, der Ladungsträgerdichte und Ladungsträgerbeweglichkeit in einer typischen van-der-Pauw-Konfiguration (siehe Kapitel 3.5 und [173]) am I. Physikalischen Institut der JLU Gießen. Die Apparatur dort erlaubte leider keine Messungen bei Temperaturen flüssigen Heliums, so dass nur Daten bis maximal hinab zu Temperaturen flüssigen Stickstoffs (77 K) erhoben werden konnten.

Messung des spezifischen Widerstandes als Funktion der Schichtdicke

Im Rahmen der MR-Messungen wurde über eine vier-Punkt-Messung der spezifische Widerstand der Proben bei Nullfeld und einer Temperatur von 4.2 K aufgenommen und in Abhängigkeit von der Schichtdicke der Proben evaluiert (siehe Abb. 4.1) . Um die gemessenen Werte einordnen zu können, wurde anhand des Size-Effektes für dünne Schichten nach Fuchs-Sondheimer und dünne Drähte nach Nordheim (siehe Kap. 2.3.3) der erwartete spezifische Widerstand für eine entsprechend dicke Schicht aus reinem Ag_2Se (mit einer mittleren freien Weglänge für Ag_2Se gemäß der Literatur von 128 nm) sowie reinem Ag berechnet und mit den Messwerten verglichen.

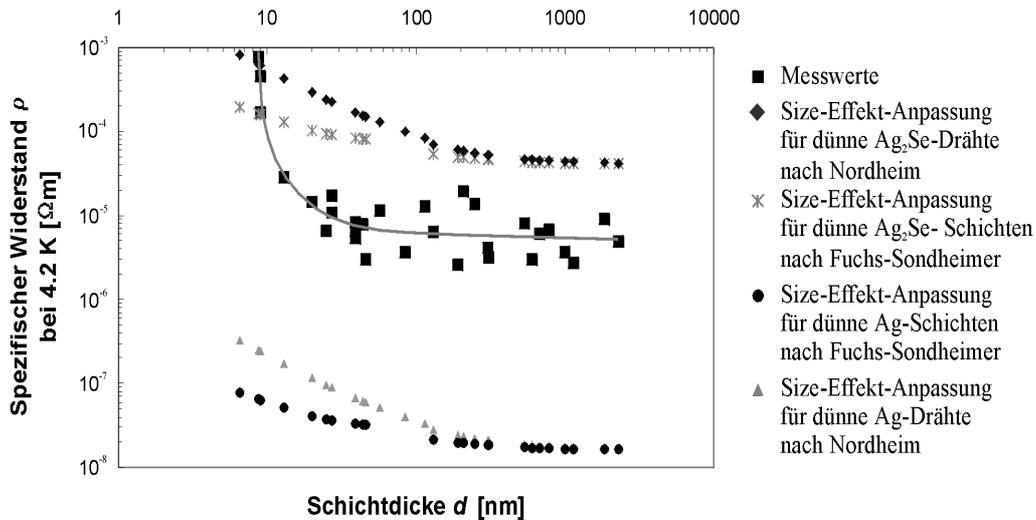


Abbildung 4.1: Spezifischer Widerstand ρ als Funktion der Schichtdicke d bei einer Temperatur von 4.2 K. Die durchgezogene Linie verdeutlicht den Verlauf der Messwerte.

Der gemessene spezifische Widerstand der Proben entspricht bei sehr geringen Schichtdicken $d < 10$ nm etwa einem theoretisch für Ag_2Se -Drähte erwarteten Wert, der nur leicht über dem Wert für dünne Schichten aus Ag_2Se liegt. Mit zunehmender Schichtdicke sinkt ρ aber wesentlich stärker als erwartet ab und ist schon ab 27 nm um ca. eine Größenordnung kleiner als es in reinen Ag_2Se -Schichten dieser Dicke theoretisch zu erwarten wäre. Allerdings liegt der gemessene spezifische Widerstand mit zwei Größenordnungen deutlich über dem Wert, den reine Silberschichten dieser Dicke haben müssten. Das führt zu dem Schluss, dass in den Schichten Silberkörner und -pfade in der Silberselenidmatrix zur Erhöhung der Leitfähigkeit beitragen, allerdings ist dieses leitfähige Gerüst in der Größenordnung von nm und je nach Perkolationszustand der Probe von der Ag_2Se -Matrix unterbrochen. Daher ist die Struktur weit von einer durchgehenden Silberschicht entfernt, was den im Vergleich zu einer Silberschicht viel höheren Widerstand plausibel erklärt.

Messung der elektrischen Leitfähigkeit als Funktion der Silberkonzentration

Ein qualitativ analoges Leitfähigkeitsverhalten, allerdings nicht in Abhängigkeit von der Schichtdicke, sondern der Silberkonzentration x , wurde schon von Kreuzbruck et al. in dünnen Ag_xSe -Proben beobachtet [22, 174] (siehe Abb. 4.2).

Bei geringen Silberkonzentrationen $x \approx 1.5$ fanden sie einen spezifischen Widerstand von etwa 10^{-2} Ωcm , der mit steigender Silberkonzentration bis $x = 18$ auf etwa 10^{-5} Ωcm abfällt — eine

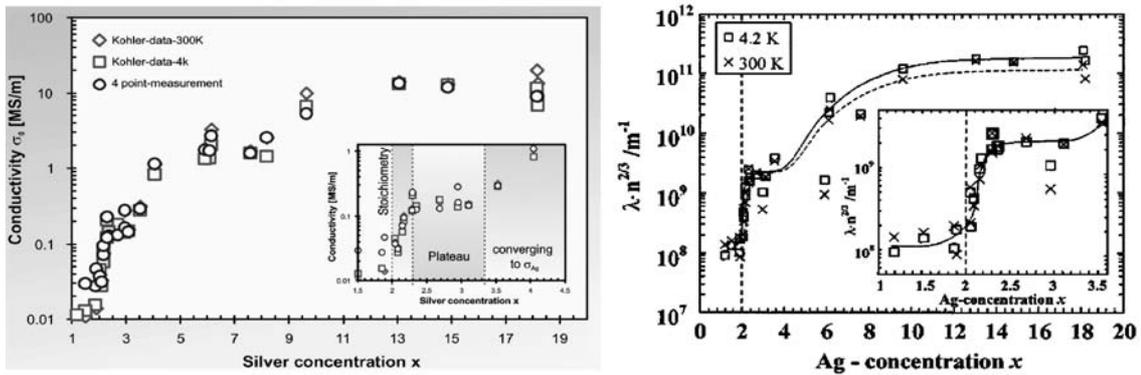


Abbildung 4.2: Leitfähigkeit (links) [174] und Produkt aus freier Weglänge λ und Ladungsträgerdichte $n^{2/3}$ (rechts) als Funktion der Silberkonzentration [22].

Abnahme von über drei Größenordnungen. Dabei sinkt im Bereich $2 < x < 2.5$ der Widerstand um mehr als eine Größenordnung bei einer sehr großen Streuung der Messwerte. Anhand der dazugehörigen Messung der mittleren freien Weglänge λ und der Ladungsträgerdichte n erkennt man bei Auftragung des Produkts $\lambda \cdot n^{2/3}$ in Abhängigkeit von der Silberkonzentration, dass bei einer Konzentration von $2 < x < 2.5$ diese Größe ebenfalls um eine Größenordnung steigt. Ein derartiger Sprung ist sonst im kompletten Kurvenverlauf nicht mehr erkennbar. Kreuzbruck et al. interpretierten dieses Verhalten als Perkulationserscheinung elementaren Silbers in der Silberselenid-Matrix und wiesen anhand von HRTEM-Aufnahmen die Richtigkeit ihrer Erklärung nach (siehe auch Kap. 3.1, Abb. 3.4 und 3.5).

4.1.1 Hall-Messungen an den Silberselenid-Schichten

Zur vertiefenden Untersuchung der in den Silberselenid-Proben vorliegenden physikalischen Realität wurden Hall-Messungen bei Nullfeld und Raumtemperatur an den Schichten durchgeführt, wobei mit einer van-der-Pauw-Konfiguration der spezifische Widerstand, die Ladungsträgerdichte sowie die Ladungsträgerbeweglichkeit ohne Einfluss der Schichtdicke gemessen wurden.

Der Verlauf der hierbei erhaltenen Daten zeigt eine bemerkenswerte Besonderheit: Die Proben können anhand ihres spezifischen Widerstandes ρ in zwei Kategorien eingeteilt werden (Abb. 4.3). Bis zu einer Schichtdicke von 39 nm beträgt ρ nahezu konstant 0.76 m Ω cm und sinkt dann sprunghaft auf ca. 0.36 m Ω cm ab. Unterhalb von 40 nm gibt es nur eine Probe mit einem geringen Widerstandswert (39 nm - Probe 291103), während sich oberhalb von 40 nm nur noch zwei Proben (44 nm - Probe 121203 und 57 nm - Probe 171103) mit erhöhtem Widerstandswert finden. Die untersuchten Proben haben einen Silberüberschuss von etwa $\delta \approx 0.4$, der knapp über der Perkulationsgrenze von $\delta \approx 0.3$ liegt. Daher ist dieser Widerstandsverlauf eine Stärkung der Annahme eines Perkulationsübergangs in den Schichten, der bei etwa einer Schichtdicke von 40 nm einsetzt.

Wie in Kapitel 3.1 und 3.6 erwähnt, hängt die Menge der Silberausscheidungen stark von der Korngröße ab, die wiederum proportional zur Schichtdicke ist [163]. Mit zunehmender Schichtdicke wächst die Korngröße und damit sinkt der für Silberablagerungen verfügbare Raum zwischen den einzelnen Körnern, so dass sich das ausscheidende Silber auf ein geringeres Volumen verteilen muss. Damit steigt die Wahrscheinlichkeit für perkolierende Silberpfade mit der Schichtdicke an. Bei dieser Betrachtung kann man einwenden, dass die Silberkonzentration in

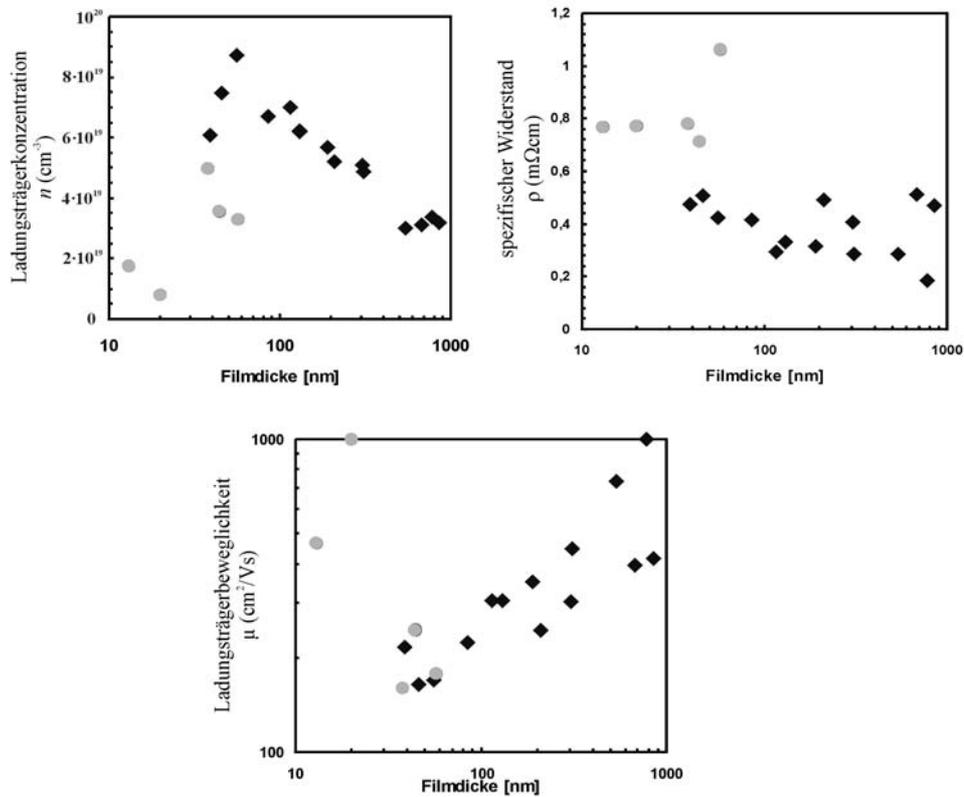


Abbildung 4.3: Ergebnisse der Hall-Messung an den $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ -Schichten als Funktion der Schichtdicke. Oben links: Ladungsträgerkonzentration n , oben rechts: spezifischer Widerstand ρ , unten: Mobilität μ . Graue Punkte: Proben in denen keine perkolierten Silberpfade angenommen wurden, schwarze Rauten: Proben mit angenommenen perkolierten Silberpfaden.

den $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ -Schichten nicht konstant ist, sondern geringfügig variiert (siehe Tabelle 3.3), allerdings erkennt man beim direkten Vergleich der Proben mit erhöhtem Widerstand mit den Proben verringerter Silberkonzentration, dass diese beiden Größen nicht korrelieren, so dass dieser Zusammenhang verworfen werden kann.

Die Messung des Hall-Effekts enthüllt, dass der relativ konstante spezifische Widerstand der Proben aus einem gegensätzlichen Verhalten der Ladungsträgerdichte n und der Beweglichkeit μ resultiert, die bei dem Phasenübergang keinen Sprung der Werte zeigen, sondern einen kontinuierlichen Übergang. Trotzdem beobachtet man ein unterschiedliches Verhalten der beiden Phasen: Bis zu einer Filmstärke von etwa 60 nm steigt die Ladungsträgerkonzentration n von etwa 10^{19} cm^{-3} auf ca. $9 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ und sinkt anschließend wieder auf etwa $3 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ ab, während die Ladungsträgerbeweglichkeit μ von $700 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ für dünne Schichten auf $200 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ bei 60 nm sinkt, um dann wieder auf ca. $700 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ bei der 1000 nm dicken Schicht zu steigen (Abb. 4.3, oben links und unten). Damit ist die mittlere Beweglichkeit einer 40 nm dicken Probe etwa um einen Faktor 3 geringer als $\langle \mu \rangle$ einer 1 μm dicken Schicht, während die Ladungsträgerdichte n mit zunehmender Schichtdicke sinkt.

Die Erklärung dieses Verhaltens kann auf zwei sich überlagernde Effekte zurückgeführt werden, die beide davon abhängen, wie viel Überschuss-Silber zu dem leitfähigen Gerüst in der Silberselenid-Matrix beiträgt. Erstens wird durch Reduktion der Korngröße nicht nur das erwähnte verfügbare Volumen für Silberablagerungen zwischen den Körnern erhöht, sondern

auch die Anzahl an Korngrenzen und Versetzungen, an denen sich das Silber bevorzugt absetzt. Dadurch lagert sich das Silber in perkolierten Schichten mehr in Form von Pfaden entlang der Korngrenzen ab als in Form isolierter Silbercluster innerhalb von großen Silberselenid-Körnern. Dies wiederum führt zu einer erhöhten Ladungsträgerdichte, da der elektrische Transport vorrangig in den Silberpfaden stattfindet, wodurch das Absinken der Ladungsträgerdichte n mit zunehmender Schichtdicke bei den perkolierten Schichten erklärbar wird. Bei den nicht-perkolierten Schichten steigt n dagegen mit zunehmender Schichtdicke an, da mit zunehmender Annäherung an die Perkulationsgrenze immer mehr elementares Silber am Ladungstransport teilnimmt. Der zweite Effekt basiert darauf, dass die Beweglichkeit μ der Ladungsträger im Silber etwa zwei Größenordnungen kleiner ist als im Silberselenid. Durch die Verlagerung des elektrischen Transports von der Silberselenid-Matrix in die Silberpfade beim Übergang von nicht-perkolierten zu perkolierten Proben sinkt also die Beweglichkeit erheblich. Da die am Transport teilnehmenden Silberpfade an der Perkulationsgrenze physikalisch sehr geringe Abmessungen aufweisen, unterliegen sie einem starken Size-Effekt, der mit zunehmender Schichtdicke wieder abnimmt, so dass die Beweglichkeit mit zunehmender Schichtdicke bei den perkolierten Proben wieder ansteigt.

4.1.2 Magneto-resistive Messungen an den Silberselenid-Schichten

Um den LMR zu studieren, werden nun die Ergebnisse der magneto-resistiven Messungen an der Probenreihe dargestellt. Untersucht wird das magneto-resistive Verhalten, insbesondere der Verlauf der Kurven und die daraus ermittelbare magnetische Flussdichte B_{linear} , bei welcher der Übergang vom quadratischen Verlauf des OMR zum linearen Verlauf des LMR auftritt.

Es liegt in der Natur der Sache, nämlich in der niederen Dimensionalität der Schichten, dass auch das Phänomen der schwachen Lokalisierung (WL) den Kurvenverlauf beeinflusst. Für die Untersuchung des LMR ist dieses zum einen nützlich, denn es hilft, Rückschlüsse auf die Mikrostruktur und den Perkollationsgrad der Proben zu ziehen. Andererseits überlagern sich die beiden Effekte (WL und LMR), insbesondere bei sehr dünnen Schichten, wodurch die Charakterisierung der Größen MR und B_{linear} erschwert wird.

In diesem Kapitel werden die Rohmessungen vorgestellt, in denen beide Effekte in Abhängigkeit der Schichtdicke erkennbar sind.

Die Abbildungen 4.4 bis 4.10 zeigen die MR-Kurven ($MR = (R_{B=0} - R_B) / (R_{B=0}) \cdot 100 \%$) der $Ag_{2+δ}Se$ -Schichten bei 4.2 K. Dabei werden drei unterschiedliche Ausrichtungen der magnetischen Feldstärke B , des Stroms I durch die Probe sowie der Probenebene \square zueinander untersucht: transversal ($B \perp I$ und $B \parallel \square$ — Abb. 4.4 und 4.8), longitudinal ($B \parallel I$ und $B \parallel \square$ — (Abb. 4.5 und 4.9) und polar ($B \perp I$ und $B \perp \square$ — Abb. 4.6 und 4.10).

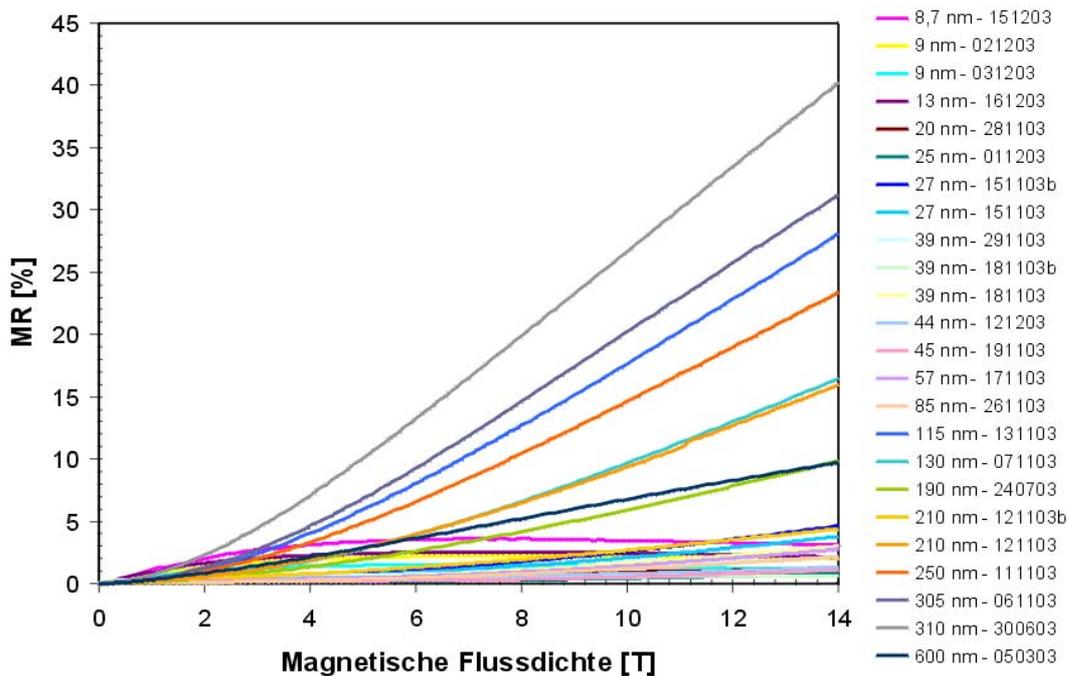


Abbildung 4.4: Transversaler Magnetowiderstand der $Ag_{2+\delta}Se$ -Schichten bei 4.2 K.

In allen drei Messkonfigurationen finden sich folgende grundlegende Verhaltensweisen des magneto-resistiven Verhaltens (Abb. 4.4, 4.5 und 4.6):

- **Mit sinkender Schichtdicke nimmt der maximale MR-Wert ab (Abb. 4.7).** Der LMR sinkt nahezu linear mit sinkender Schichtdicke, erreicht bei einer Schichtdicke von ca. 100 nm Werte von etwa 10 % bei der transversalen und longitudinalen Ausrichtung,

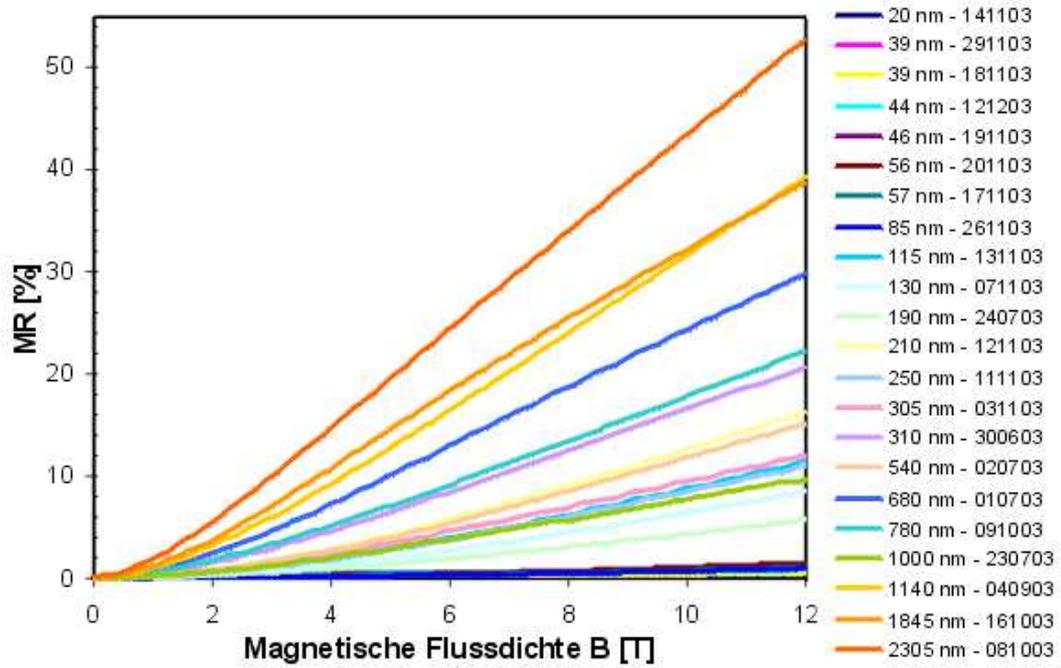


Abbildung 4.5: Longitudinaler Magnetowiderstand der $Ag_{2+\delta}Se$ -Schichten bei 4.2 K.

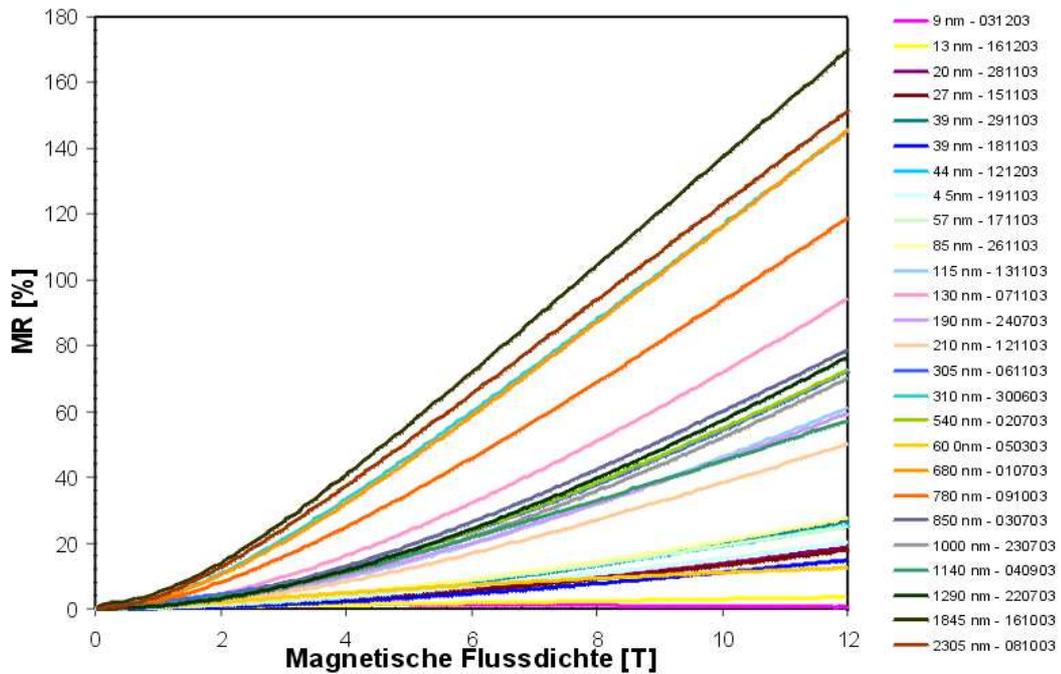


Abbildung 4.6: Polarer Magnetowiderstand der $Ag_{2+\delta}Se$ -Schichten bei 4.2 K.

von 50 % bei der polaren Messkonfiguration. Unterhalb von 100 nm Schichtdicke bricht der lineare Verlauf ab, was darauf hindeutet, dass die physikalische Skalenlänge von dieser Größenordnung ist. Die große Streuung der MR-Werte ist ein zusätzlicher Hinweis, dass die vorliegende physikalische Skalenlänge als Ergebnis des PLD-Herstellungprozesses und der statistischen Natur der Mikrostruktur variiert.

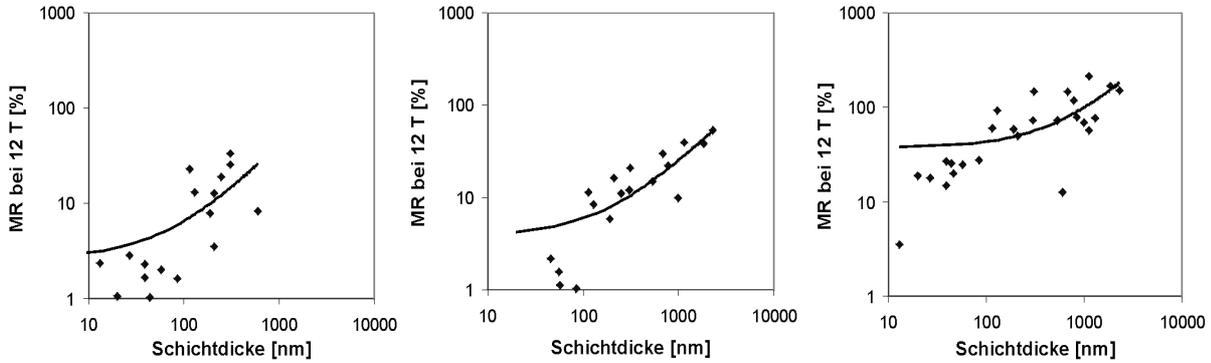


Abbildung 4.7: Magnetowiderstand als Funktion der Schichtdicke bei einer Feldstärke von 12 T für die transversale (links), longitudinale (Mitte) und polare (rechts) Messkonfiguration.

- Bei niedrigen Feldstärken verlaufen die MR-Kurven gemäß dem OMR quadratisch mit B , bei höheren Feldern linear mit B , wobei der Übergang vom quadratischen zum linearen Verhalten von der Schichtdicke abhängt.
- In dünnen Schichten (je nach Konfiguration bis maximal 200 nm) ist bei niedrigen Feldstärken durch die schwache Lokalisierung ein zusätzlicher Beitrag zum Widerstand der Proben zu erkennen, der das quadratische und lineare Verhalten überlagert.

Die beiden letztgenannten Punkte lassen sich durch Normierung der MR-Kurven verdeutlichen. Dabei wurden die Datenkurven der transversalen Messung auf den Wert bei 14 T (Abb. 4.8), die der longitudinalen und polaren Messung auf 12 T normiert (Abb. 4.9 und 4.10).

Anhand der normierten Datenkurven werden außerdem folgende Beobachtungen deutlich:

- Bei der transversalen Messung ist für Schichtdicken bis ca. 115 nm der in B quadratische Verlauf des OMR von dem zusätzlichen Beitrag der schwachen Lokalisierung der Elektronen überlagert (Abb. 4.8). Bei sehr dünnen Schichten dominiert dieses Phänomen den kompletten Verlauf (Schichten bis 13 nm), während es ab 20 nm Schichtdicke schwächer wird und der Beitrag des quadratischen (OMR) und linearen (LMR) Verlaufs der Kurve wieder in den Messungen zu sehen ist. Mit zunehmender Schichtdicke verringert sich der Beitrag der schwachen Lokalisierung weiter und erstreckt sich über einen immer weiter abnehmenden Magnetfeld-Bereich, ab Schichtdicken von ca. 115 nm ist sie nicht mehr in den Kurven zu erkennen (Abb. 4.11, links). Bei Schichtdicken ab 20 nm ist mit zunehmender Feldstärke nach Verlassen des Einflussbereichs der schwachen Lokalisierung in den Messkurven ein Übergang vom quadratischen Verhalten des OMR zum linearen B -Verlauf des LMR zu erkennen, der sich mit steigender Schichtdicke zu niedrigeren Feldstärken verschiebt (Abb. 4.11, rechts).

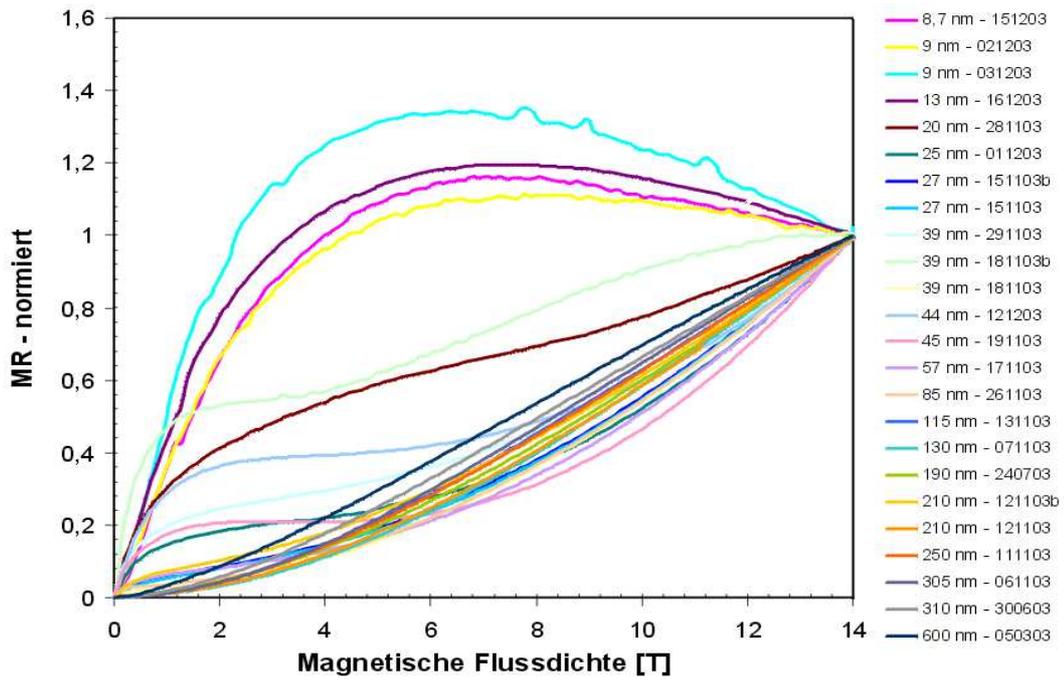


Abbildung 4.8: Transversaler Magnetowiderstand der Ag_{2+δ}Se-Schichten bei 4.2 K, normiert auf den Wert bei 14 T.

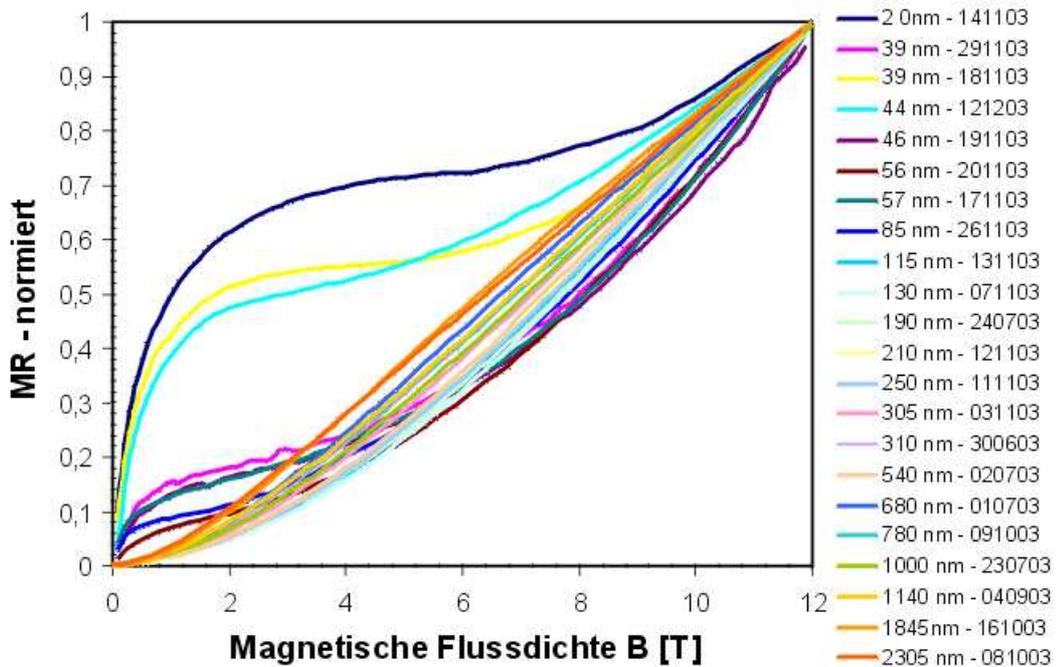


Abbildung 4.9: Longitudinaler Magnetowiderstand der Ag_{2+δ}Se-Schichten bei 4.2 K, normiert auf den Wert bei 12 T.

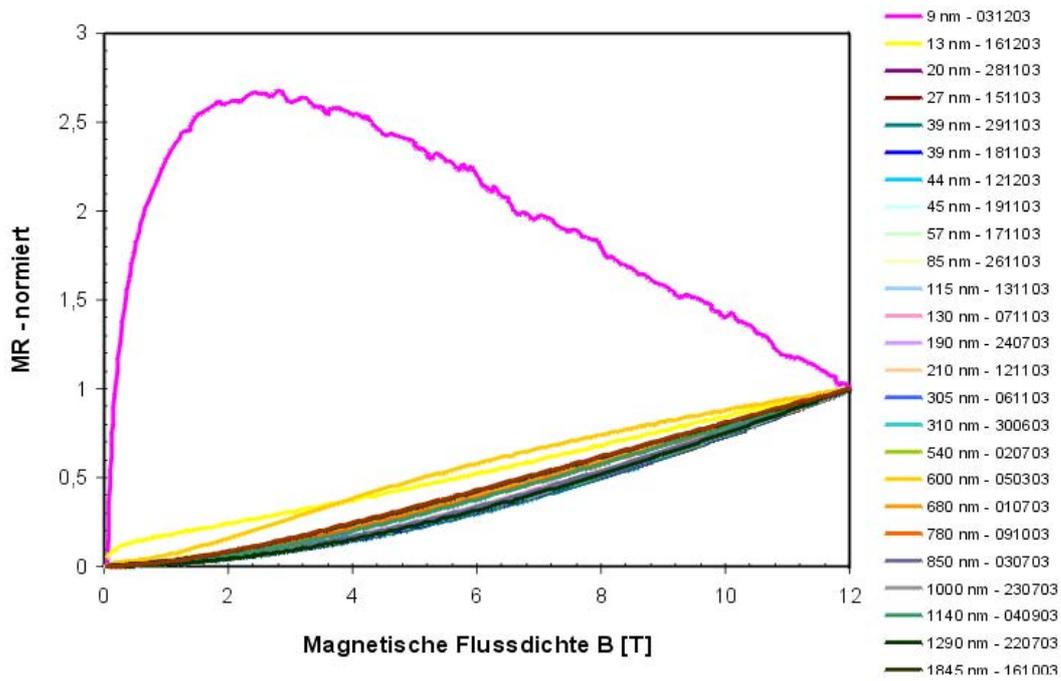


Abbildung 4.10: Polarer Magnetowiderstand der $Ag_{2+\delta}Se$ -Schichten bei 4.2 K, normiert auf den Wert bei 12 T.

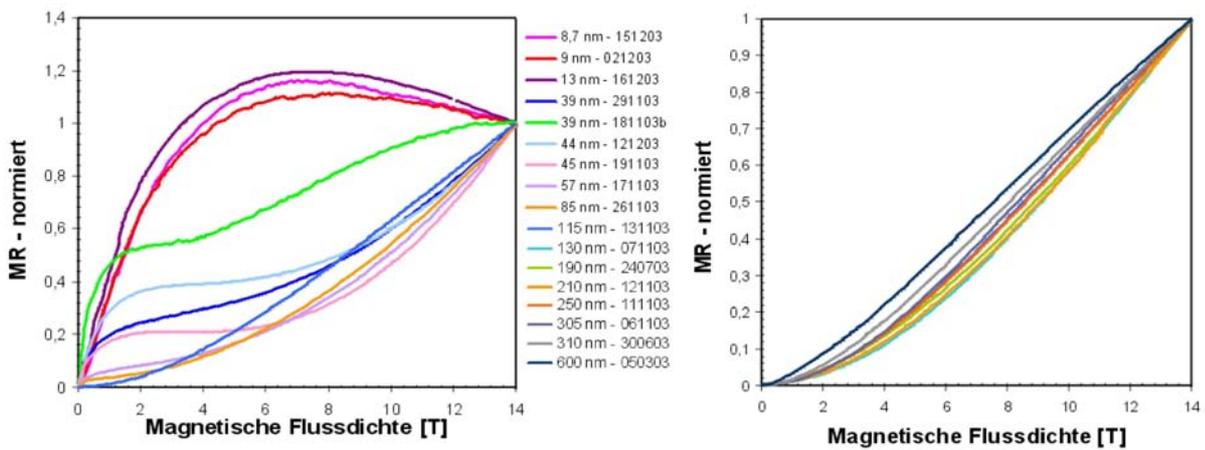


Abbildung 4.11: Schwache Lokalisierung (links) und LMR (rechts) der $Ag_{2+\delta}Se$ -Schichten bei 4.2 K, transversale Messkonfiguration.

- Bei der longitudinalen Messung ist der Beitrag der schwachen Lokalisierung nur bis zu Schichtdicken von 85 nm zu erkennen, die Daten für die 115 nm dicke Schicht zeigen schon keinen Einfluss dieses Phänomens mehr (Abb. 4.12, links). Hier ist aber ebenfalls der mit zunehmender Schichtdicke sich zu niedrigeren Feldern verschiebende Übergang vom quadratischen zum linearen Verlauf des MR zu erkennen (Abb. 4.12, rechts).

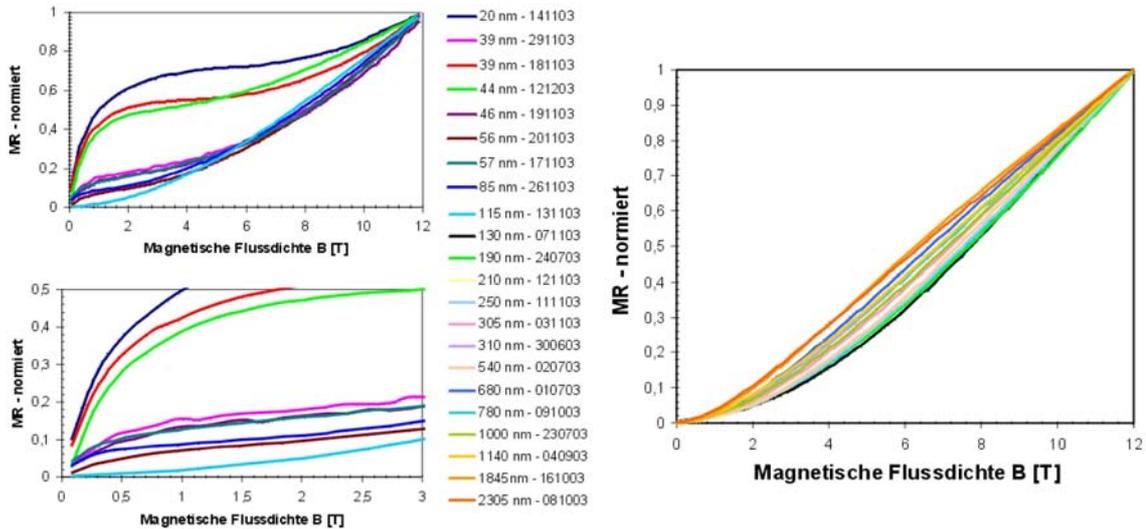


Abbildung 4.12: Schwache Lokalisierung (links) und LMR (rechts) der $Ag_{2+\delta}Se$ -Schichten bei 4.2 K, longitudinale Messkonfiguration.

- Bei der polaren Konfiguration, welche gemäß der durch das Magnetfeld erzeugten Trajektorien der Elektronen die 3D-Konfiguration darstellt, ist der Beitrag der schwachen Lokalisierung zum Gesamtwiderstand nur noch bei den Schichten bis 13 nm Dicke zu erkennen. Bei der genaueren Betrachtung des Niedrigfeldbereichs kann für Proben mit Schichtdicken bis zu 57 nm der Einfluss dieser Quanteninterferenz noch erahnt werden, doch ist dieser im Vergleich zu den anderen beiden Messkonfigurationen sehr viel geringer (Abb. 4.13, links). Wie bei den anderen beiden Messkonfigurationen zeigt sich hier auch der Übergang vom quadratischen zum linearen Verlauf des MR, der sich mit zunehmender Schichtdicke zu niedrigeren Feldern hin verschiebt (Abb. 4.13, rechts).

Anhand dieser Punkte wird klar, dass die schwache Lokalisierung bei der Auswertung der Messungen eine essentielle Rolle spielt. Daher müssen beide Aspekte evaluiert werden: der Beitrag der schwachen Lokalisierung und der LMR-Effekt, die beide abhängig von der Schichtdicke und damit der Mikrostruktur der Proben sind. Dabei kann die auf den ersten Blick störende schwache Lokalisierung dazu verwendet werden, zuverlässige Aussagen über die Mikrostruktur der Proben zu machen. Allerdings interferieren diese beiden Effekte in der Hinsicht miteinander, dass der Beitrag der schwachen Lokalisierung wie schon erwähnt den Übergang zwischen dem quadratischen und linearen B -Verhalten der MR-Kurven bei sehr dünnen Proben überlagert, so dass je nach Orientierung der Größen B , I und \square zueinander die Auswertung des LMR erst ab einer bestimmten Schichtdicke vorgenommen werden kann, oder die WL herausgerechnet werden muss. Letzteres gelingt, da der Beitrag der schwachen Lokalisierung bereits bei sehr kleinen Feldstärken (100 mT) gut ausgeprägt ist und i.d.R. auch für hohe Feldwerte konstant bleibt.

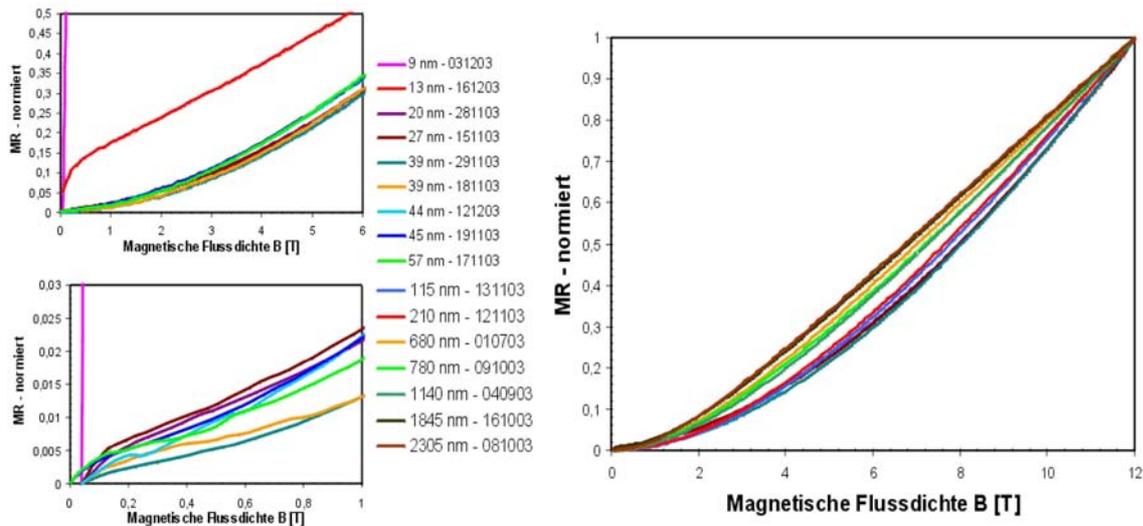


Abbildung 4.13: Schwache Lokalisierung (links) und LMR (rechts) der $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ -Schichten bei 4.2 K, polare Messkonfiguration.

4.1.3 Auswertung der Schwachen Lokalisierung

Zur näheren Untersuchung der Struktur der Proben, vor allem im Hinblick auf das Vorhandensein perkolierter leitender Silberpfade innerhalb der Silberselenid-Matrix, kann die schwache Lokalisierung herangezogen werden, die in dünnen Proben einen bedeutenden Beitrag zum Widerstand der Schichten leistet. Die entsprechenden Streulängen können Aufschluss über den elektrischen Transport innerhalb der Schichten und damit über die Mikrostruktur der untersuchten Proben geben, wie die Arbeitsgruppe um G. Dumpich in diversen Arbeiten an dünnen Goldschichten zeigte [189, 190, 191].

Dimension und Unordnung — Feststellung der vorliegenden Streumechanismen

Die Dephasierung in dünnen Filmen bzw. die bei der Zerstörung der Phasenkohärenz der Elektronenwellen beteiligten Mechanismen sind stark davon abhängig, welche Dimension und Unordnung in den untersuchten Proben bezüglich der einzelnen Streumechanismen vorherrschen. Wie in Kapitel 2.3.4 erläutert, kann die Dimension eines Films bezüglich unterschiedlicher Streumechanismen unterschiedlich sein.

Ein Film ist dreidimensional bezüglich des normalen Leitungsprozesses, wenn seine Dicke d größer als die mittlere freie Weglänge l ist. Anhand der Hall-Messungen kann die mittlere freie Weglänge über die Formel für das freie Elektronengas berechnet werden:

$$l = \frac{\hbar(3\pi^2)^{1/3}}{\rho e^2 n^{2/3}}, \tag{4.1}$$

wobei ρ der spezifische Widerstand und n die Ladungsträgerdichte des Materials sind.

Die mit dieser Formel erhaltenen elastischen freien Weglängen l_0 betragen bei geringen Schichtdicken (unter 30 nm) etwa 24 nm und sind damit größer als die Schichtdicke selbst, was auf ein zweidimensionales System hinweist. Ab den 30 nm dicken Schichten sinkt l_0 allerdings wieder auf Werte unterhalb der Schichtdicke, so dass ein dreidimensionales System bezüglich der normalen

Elektronenleitung vorliegt. Damit liegen die hier erhaltenen Werte etwa einen Faktor 5 unter dem von Damodara Das beobachteten Wert [155] und sind etwa halb so groß wie die von Gruhl referierten Ergebnisse [9]. Dies deutet darauf hin, dass die Unordnung in den hier untersuchten Schichten größer als in den bisher untersuchten Systemen ist.

Bezüglich Elektron–Elektron–Wechselwirkung ist ein Film als zweidimensional einzustufen, wenn $d^2 \ll D\hbar/(2\pi k_B T)$. Über die Einstein–Smoluchowski–Beziehung $D = k_B T \mu / e$, welche die Diffusionskonstante D mit der Beweglichkeit μ verknüpft, kann die Größe $\sqrt{D\hbar/(2\pi k_B T)}$ berechnet werden. Die damit erhaltenen Werte variieren zwischen 1.3 nm und 3.2 nm und sind damit immer kleiner als die Dicke der untersuchten Schicht sowie die angenommene Korngröße von einigen nm. Die entscheidende Bedingung bezüglich der Unordnung in den Filmen ist $\hbar/\tau < k_B T$. Da in unseren Proben \hbar/τ etwa eine Größenordnung größer ist als $k_B T$, sind die Proben für die Elektron–Elektron–Wechselwirkung im dreidimensionalen, sogenannten „sauberen“ Grenzfall (d.h. in einem gering gestörten System), so dass diese von der Elektron–Phonon–Streuung vollständig überlagert wird und damit vernachlässigt werden kann.

Zur Bestimmung der Dimension bezüglich Elektron–Phonon–Streuung müssen einige Größen beachtet werden: neben der Frequenz der Phononen unter anderem die Filmdicke und die akustische Transparenz zwischen Film–Substrat–Grenzflächen [59, 60, 61]. Üblicherweise wird die Dicke der Probe mit der wahrscheinlichsten Phononenwellenlänge $\lambda_{ph} = 2\pi/q_{ph}$ verglichen, wobei q_{ph} der charakteristische Phononenwellenvektor ist ($2k_B T/v_S$, mit v_S : Schallgeschwindigkeit). Ein Problem hierbei ist, dass die Schallgeschwindigkeiten für Silber und Silberselenid bei 4.2 K nicht in der Literatur zu finden sind. Mit einer mittleren Schallgeschwindigkeit von 2600 m/s in Bulk–Silber bei Raumtemperatur ergibt sich eine Phononenwellenlänge von 1.3 nm. Mit abnehmender Temperatur verringert sich die Schallgeschwindigkeit nach der Formel $v_T = v_{300K} \cdot (T/300 \text{ K})^{1/2}$ und wir erhalten eine wahrscheinlichste Phononenwellenlänge von etwa 11 nm — natürlich stimmt der Wert nur für reines Bulk–Silber, ist aber eine grobe Näherung. Dieser Wert würde für eine ganz knapp an der Grenze zur Zweidimensionalität liegende dreidimensionale Probe sprechen, doch wenn man berücksichtigt, dass die vorliegenden Silberstrukturen in der Probe in ihrer Dicke stark schwanken, kann man von einem System ausgehen, das sich im Übergang zwischen 2- und 3-Dimensionalität befindet.

Bezüglich der Unordnung bei Elektron–Phonon–Streuung befinden sich alle im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Filme im sogenannten „dirty limit“, d.h. einem stark gestörten Grenzfall: $k_F l \ll \theta_D/T$, wobei $k_F = (3\pi^2 n)^{1/3}$ und θ_D die Debye–Temperatur des Materials ist. In Ag ist die Debye–Temperatur $\theta_D = 226 \text{ K}$, während sie für Ag_2Se in der Literatur nicht angegeben wird. Daher wurde aus den dokumentierten Werten von 225 K für AgGaSe_2 und 154 K für AgInSe_2 [192] durch Mittelung ein Wert von 185 K abgeschätzt.

Bestimmung der Streulängen L_i und L_{SO}

Der Beitrag der schwachen Lokalisierung äußert sich in dem erhöhten MR–Verlauf bei dünnen Schichtdicken und geringen Magnetfeldstärken, der mit den Begründungen aus dem obigen Absatz zur Dimensionalität mit den in der Theorie genannten Formeln gefittet werden kann. Formel 2.103 beschreibt in zweidimensionalen Proben den Verlauf der MR–Kurve bei den transversalen und polaren Messungen, da bei beiden $B \perp I$ ist, während Gleichung 2.105 den Verlauf des longitudinalen MR beschreibt.

Anhand der Gleichung des zweidimensionalen Magnetowiderstands (Gl. 2.103) wurde ein Fit der experimentellen Werte an die Kurven vorgenommen und dabei die Werte für die Spin–Orbit–Streulänge L_{SO} und die inelastische Streulänge L_i berechnet.

Abbildung 4.14 zeigt beispielhaft für einige Schichten die durchgeführten Fits, wobei man erkennt, dass die Kurvenanpassung für geringe Schichtdicken (8 nm - 13 nm) sehr gut ist, mit zunehmender Schichtdicke aber ungenauer wird und ab 115 nm Schichtdicke keine sinnvollen Ergebnisse mehr liefert. Es ist möglich, bei der 115 nm und 130 nm dicken Schicht nur die Messpunkte bis 0.5 T zu fitten, doch sind die entsprechenden Werte mit Vorsicht zu genießen.

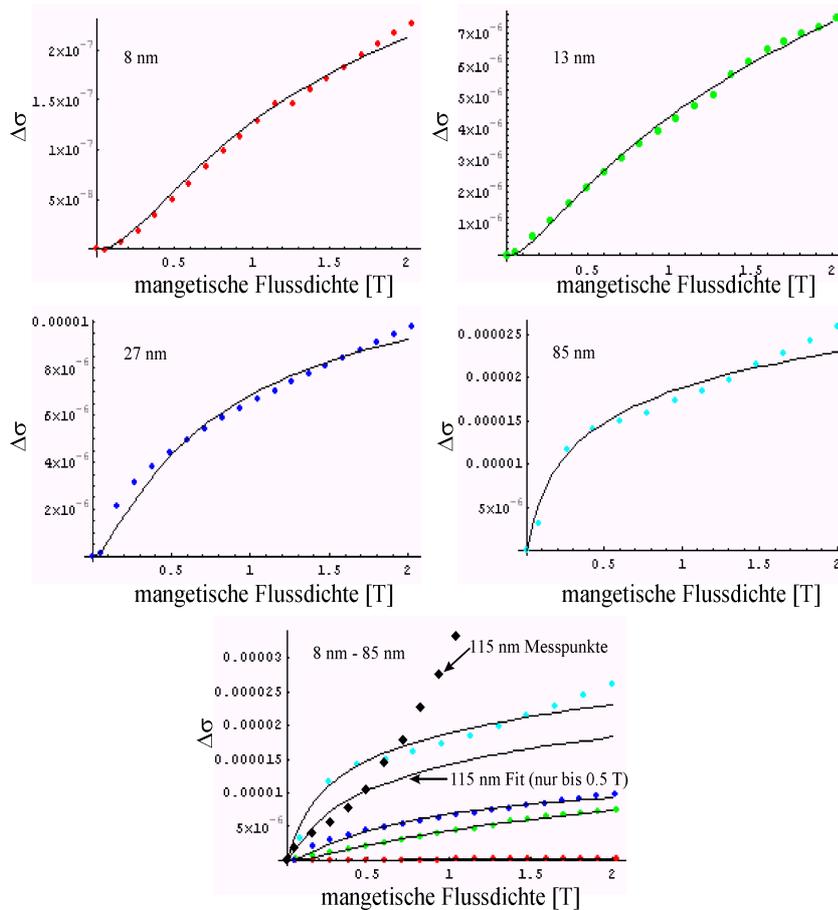


Abbildung 4.14: Beispiele für den Fit des Magnetowiderstands–Verlaufs der $Ag_{2+\delta}Se$ -Schichten bei 4.2 K. Von oben links nach unten rechts sind die Fits für die jeweilige in der Abbildung genannte Schichtdicke, unten ein Vergleich aller Fits einschließlich des Verlaufs der MR–Kurve für die 115 nm dicke Schicht (schwarze Rauten) dargestellt.

Abbildung 4.15 zeigt die erhaltenen Phasendekohärenzlängen in Abhängigkeit von der Schichtdicke für die drei Messkonfigurationen (Links: transversal, rechts oben: longitudinal, rechts unten: polar).

In allen drei Messanordnungen steigt die inelastische Streulänge L_i mit der Schichtdicke an, von ca. 22.5 nm (9 nm Schicht) auf 244 nm (130 nm Schicht) bei der transversalen Messung, von ca. 50 nm (20 nm Schicht) auf 120 nm (85 nm Schicht) bei der longitudinalen Messung und von ca. 30 nm (8 nm Schicht) auf 210 nm (46 nm Schicht) bei der polaren Messung — im Rahmen der Messgenauigkeit erhält man also bei allen drei Messkonfigurationen etwa die gleichen Werte, wie es zu erwarten ist, da der Streumechanismus unabhängig von der Orientierung der Schicht sein

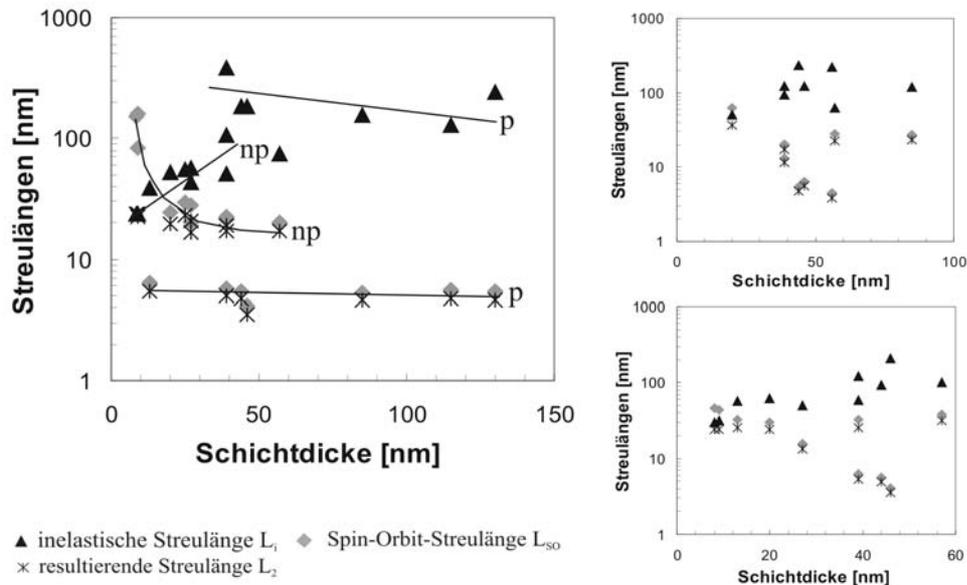


Abbildung 4.15: Phasendekohärenzlängen der $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ -Schichten. Links: Transversale Messkonfiguration (p: Proben mit als perkoliert angenommenen Silberpfaden, np: Proben ohne perkolierte Silberpfade), Rechts oben: Longitudinale Messkonfiguration, Rechts unten: Polare Messkonfiguration.

sollte. Die Spin-Orbit-Streulänge L_{SO} zeigt ein gegensätzliches Verhalten: sie sinkt mit zunehmender Schichtdicke, im transversalen Fall von 161 nm (9 nm Schicht) auf etwa 5.4 nm (130 nm Schicht), im longitudinalen von 60 nm (20 nm Schicht) auf etwa 3.8 nm (56 nm Schicht) und im polaren Fall von 46 nm (8 nm Schicht) auf ca. 3.5 nm (46 nm Schicht). Bei diesen Werten ist der Unterschied bei den verschiedenen Messkonfigurationen größer als bei L_i , trotzdem beobachtet man in allen drei Fällen den gleichen Verlauf der Messwerte mit etwa den gleichen Positionen der Messpunkte im Vergleich zu den umgebenden Werten. Anhand der transversalen Messung kann man vermuten, dass die Werte für L_{SO} mit zunehmender Schichtdicke einen konstanten Wert von ca. 10 nm annehmen, allerdings war bei den longitudinalen und polaren Messungen der Beitrag der WL bei den größeren Schichtdicken nicht mehr erkennbar, so dass die Werte hier nicht in den Bereich der Sättigung kommen und diese Beobachtung leider nicht bestätigt werden kann. Trotzdem kann hier schon betont werden, dass die Konstanz von τ_{SO} ab wenigen Monolagen Silber schon von Henzler et al. beobachtet und dokumentiert wurde [166].

Eine Übersicht über die genannten Werte gibt Tabelle 4.1.

Wie in Kapitel 2.3.4 erläutert, ist in einer Probe, in der die Dephasierung der Elektronenwellen gleichzeitig über Spin-Orbit-Streuung und inelastische Streuung stattfindet, die resultierende Streuzeit τ_2 eine Kombination aus den beiden Streuzeiten dieser Prozesse: $\tau_2^{-1} = \tau_i^{-1} + 4/3 \cdot \tau_{SO}^{-1}$. Damit ist eine resultierende Streulänge $L_2 = (D\tau_2)^{1/2}$ verknüpft, die sich aus den Streulängen L_{SO} und L_i zusammensetzt:

$$L_2 = \sqrt{\left(\frac{1}{L_i^2} + \frac{4}{3} \frac{1}{L_{SO}^2}\right)^{-1}}. \quad (4.2)$$

Die erhaltenen Ergebnisse in Abhängigkeit der Schichtdicke sind ebenfalls in Abbildung 4.15 dargestellt.

Probenname / Schichtdicke [nm]	Transversale Messung		Longitudinale Messung		Polare Messung	
	L_i [nm]	L_{SO} [nm]	L_i [nm]	L_{SO} [nm]	L_i [nm]	L_{SO} [nm]
151203 / 8.7	23.995	153.223			30.304	46.242
031203 / 9	24.005	161.189			31.477	43.394
021203 / 9	23.703	82.773				
161203 / 13	38.977	6.3185			57.323	32.357
281103 / 20	51.702	24.714			61.722	30.234
141103 / 20			50.310	62.026		
011203 / 25	55.082	29.355				
151103b / 27	56.405	20.004				
151103 / 27	43.297	27.693			49.437	15.762
181103 / 39	51.1	21.194	123.077	13.309	58.359	32.408
291103 / 39	383.683	5.763	94.435	20.453	120.272	6.215
181103b / 39	107.936	22.262				
121203 / 44	186.224	5.46	232.737	5.481	94.073	5.683
191103 / 46	186.239	4.108	124.105	6.384	209.978	4.111
201103 / 20			222.429	4.469		
171103 / 57	75.198	20.093	62.727	25.605	100.396	38.442
261103 / 85	156.091	5.321	119.084	27.336		
131103 / 115	129.018	5.514				
071103 / 130	244.108	5.37				

Tabelle 4.1: Phasendekohärenzlängen L_i und L_{SO} in den $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ -Proben.

Die resultierende Streulänge L_2 als Linearkombination aus reziproker Spin–Orbit– und inelastischer Streuung liegt bei allen Messkonfigurationen für alle Schichtdicken unterhalb der beiden Einzelbeiträge: zwischen 23.6 nm (9 nm Schicht) und 4.6 nm (130 nm Schicht) im transversalen Fall, zwischen 36.7 nm (20 nm Schicht) und 3.9 nm (56 nm Schicht) im longitudinalen Fall und zwischen 31.6 nm (57 nm Schicht) und 3.6 nm (46 nm Schicht) bei der polaren Messung. Damit ist die resultierende Streulänge von bemerkenswerter Konstanz, wobei sich die Werte bei allen drei Messkonfigurationen in jeweils 2 Bereiche aufspalten. Dies ist besonders deutlich bei der transversalen Konfiguration, wo 8 Messpunkte bei Werten von etwa 18 nm (9 nm, 13 nm, 25 nm, 27 nm, zwei der 39 nm–Schichten und 57 nm) liegen, während die restlichen bei Werten um 4 nm zu finden sind (13 nm, 39 nm, 44 nm, 46 nm, 85 nm, 115 nm, 130 nm). Bei den anderen Messkonfigurationen ist die Aufteilung auch zu erahnen, allerdings schwanken die Werte ein wenig mehr und bei den 130 nm und 150 nm dicken Schichten war kein Beitrag der schwachen Lokalisierung mehr zu erkennen, so dass diese Messpunkte fehlen. Bei der polaren Messung ist schon ab 85 nm Schichtdicke kein Beitrag der schwachen Lokalisierung mehr zu erkennen.

Eine weiteres mögliches Merkmal zur Unterscheidung perkolierter / nicht–perkolierter Strukturen ist das Verhältnis aus inelastischer Streulänge und Spin–Orbit–Streulänge L_i/L_{SO} (Abb. 4.16).

Bei der transversalen Messkonfiguration (Abb. 4.16, links) spalten die Werte noch eindeutiger als bisher in zwei Bereiche auf: $L_i/L_{SO} \leq 6.1$ bei den meisten Proben, die erhöhten Widerstand in der Hall–Messung zeigen und $L_i/L_{SO} \geq 23$ bei den Proben, die entsprechend einen verringerten

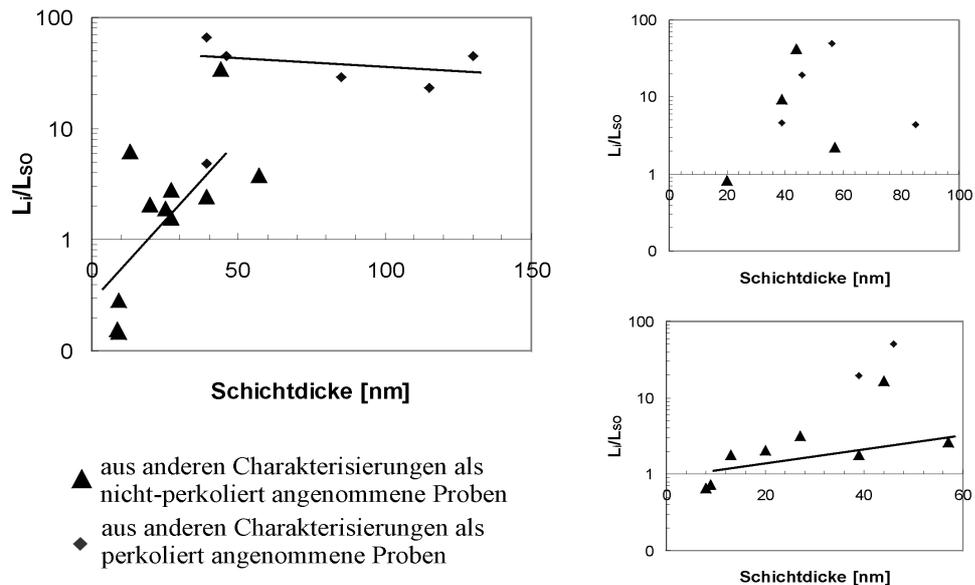


Abbildung 4.16: Verhältnis der inelastischen Streulänge zur Spin-Orbit-Streulänge L_i/L_{SO} der $Ag_{2+\delta}Se$ -Schichten. Links: Transversale Messkonfiguration, Rechts oben: Longitudinale Messkonfiguration, Rechts unten: Polare Messkonfiguration.

Widerstand haben. Eine Ausnahme stellt die 44 nm dicke Probe dar, die nach der Analyse der Dephasierungslängen eindeutig zu den perkolierten Proben zuzuordnen ist, obwohl deren Widerstand erhöht ist. Auch bei den anderen beiden Messanordnungen ist die Aufspaltung zu erkennen, allerdings weniger deutlich als in der transversalen Konfiguration, wobei aber auch hier die 44 nm dicke Probe nicht in den Bereich der nicht-perkolierten, sondern in den der perkolierten Proben fällt.

Die Ergebnisse deuten an, dass longitudinale und polare Konfiguration weniger für die Untersuchung auf perkolierte / nicht-perkolierte Strukturen geeignet sind. Es muss hier aber berücksichtigt werden, dass die zum Fit eingesetzten Formeln von homogenen Medien ausgehen, während hier ein 2-Phasen-System vorliegt, in dem der Transport sowohl in einer halbleitenden Matrix als auch in metallischen Clustern stattfindet. Die transversale Konfiguration scheint hierbei gut zu den vorliegenden Mikrostrukturen und Verteilung der Ag-Cluster zu passen, um in beiden Materialien Variationen in den Streulängen zu bewirken.

Anhand dieser Analyse sieht man, dass die schwache Lokalisierung hervorragend als strukturbestimmendes Instrument herangezogen werden kann, wenn die Messung des spezifischen Widerstandes ρ , des Übergangsfeldes B_{linear} , der Übergangstemperatur T_C sowie der Kohlersteigung [9] nicht ausreicht, um zu bestimmen, ob in einer Probe perkolierte Pfade vorliegen oder nicht.

Vergleicht man die erhaltenen Werte mit den bisher in der Literatur dokumentierten Ergebnissen für Silberstrukturen im nm-Bereich, so stimmen die gefundenen Daten für die Spin-Orbit-Streulänge mit 5 nm bis 160 nm sehr gut mit denen der Literatur überein: Gougam et al. finden in langen, dünnen Silberdrähten eine Spin-Orbit-Streulänge von etwa 85 nm [72], Cavalloni und Joss berichten von 286 nm bis 405 nm in 16 nm - 20 nm dünnen Ag-Filmen [165]. Dies deutet auf eine drahtartige Struktur der Silberpfade in der Matrix hin.

Die erhaltenen Daten für die inelastische Streulänge sind mit bis maximal 250 nm ca. um einen Faktor 3 kleiner als die von Cavalloni und Joss referierten Ergebnisse in den Ag-Filmen [165],

während die von Gougam et al. berechneten inelastischen Streulängen in langen, dünnen Ag-Drähten mit etwa 2000 nm eine Größenordnung über den in dieser Arbeit erhaltenen Werten liegen [72]. Im Rahmen der Vorstellung des Transports in Strukturen im nm-Bereich wird dieses Verhalten plausibel, wenn man bedenkt, dass vor allem die in den gemessenen Proben sehr dicht liegenden Korngrenzen für diesen Streumechanismus verantwortlich sind.

Nach Abrikosov und Gorkov ist die Spin-Orbit-Dephasierungszeit $\tau_{SO} = \tau/(\alpha Z)^4$ [79] (siehe Gleichung 2.79). Mit $L_x = \sqrt{D\tau_x}$ erhält man eine Abhängigkeit der Spin-Orbit-Dephasierungslänge von der mittleren freien Weglänge l : $L_{SO} = l/(\alpha Z)^2$. Da die elastische Streulänge l wiederum von der Schichtdicke abhängt, erklärt sich darüber die Schichtdicken-Abhängigkeit der transversalen und polaren Ergebnisse für L_{SO} .

Der Anstieg der inelastischen Streulänge L_i mit zunehmender Schichtdicke erklärt sich ebenfalls über die Abhängigkeit der mittleren elastischen freien Weglänge l von der Schichtdicke, die wiederum bei so geringen Werten vom Size-Effekt dominiert wird. Bei dünnen Schichten führt die Streuung der Elektronen an den Oberflächen der Schicht zu einer erhöhten Streuung und damit einer geringeren freien Weglänge als es bei dicken Proben der Fall ist (vgl. Kapitel 2.3.3).

In der Literatur findet sich sowohl mit der mittleren freien Weglänge l zunehmendes als auch abnehmendes Verhalten der inelastischen Streuzeit τ_i , bzw. über die Beziehung $L_x \propto \sqrt{\tau_x}$, der Streulänge L_i . Wu et al. beispielsweise fanden in $\text{Ti}_{100-x}(\text{Al},\text{Sn})_x$ -Legierungen eine lineare Abhängigkeit von τ_{ep} von l [77]. Diese Abhängigkeit ist konsistent mit der Theorie von Bergmann [76], der eine proportionale Abhängigkeit der Elektron-Phonon-Streuzeit τ_{ep} aufgrund der Streuung der Elektronen an Vibrationen von Verunreinigungen berechnete (siehe Gleichung 2.78). Andererseits wurde über eine invers lineare Abhängigkeit von τ_i von l in Au-Pd-Filmen berichtet [193], die den Vorhersagen der Theorie von Rammer und Schmid entspricht [64]. Sergeev und Mittin vereinten schließlich diese beiden sich widersprechenden Modelle und zeigten, dass unter der Annahme, dass das Streupotential von Verunreinigungen durch Phononen „verschluckt“ wird, eine Proportionalität von $\tau_{ep}^{-1} \propto l$ zu finden ist, während in Anwesenheit eines statischen Anteils des Streupotentials $\tau_{ep}^{-1} \propto l^{-1}$ gilt [194].

Die in dieser Arbeit gefundene Abhängigkeit entspricht dem Modell von Bergmann, da mit zunehmender Schichtdicke auch die mittlere elastische freie Weglänge l leicht ansteigt.

Sowohl die gefundene Abhängigkeit von L_{SO} als auch die von L_i korrespondieren mit den von Henzler et al. [166] dokumentierten Ergebnissen an dünnen epitaktischen Ag-Schichten: Sie finden eine mit der Schichtdicke ansteigende Streuzeit τ_i , was der hier mit der Schichtdicke ansteigenden Streulänge L_i entspricht sowie eine bei dünnen Schichten hohe Streuzeit τ_{SO} , die rasch abfällt, um dann einen konstanten Wert einzunehmen.

Der Verlauf der unterschiedlichen Dephasierungslängen zeigt, welcher Streumechanismus bei welcher Schichtdicke vornehmlich zur Dekohärenz der Elektronenwellenfunktion beiträgt: Bei sehr dünnen Schichten ($d \leq 30$ nm) ist die inelastische Streulänge L_i kleiner als die Spin-Orbit-Streulänge und damit der Hauptstreumechanismus; bei dickeren Schichten wird die inelastische Streuung geringer und die Spin-Orbit-Streuung bedingt hauptsächlich den Kohärenzverlust der Elektronenpartialwellen. Dies erscheint logisch, wenn man bedenkt, dass in dünnen Schichten die Streuung an Grenzflächen und Korngrenzen zur inelastischen Streuung beiträgt, während die Streuung an dem in den Proben enthaltenen elementaren Silber bei den Schichten vorherrscht, bei denen der Transport weitestgehend über die Silberpfade stattfindet und kaum in genügendem Maße durch die Silberselenid-Matrix verläuft.

Damit ist gezeigt, dass sich der Sprung im schichtdickenunabhängigen spezifischen Widerstand der Schichten (Abb. 4.3) in den ermittelten Dephasierungslängen widerspiegelt und eine Untersuchung der Probenstruktur mittels der schwachen Lokalisierung möglich ist.

Analytisches Modell für Dephasierungslängen in 2-Phasen-Systemen

Bislang wurden zur Untersuchung der schwachen Lokalisierung in den 80-er und 90-er Jahren klassische Modellsysteme wie Metalle (Ag, Cu) oder Halbleiter (Si) herangezogen. Untersuchungen an 2-Phasen-Systemen sind selten und nicht mit den vorliegenden Ergebnissen vergleichbar. Daher wird im folgenden der Versuch unternommen, ein 2-Phasen-System zu beschreiben, mit dem Ansatz, dass entweder Transport im Halbleiter überwiegt (nicht-perkoliert), da der Widerstand im Halbleiter viel größer ist als der des Leiters, oder der Transport im metallischen Leiter überwiegt (perkoliert). Dieses beeinflusst überwiegend die Streuung und ist bedeutend für den vorherrschenden Streumechanismus.

Aus der theoretischen Abhängigkeit von τ_{ep} (Gl. 2.78) erhält man mit Einsetzen von $L_{ep} = \sqrt{D \cdot \tau_{ep}}$, $k_F = (3\pi^2 n)^{1/3}$ und der elastischen Streulänge $l = \hbar(3\pi^2)^{1/3}/(\rho e^2 n^{2/3})$ für die Elektron-Phonon-Dephasierungslänge

$$L_{ep} \propto \sqrt{\frac{\mu}{\rho n^{1/3}}}. \tag{4.3}$$

Damit ist L_{ep} nur noch eine Funktion der Ladungsträgerbeweglichkeit, der Ladungsträgerdichte sowie des spezifischen Widerstandes des Materials.

Für die Spin-Orbit-Dephasierungszeit erhält man mit einer analogen Herangehensweise auf der Basis von Gleichung 2.79 mit $L_{SO} = \sqrt{D\tau_{SO}}$ und $\tau = m/(\rho n e^2)$ für die Spin-Orbit-Streulänge:

$$L_{SO} = \sqrt{D\tau_{SO}} = \sqrt{\frac{D\tau}{(\alpha Z)^4}} = \sqrt{\frac{D \cdot m}{\rho n e^2 \cdot (\alpha Z)^4}} \tag{4.4}$$

Mit der Einstein-Smoluchowski-Beziehung $D = \frac{kT}{e} \cdot \mu$, wobei e die Elementarladung und μ die Beweglichkeit der Elektronen ist, erhält man weiterhin:

$$L_{SO} = \sqrt{\frac{kT\mu m}{e\rho n e^2 \cdot (\alpha Z)^4}} \propto C \cdot \sqrt{\frac{\mu}{\rho n}} \tag{4.5}$$

Damit ist die Spin-Orbit-Streulänge nur noch eine Funktion der Ladungsträgerbeweglichkeit, der Ladungsträgerdichte und des spezifischen Widerstandes der Probe — ähnlich wie bei der Elektron-Phonon-Streuung.

Hält man nun jeweils zwei der Größen konstant und betrachtet die entsprechenden Dephasierungslängen in Abhängigkeit von der dritten, beispielsweise vom spezifischen Widerstand oder von der Ladungsträgerkonzentration, so erkennt man, dass die Werte für die als perkoliert angenommenen Schichten einen anderen Verlauf aufweisen als die für die nicht-perkolierten Schichten (Abb. 4.17).

Die inelastische Phasendekohärenzlänge L_i steigt bei den perkolierten Proben mit zunehmendem spezifischen Widerstand, während sie bei den nicht-perkolierten Proben mit steigendem ρ

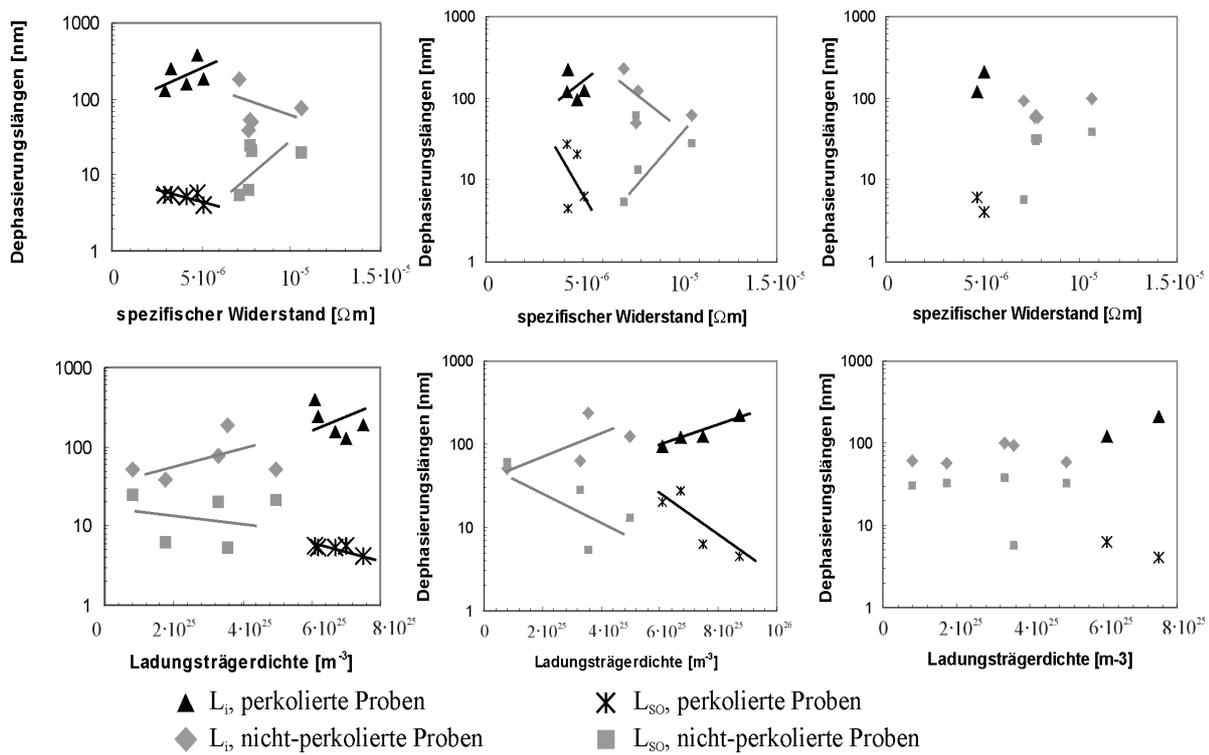


Abbildung 4.17: Phasendekohärenzlängen der $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ -Schichten als Funktion des spezifischen Widerstands ρ (oben) und der Ladungsträgerdichte n (unten). Links: Transversale Messkonfiguration, Mitte: Longitudinale Messkonfiguration, Rechts: Polare Messkonfiguration. Die durchgezogenen Linien verdeutlichen die Tendenz der Messwerte.

abnimmt. Bei der Spin–Orbit–Streuung zeigt sich ein genau entgegengesetztes Verhalten: Die Spin–Orbit–Dephasierungslänge L_{SO} fällt in den perkolierten Pfaden mit zunehmendem spezifischem Widerstand ab, während sie in den nicht–perkolierten Proben mit zunehmendem ρ steigt. Das bestätigt die vorige Annahme, dass in den Proben mit Silberpfaden mit zunehmendem Widerstand die Spin–Orbit–Streuung immer mehr gegenüber der inelastischen Streuung dominiert, während in den nicht–perkolierten Proben die inelastische Streuung mit steigendem Widerstand eine zunehmende Rolle spielt, wobei die Spin–Orbit–Streuung mehr und mehr in den Hintergrund rückt.

In Abhängigkeit von der Ladungsträgerdichte nimmt L_i mit steigendem n zu — sowohl bei den perkolierten, als auch bei den nicht–perkolierten Proben. Allerdings liegen die Punkte auf zwei unterschiedlichen Geraden, was am besten in Abbildung 4.17 an der longitudinalen Messkonfiguration (Mitte) zu erkennen ist. Ein analoges Verhalten zeigt die Spin–Orbit–Dephasierungslänge L_{SO} : sie fällt mit zunehmendem n , sowohl bei perkolierten als auch nicht–perkolierten Proben. Diese Abhängigkeit erklärt sich anschaulich leicht durch die Überlegung, dass die zunehmende Ladungsträgerdichte n von der zunehmenden Menge an Silberausscheidungen resultiert. Mit zunehmenden Silberpfaden steigt die im Silber dominante Spin–Orbit–Streuung, was sich an der abnehmenden Streulänge bemerkbar macht. Auch in den nicht–perkolierten Proben steigt mit zunehmender Ladungsträgerdichte die Menge an zum Ladungstransport verfügbaren Silbers, so dass auch hier die Spin–Orbit–Streuung auf Kosten der inelastischen Streuung ansteigt.

Interessant ist das Verhältnis der Steigungen für die beiden Fälle — wenn es dem Verhältnis der Dephasierungslängen für reines Silber und reines Silberselenid entspricht, wäre dies ein direkter

Beweis für das Vorliegen von perkolierten Silberpfaden in den Proben mit geringem spezifischem Widerstand, während in den Proben mit hohem spezifischem Widerstand der elektrische Transport auch über die Silberselenid-Matrix beeinflusst wird. Aus der Formel der inelastischen Dephasierungszeit (Gleichung 2.78) und der Dephasierungslänge (Gleichung 2.75) erhält man nach Einsetzen der Formel für die Fermi-Wellenzahl $k_F = (3\pi^2 n)^{1/3}$, der mittleren freien Weglänge l , der Konstanten C und der Diffusionskonstanten D für das Verhältnis $L_{i,Ag}/L_{i,Ag_2Se}$:

$$\frac{L_{i,Ag}}{L_{i,Ag_2Se}} = \sqrt{\frac{\mu_{Ag}^2}{\mu_{Ag_2Se}^2} \cdot \frac{n_{Ag}^{2/3}}{n_{Ag_2Se}^{2/3}} \cdot \frac{\theta_{D,Ag} Z_{Ag}^{2/3}}{\theta_{D,Ag_2Se} Z_{Ag_2Se}^{2/3}}} \quad (4.6)$$

Setzt man für n_{Ag_2Se} den Wert für nahezu stöchiometrisches Ag_2Se $n_{Ag_2Se} = 2.5 \cdot 10^{23} \text{ m}^{-3}$ ein, während $n_{Ag} = 5.85 \cdot 10^{28} \text{ m}^{-3}$, $\theta_{D,Ag} = 226\text{K}$, $\theta_{D,Ag_2Se} = 185\text{K}$, $Z_{Ag} = 47$, die mittlere Valenz des Ag_2Se $Z_{Ag_2Se} = 42.67$ und die Beweglichkeiten $\mu_{Ag} = 0.0067 \text{ m}^2/\text{Vs}$ sowie $\mu_{Ag_2Se} = 0.192 \text{ m}^2/\text{Vs}$, so erhält man ein Verhältnis von $L_{i,Ag}/L_{i,Ag_2Se} \approx 2.458$. Das Verhältnis der Steigungen aus dem Diagramm liegt diesem Wert mit 2.5 sehr nahe und ist ein sehr überzeugender Beweis für die Perkulationsannahme.

Eine ähnliche Betrachtung für die Spin-Orbit-Dephasierungszeiten liefert ein entsprechendes Verhältnis $L_{SO,Ag}/L_{SO,Ag_2Se}$ von:

$$\frac{L_{SO,Ag}}{L_{SO,Ag_2Se}} = \sqrt{\frac{\mu_{Ag}^2}{\mu_{Ag_2Se}^2} \cdot \frac{Z_{Ag_2Se}^4}{Z_{Ag}^4} \cdot \frac{m_{Ag}}{m_{Ag_2Se}}}, \quad (4.7)$$

wobei m_{Ag} bzw. m_{Ag_2Se} die effektive Masse der Ladungsträger ist. Mit den genannten theoretischen Werten sowie $m_{Ag} = 0.99m_0$ und $m_{Ag_2Se} = 0.07m_0$ erhält man ein Verhältnis $L_{SO,Ag}/L_{SO,Ag_2Se}$ von etwa 0.108, während ein linearer Fit der Messpunkte zu einem Verhältnis der Geraden von 0.8 führt. Woran der fehlende Faktor 8 liegt, ist nicht eindeutig zu erkennen, allerdings konnten bei der Abschätzung des Verhältnisses nur Näherungswerte aus der Literatur verwendet werden, die nur ganz grob auf die in dieser Arbeit untersuchten Proben zutreffen. Außerdem beruht der lineare Fit auf einer sehr geringen Datenmenge, was zu großen Fehlerwerten führen kann.

In Ansätzen erkennt man also die Unterscheidung der Schichten in perkolierte / nicht-perkolierte Proben, aber die Unterscheidung ist noch schwierig und der spezifische Widerstand ρ kann nicht allein als Kriterium für eine derartige Einteilung herangezogen werden.

Ein wesentlich vielversprechenderer Ansatz als die Betrachtung der separaten Streuzeiten L_i und L_{SO} ist die Betrachtung des Verhältnisses der beiden Streuzeiten L_i/L_{SO} . Dieses führt zu einem direkten Verhältnis der beiden Streuzeiten voneinander:

$$\frac{L_i}{L_{SO}} = \frac{\sqrt{D\tau_i}}{\sqrt{D\tau_{SO}}}. \quad (4.8)$$

Hierbei kürzt sich die Diffusionskonstante D weg und mit Einsetzen der bekannten Formeln für die inelastische Streuzeit (Gl. 2.78) sowie die Spin-Orbit-Streuzeit (Gl. ??) und die schon bekannten Beziehungen für k_F , l und die elastische Streuzeit τ ergibt sich:

$$\frac{L_i}{L_{SO}} = \sqrt{\frac{(3\pi^2)^{2/3} \hbar^2 \alpha^4}{2^2 (3\pi^2 k_B T)^2}} \cdot \sqrt{\frac{\theta_D Z^4}{(1/Z)(2/3)m}} \cdot \sqrt{n^{2/3}}. \tag{4.9}$$

Einsetzen der Literaturwerte in Gleichung 4.9 führt für reines Silber zu einem Verhältnis von L_i/L_{SO} von 187.86, während sich im Falle von Ag_2Se ein Wert von $L_i/L_{SO} = 6.07$ ergeben würde. Bildet man nun das Verhältnis der beiden Größen in Silber und Silberselenid, erhält man einen Faktor von etwa 22.7, um den sich die Verhältnisse in den unterschiedlichen Materialien unterscheiden. Dieser Faktor wurde für die konstanten Literaturwerte der Ladungsträgerdichte n in den beiden Materialien bestimmt. Eine Auftragung der Messwerte in Abhängigkeit der gemessenen Ladungsträgerdichte müsste daher nicht zwangsläufig genau die oben genannten Werte zeigen, aber die beiden Kurven für perkolierte / nicht-perkolierte Proben müssten trotzdem um etwa einen Faktor 20 voneinander unterscheidbar sein.

Genau dieses Verhalten zeigt sich in den gemessenen Werten (siehe Abb. 4.18).

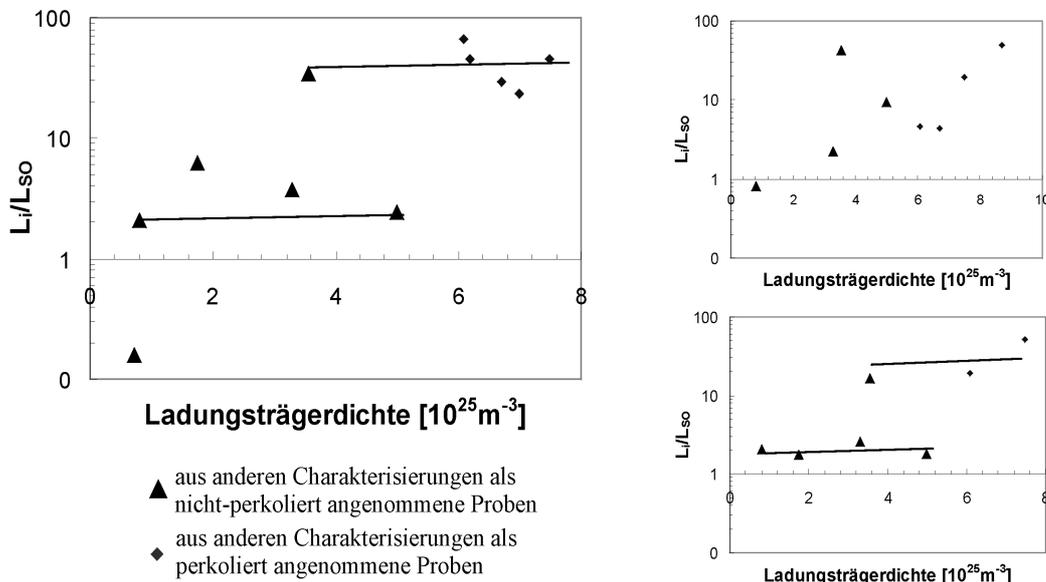


Abbildung 4.18: Verhältnis L_i/L_{SO} der $Ag_{2+\delta}Se$ -Proben als Funktion der Ladungsträgerdichte n . Links: Transversale Messkonfiguration, Rechts oben: Longitudinale Messkonfiguration, Rechts unten: Polare Messkonfiguration. Die durchgezogenen Linien verdeutlichen den Verlauf der Messwerte.

Betrachtet man zunächst die transversale Messkonfiguration, so sieht man eine Aufteilung des Verhältnisses L_i/L_{SO} in Abhängigkeit der Ladungsträgerdichte in zwei Bereiche: den der nicht-perkolierten Proben mit einem Wert von durchschnittlich etwa 2 und den der perkolierten Proben mit einem wesentlich höheren Wert von etwa 40 — also in etwa mit einem Unterschied, der theoretisch zu erwarten ist. In der polaren Messanordnung ist diese Aufteilung ebenfalls zu erkennen (Abb. 4.18, rechts unten), bei der longitudinalen Messanordnung allerdings nicht mehr. Eine mögliche Erklärung dafür ist, dass der Einfluss des Magnetfeldes auf die Phasendekohärenz der Elektronenwellen bei der longitudinalen Messanordnung wesentlich geringer ist als in den anderen beiden Konfigurationen und daher in dieser Messanordnung keine Unterscheidung mehr vorgenommen werden kann.

Die erhaltenen Messwerte zeigen eindeutig, dass die 44 nm dicke Probe, die bei den bisherigen Untersuchungsmethoden als nicht-perkolierte Probe eingestuft wurde, perkolierte Silberpfade

enthalten muss.

Diese Ergebnisse demonstrieren also eindeutig, dass die schwache Lokalisierung bei Proben, die nicht mit optischen Methoden auf ihre Struktur hin untersucht werden können, da eine Abrasterung zu aufwändig wäre, als Instrument zur Strukturanalyse eingesetzt werden kann und den bisherigen Strukturuntersuchungsmöglichkeiten überlegen ist.

4.1.4 Modellierung und Erklärung zur Mikrostruktur in dünnen $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ -Schichten

Zur Untermauerung und Visualisierung der Perkolationsannahme und der aus der schwachen Lokalisierung erhaltenen Ergebnisse wurden mittels der **Finiten-Elemente-Methode** (FEM) Simulationen zum Verhalten der Leitfähigkeit in Abhängigkeit der Silberkonzentration durchgeführt. Damit kann das Widerstandsverhalten der untersuchten Proben erklärt werden und die von Kreuzbruck et al. in [22] vorgeschlagene Interpretation des Widerstandsverhaltens als Funktion des Ag-Gehaltes der Proben bestätigt werden.

Diese Methode wurde in den 60er Jahren entwickelt, um analytisch aufwändige oder unlösbare Probleme näherungsweise numerisch zu berechnen. Dazu wird für die zu lösende Differentialgleichung ein diskreter Lösungsansatz erstellt und dadurch die Lösung approximiert. Mittels FEM können partielle Differentialgleichungen sowie nicht-lineare und lineare Probleme gelöst werden — sie ist also für eine Vielzahl von Fragestellungen einsetzbar.

Bei der Finite-Elemente-Methode wird das zu berechnende Modell in diskrete Teilbereiche, die sogenannten „Finiten Elemente“, zerlegt, welche vereinfacht beschrieben werden können. Aus den Elementlösungen wird dann die Gesamtlösung für ein System ermittelt. Durch die Aufteilung in viele diskrete Elemente kann ein Modell optimal an die realen Gegebenheiten (Geometrie, Gradienten, etc.) angepasst werden. Abhängig von der zur Verfügung stehenden Rechnerkapazität erreicht man bei komplexeren 3D-Modellen jedoch schnell die kleinstmögliche Diskretisierung. Je nach gegebener Fragestellung kann der Rechenaufwand sehr hoch sein, aber ein hoher Formalisierungsgrad gestattet es, diese Aufgabe weitestgehend dem Computer zu übertragen.

Eine weitere Vertiefung der Methode würde den Rahmen dieser Arbeit sprengen, daher möge der interessierte Leser die weiterführende Literatur [177, 178, 179, 180, 181, 182] für weitere Informationen nutzen.

Ausgehend vom physikalischen Problem wird ein mathematisches Modell entwickelt, das durch die FEM in ein Berechnungsmodell überführt und anschließend numerisch gelöst wird. Für das Ag_2Se -Problem wurden zwei Modelle erstellt:

- Zur Berechnung der Erhöhung der Leitfähigkeit bei geringen Silberüberschüssen mit Ausscheidung des Silbers entlang der Korngrenzen, was zu dünnen Silberpfaden in der Matrix führt, ein Modell von 10 x 10 quaderförmigen Körnern, die von einer Zwischenschicht umschlossen werden.
- Zur Visualisierung der Perkolation von Silberclustern bei hohen Silberüberschüssen und des Übergangs vom 3D- zum 2D-Phänomen ein Modell mit statistisch in der Matrix verteilten Körnern, deren Größe variiert werden kann.

Geringe Silberüberschüsse: $0 < \delta < 0.3$

Mit den Augen der Defektchemie betrachtet, ist ein Silberüberschuss von wenigen Zehnteln in Silberselenid (Ag_xSe mit $x = 2 + \delta$) bereits eine sehr hohe Silberkonzentration. Der homogene Phasenbereich, bei dem Silber in die Ag_2Se Matrix eingebaut werden kann, ohne dass Silbercluster ausgeschieden werden, wird bereits bei einem Überschuss von $\delta > 2 \cdot 10^{-4}$ verlassen [151]. Deshalb wird davon ausgegangen, dass für Konzentrationen $x > 2$ fast unmittelbar metallisches Silber zum Ladungstransport beiträgt.

Um den Verlauf der experimentell gewonnenen Widerstandsdaten nachzuvollziehen, wurde ein FEM-Modell von 10×10 quaderförmigen Ag_2Se -Körnern aufgebaut. Die reale Form der Körner sowie ihre Streuung bezüglich ihrer Größe wurde an dieser Stelle vorerst vernachlässigt, da eine Leitfähigkeitsänderung von einer Größenordnung wie in [22] nachzuvollziehen ist und die geometrischen Einflüsse von Würfel- statt Kugelform einen nur geringen Einfluss auf die Ergebnisse ausüben würden.

Für die Leitfähigkeit des Silbers wurde ein experimentell an einer 150 nm dünnen Silberschicht ermittelter Wert verwendet. Die gemessene Leitfähigkeit von 29 MS/m entspricht etwa der Hälfte des Literaturwerts für Bulk-Silber ($\sigma = 62.5$ MS/m, $\rho = 1.6 \mu\Omega\text{cm}$), was durch die Streuung der Elektronen an Verunreinigungen und Defekten sowie den Size-Effekt in dünnen Schichten zustande kommt. Die Leitfähigkeit des Ag_2Se ist mit 0.025 MS/m erwartungsgemäß mehrere Größenordnungen kleiner.

Die modellierten Körner haben eine Größe von 300 nm x 300 nm und eine Höhe gemäß der Schichtdicke von 150 nm. Zwischen den Körnern wurde eine Zwischenschicht (Dicken variieren zwischen 10 nm und 100 nm) eingebracht, die sowohl vertikal als auch horizontal jedes Korn innerhalb der x/y -Ebene (Schichtebene) umschließt (siehe Abb. 4.19). Alternativ kann auch die Ober- und Unterseite der Schicht mit einer Ag-Zwischenschicht belegt werden, so dass die Körner gänzlich von einem Silberfilm umschlossen sind.

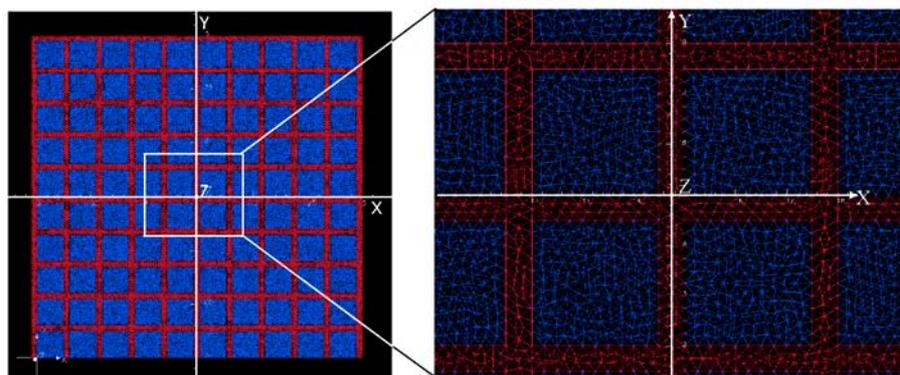


Abbildung 4.19: Modell zum Einfluss von Silberpfaden in einer Ag_2Se -Schicht. Die $300 \times 300 \text{ nm}^2$ großen Ag_2Se -Körner sind vertikal und horizontal von einer Ag-Zwischenschicht umgeben, deren Breite variiert werden kann.

Um die Silberkonzentration in den Volumenanteil umzurechnen, wird vereinfachend angenommen, dass jedes Atom das gleiche Volumen im Gitter beansprucht. Ein ausgeschiedenes Ag-Atom nimmt somit 1 Volumeneinheit und ein Ag_2Se -Molekül 3 Volumeneinheiten in Anspruch. Somit

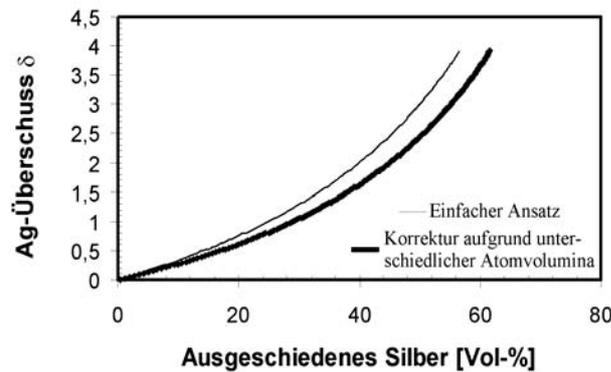


Abbildung 4.20: Silberanteil δ als Funktion des prozentualen ausgeschiedenen Silbervolumens für die Annahme gleicher Atomvolumina von Silber und Selen (einfacher Ansatz, dünne Linie) und bei einer Korrektur aufgrund unterschiedlicher Atomvolumina (dicke Linie).

gilt für das Verhältnis der Volumina des ausgeschiedenen Silbers zum Gesamtvolumen:

$$\nu = \frac{V_{Ag}}{V_{Ag} + V_{Ag_2Se}} = \frac{\delta}{3 + \delta} \tag{4.10}$$

Eine Korrektur bezüglich der tatsächlich vorliegenden Atomgrößen von Ag und Se liefert ein etwas höheres anteiliges Silbervolumen am Gesamtvolumen, wie in Abbildung 4.20 zu sehen ist, wo der Anteil des Überschusssilbers δ als Funktion des Volumens des ausgeschiedenen Silbers dargestellt wird. Man sieht, dass bei einem δ von 1.5 ein Volumenüberschuss von etwa 40 % Silber vorliegt, bei $\delta \approx 0.3$ immerhin schon etwa 10 %.

Eine Berechnung der Dicke der Zwischenschichten bei gegebener Silberkonzentration führte bei der Annahme, dass sich das gesamte ausgeschiedene Silber homogen in den Schichten um die Körner ansammelt, zu einer Dicke von nur 5 nm bei $\delta=0.3$. Das lässt darauf schließen, dass auch sehr kleine Abmessungen für Strompfade den steilen Anstieg der Leitfähigkeit in einer perkolierenden Schicht erklären können.

Mit Hilfe des FEM-Modells aus Abbildung 4.19 kann das Leitfähigkeitsverhalten quantitativ bestimmt werden.

Obere und untere Grenzwerte für die Leitfähigkeit erhält man, indem man annimmt, dass am oberen Grenzwert alles ausgeschiedene Silber zur Bildung eines Strompfades beiträgt, was einer Parallelschaltung von Ag und Ag_2Se entspricht. Im unteren Grenzfall sammelt sich alles ausgeschiedene Silber an einer der beiden Elektroden, so dass eine Reihenschaltung von Ag und Ag_2Se vorliegt. Abbildung 4.21 zeigt die beiden Leitfähigkeit der beiden Grenzwertfunktionen, die in [22] als Widerstand ρ veröffentlichten Daten (150 nm dicke Schichten) und zur groben Einschätzung die im Rahmen dieser Arbeit erhaltenen Messwerte für die 115 nm, 130 nm und 190 nm dicken Schichten. Wie erwartet liegt aufgrund des Size-Effekts (Kap. 2.3.3) die Leitfähigkeit der 115 nm dicken Schicht etwas unter der Kurve der Werte für die 150 nm dicken Schichten aus [22], während der Wert für die 190 nm dicke Schicht über der Kurve liegt.

Im Fall der Parallelschaltung steigt die Leitfähigkeit schnell an und konvergiert allmählich gegen den Grenzwert des reinen Silbers ($x = 10$ entspricht einem Volumenanteil von 72.8 %). Für eine Reihenschaltung hingegen steigt die Leitfähigkeit langsam an, da selbst bei hohem Silberanteil der hohe Widerstand des Ag_2Se durchlaufen werden muss. Der gemessene Widerstand der Proben liegt erwartungsgemäß zwischen diesen beiden Funktionen.

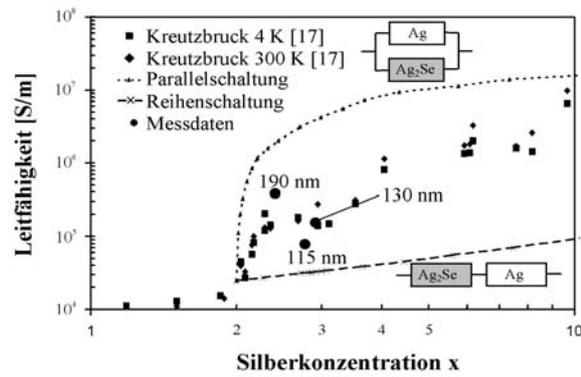


Abbildung 4.21: Leitfähigkeit als Funktion der Silberkonzentration für die Daten aus [22] ($\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ -Schichten mit einer Dicke von 150 nm) und die beiden Grenzfälle extremer Silberverteilungen in Form von Parallel- und Reihenschaltung. Die drei Kreise zeigen zum Vergleich die erhaltenen Messwerte für die 115 nm, 130 nm und 190 nm dicken Proben, die später zur Untersuchung der Abhängigkeit des Widerstandes von der Schichtdicke hergestellt wurden.

Um den kompletten Konzentrationsbereich abzudecken, wurden Modelle für Zwischenschichtdicken von 1 nm bis zu 200 nm generiert. Die Auswertung der Leitfähigkeit wird über den Stromfluss berechnet (mit $U = R \cdot I$ und $R = \rho \cdot l/A = 1/\sigma \cdot l/(b \cdot d_S)$, wobei l hier für die Länge der Schicht, b für die Schichtbreite und d_S für die Dicke der Schicht steht, ergibt sich $\sigma = I/U \cdot l/(b \cdot d_S)$). Die hierzu benötigte Spannung wurde über eine Randbedingung am linken und rechten Ende des Modells mit einer Gesamtspannung von $U = 2 \text{ V}$ definiert. Der Strom j_x in der Probe wurde in x -Richtung (in Abb. 4.22 von links nach rechts) über 10 unterschiedliche x -Positionen gemittelt. Aufgrund der Ungenauigkeiten im FEM-Modell (etwa 60.000 Knoten, wobei die Knotendichte bei den Übergängen von Ag zu Ag_2Se angepasst wurde) ergaben sich Streuungen von etwa 2 %. In Anbetracht der großen Leitfähigkeitsänderung von mehreren Größenordnungen bei zunehmender Zwischenschichtdicke sind diese Streuungen allerdings nicht von Bedeutung.

Die graphische Darstellung der Stromverteilung in der Schicht (Abb. 4.22) zeigt, dass sich entlang der Silberlinien gemäß der hohen Unterschiede der Leitfähigkeiten von Silber und Ag_2Se sehr hohe Stromstärken ausprägen. Die zur Stromrichtung orthogonal verlaufenden Silberpfade zeigen hingegen kaum Einfluss auf die Stromverteilung, lediglich an den Kreuzungspunkten der Silberpfade ist ein Stromverdrängungseffekt zu erkennen.

Der Vergleich der so erhaltenen Werte mit den experimentellen Funden zeigt, dass die Leitfähigkeit, die im Modell erhalten wird, wesentlich größer als die tatsächlich gemessenen Werte (siehe Abb. 4.23) und der erhaltene Leitfähigkeitsanstieg zu steil ist. Dies liegt daran, dass in den tatsächlich vorliegenden Schichten nicht jeglicher Silberüberschuss zur Strompfadbildung beiträgt. Ein weiterer Grund liegt in den Streumechanismen, die in dünnen Schichten auftreten und ebenfalls zur Verringerung der Leitfähigkeit führen — dem sogenannten Size-Effekt, beschrieben in Kapitel 2.3.3.

Mittels der Fuchs-Sondheimer- und Nordheim-Formeln können nun die Leitfähigkeiten für das in der Ag_2Se -Matrix befindliche Ag angepasst werden. Es bleibt nun noch zu klären, in welchem Maße die Ladungsträger an den Grenzflächen zwischen Ag_2Se und Ag gestreut werden. Grundsätzlich kann $p > 0$ nur in epitaktisch gewachsenen Schichten beobachtet werden. In polykristallinen Systemen hingegen muss stets mit $p = 0$ (diffuse Streuung) gerechnet werden.

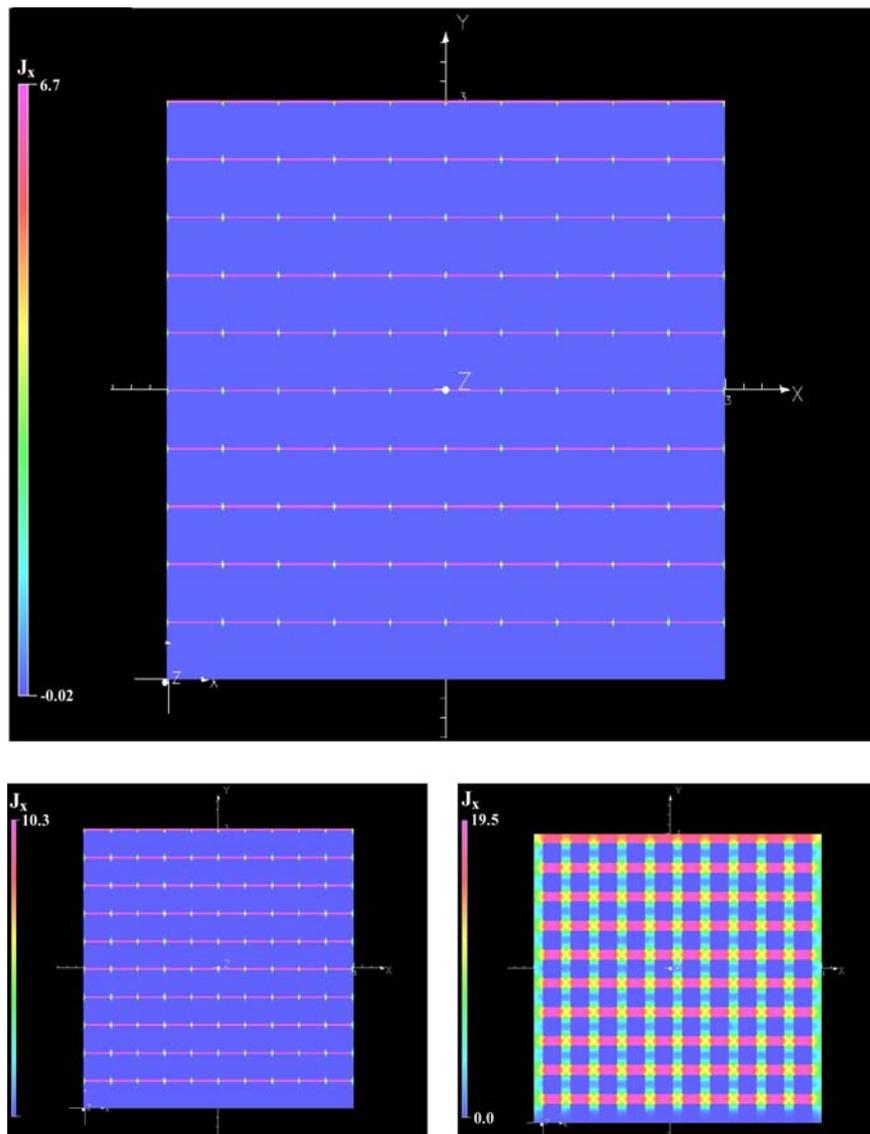


Abbildung 4.22: Simulierte Stromdichte in $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ für unterschiedliche Ag-Schichtdicken. Oben: 10 nm, links unten: 20 nm, rechts unten: 100 nm. Blau: niedrige Stromdichte, rot: hohe Stromdichte.

Bei dem hohen Grad an Unordnung in den Dünnschichten Ag_2Se (Zwillingsbildung etc.) kann bedenkenlos $p = 0$ angenommen werden (siehe Kap. 2.3.3).

In Abbildung 4.23 sind für die Leitfähigkeiten im FEM-Modell auch jeweils der Ansatz von Fuchs-Sondheimer sowie auch die Rechnung von Nordheim dargestellt. Aufgrund der erniedrigten Leitfähigkeit erkennt man eine Absenkung der Steigung gegenüber der Funktion, die den Size Effekt nicht berücksichtigt. Besonders die Berechnung, in der die Leitfähigkeit nach der Nordheim-Formel angepasst wurde, zeigt im Bereich $x \leq 2.1$ und $x > 9$ eine recht überzeugende Übereinstimmung mit den experimentellen Daten. Im Zwischenbereich liegen die experimentellen Werte etwas weiter weg von der theoretischen Kurve, stimmen aber wesentlich besser mit der Theorie überein als ohne Size-Effekt-Anpassung. Dieses spricht für die Annahme, dass die Strompfade an der Kornoberfläche oder entlang der Versetzungslinien nicht schichtartige, sondern drahtartige Geometrie aufweisen.

Es können natürlich weitere Faktoren eine Rolle spielen, die ebenfalls zur Absenkung der

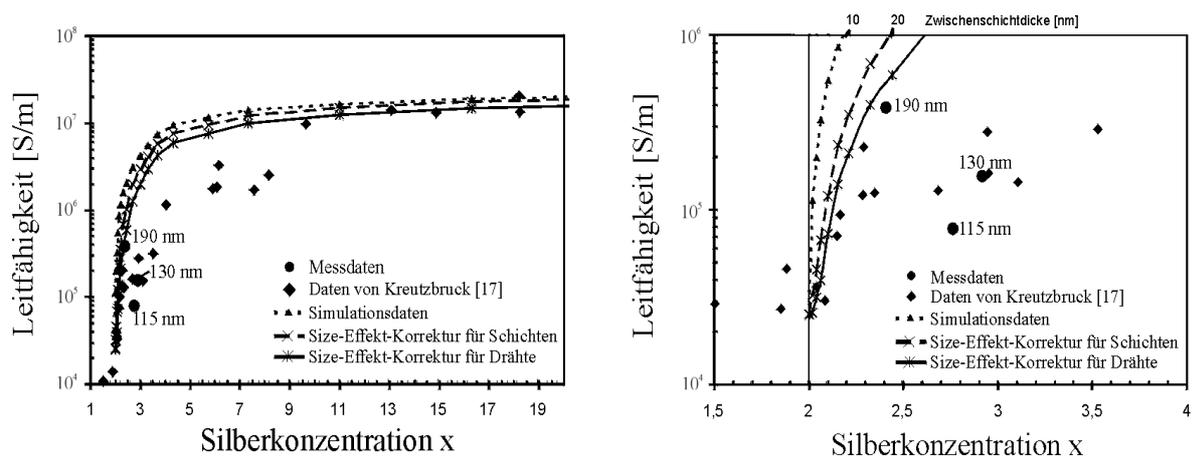


Abbildung 4.23: Leitfähigkeit als Funktion der Silberkonzentration. Links: $1 < 2 + \delta < 20$, rechts: $1,5 < 2 + \delta < 4$. Die Rauten zeigen die Daten aus [22], die Kreise die Messwerte der drei nachträglich hergestellten Schichten mit Dicken von 115 nm, 130 nm und 190 nm; Dreiecke, Kreuze und Sterne zeigen die Ergebnisse der Simulationen.

Leitfähigkeit beitragen könnten. So wäre eine inhomogene Verteilung des Silbers in der Zwischenschicht ebenfalls ein die Leitfähigkeit senkender Faktor. Es ist zu bedenken, dass bereits eine geringe Konzentration von Se im Silber die Leitfähigkeit von Silber mindern kann.

Zusammenfassend ist festzuhalten, dass der steile Anstieg der Leitfähigkeit nur durch eine frühzeitige Bildung von Strompfaden zu erklären ist.

Im nächsten Abschnitt wird gezeigt, dass durch eine rein zufällige, zusammenhanglose Verteilung von Silberclustern der rapide Leitfähigkeitsanstieg nicht begründet werden kann.

Silberkonzentrationen $\delta > 0.3$

Für hohe Konzentrationen von Silber im Ag_2Se werden Silberkörner in der Schicht ausgeschieden, die erst unwesentlich am Ladungstransport teilnehmen, da sie sich isoliert in der Matrix befinden. Mit zunehmender Größe dieser Silbercluster allerdings kann das auch zu geschlossenen Strompfaden führen. Um die Leitfähigkeit eines solchen dispersiven Systems zu untersuchen, wurden zwei verschiedene Ansätze verfolgt:

- Monodispersives System mit einer Clustergröße, die keine Abhängigkeit von der Silberkonzentration zeigt
- Multidisperse Systeme, deren Clustergrößen bei geringen Silberkonzentrationen sehr klein sind und gemäß Ohachi [183] bei steigender Ag-Konzentration einen größeren Radius annehmen.

In einer 150 nm dicken Schicht werden Silbercluster mit variabel gehaltener Größe, die den Übergang von einer 2D-Perkolation (150 nm Cluster) zu einer 3D-Perkolation (Clustergrößen von 10 nm - 75 nm) ermöglichen, zufällig verteilt. Abbildung 4.24 zeigt das FEM Modell für das monodisperse System bei einer Volumenkonzentration von 25 % Silber ($x \approx 3.0$) und einer Clustergröße von 25 nm. In Abbildung 4.25 ist das Modell für einen Volumenanteil des Silbers von 14 % ($x \approx 2.5$) dargestellt.

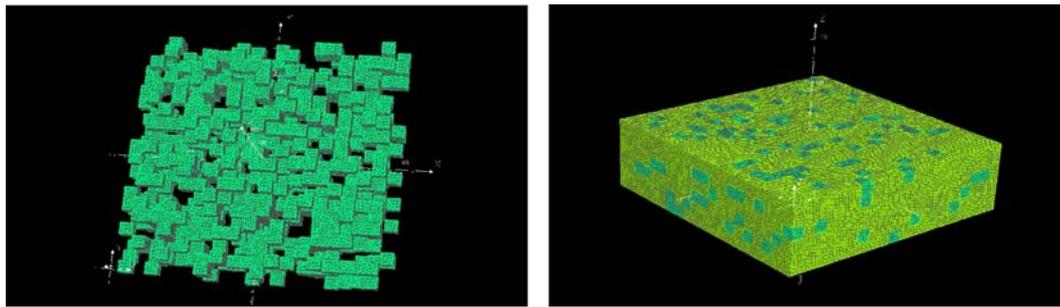


Abbildung 4.24: Modell für eine Clustergröße von 25 nm bei einem Silberanteil von 25 %.

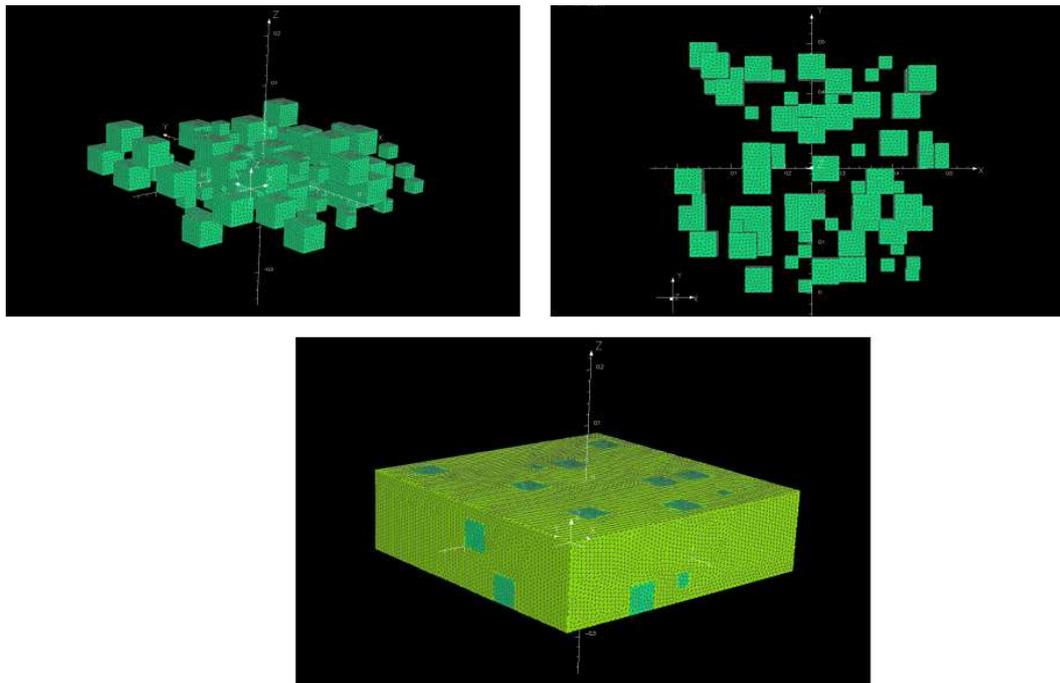


Abbildung 4.25: Modell für kombinierte Clustergrößen von 25 nm und 50 nm bei einem Silberanteil von 14 %.

Zur Berechnung der Leitfähigkeit wurde wiederum an der linken und rechten Seite der Schicht eine Spannung von 2 Volt angelegt und der in x -Richtung fließende Strom über 10 unterschiedliche Positionen entlang der Stromrichtung gemittelt. Aufgrund des hohen Rechenaufwandes wurden nur Modelle mit einem Raster kleiner als 50×50 Zellen (minimale Rastergröße) erstellt. Die Anzahl der Unterteilungen entlang der Schichtdicke hängt von der minimalen Clustergröße ab. Bei 15 nm großen Silberausscheidungen ergeben sich 10 Zellen entlang des Schichtnormalenvektors. Um statistische Schwankungen zu berücksichtigen (bei 50×50 kann der Zufallsgenerator für eine einzelne Verteilung die Perkolationsgrenze durchaus um wenige % verschieben) wurden für jede einzelne Ag-Konzentration mehrere Modelle generiert. Es stellte sich heraus, dass bei 10 Mittelungen für jede Ag-Konzentration die Schwankungen der berechneten Leitfähigkeit keine Rolle mehr spielen.

Während die Leitfähigkeit von Ag_2Se mit konstanten 0.025 MS/m angenommen wurde, sind die Leitfähigkeiten der Silbercluster wieder durch den Size-Effekt zu korrigieren. Die 3D-Modelle wurden sowohl mit Fuchs-Sondheimer als auch mit der Nordheim-Formel berechnet. Die ef-

fektive Schichtdicke (Fuchs), bzw. der Drahtdurchmesser (Nordheim), wurde über alle zusammenhängenden Cluster gemittelt. Da mit zunehmender Silberkonzentration die Größe eines zusammenhängenden Clusters ebenfalls zunimmt, ergibt sich ein abnehmender Size-Effekt mit steigender Ag-Konzentration. Bei einem Silberanteil von 60 % sind die Modelle mit einer Zellgröße (kleinste Einheit im Raster) von 37.5 nm gerechnet worden. Ein einzelnes Ag-Cluster nimmt also eine Würfelform mit Kantenlänge von 37.5 nm ein. Bei 60 % Volumenanteil des Silbers ist die Perkolationsgrenze allerdings schon längst überschritten, so dass einzelne Zellen sich zu größeren, zusammenhängenden Clustern verbunden haben. Diese Cluster besitzen natürlich eine mittlere Abmessung, die größer ist als die der einzelnen Zelle. Diese mittlere Abmessung wurde nun für alle zusammenhängenden Cluster nochmals gemittelt. Für die eben erwähnten 60 % ergibt sich anstelle der 37.5 nm eine Abmessung von 73.7 nm. Der Size Effekt wurde dann jeweils mit den gemittelten Abmessungen berechnet.

Anhand der Ergebnisse in Abbildung 4.26 kann als bestätigendes Ergebnis festgehalten werden, dass das 3D-Perkolationsphänomen in der Schicht nicht in Betracht gezogen werden kann, um den steilen Anstieg im Bereich $2 < x < 2.3$ zu erklären. Die Steigung $\Delta\sigma/\Delta x$ der steilen Rampe der experimentellen Daten beträgt etwa $0.58 \text{ MS/m}/\delta$, der Funktionsverlauf der 3D-Perkolationsfunktion weist hingegen eine mittlere Steigung von nur $0.043 \text{ MS/m}/\delta$ auf (Tangente von $x = 2$ bis $x = 2.3$).

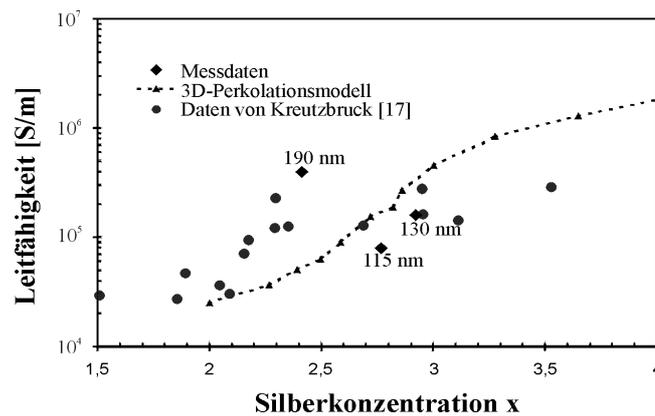


Abbildung 4.26: Leitfähigkeit des silberreichen Ag_xSe als Funktion der Silberkonzentration für einen Konzentrationsbereich von $1.5 < x < 4$.

Zur Berechnung der Leitfähigkeit als Funktion der Ag-Konzentration muss berücksichtigt werden, dass ein Teil des Silbers bereits in den Korngrenzen und Versetzungslinien gebunden ist und dass nach der vereinfachten Annahme zweier von einander unabhängiger Transportphänomene erst ab $x = 2.3$ das Silber auch in den Körnern ausgeschieden wird. Deshalb müssen die Konzentrationen mit einem Offset von $\delta_P = 0,3$ versehen und zu den Funktionswerten ebenfalls ein Offset δ_P in der Leitfähigkeit addiert werden, da wir ja berücksichtigen müssen, dass die bereits gewachsenen Strompfade weiterhin bestehen bleiben und sich die beiden Effekte der Strompfadbildung auf der Oberfläche von Körnern und der 3D-Perkolationsseffekt ungestört superponieren.

Der Leitfähigkeitswert des Plateaus σ_P wurde zu 0.13 MS/m bestimmt, der Beginn des Plateaus mit $x = 2 + \delta_P = 2.3$ angenommen. Abbildung 4.27 zeigt den Leitfähigkeitsverlauf als Funktion der Silberkonzentration. Man erkennt, dass die Leitfähigkeit sehr schnell ansteigt und das Plateau der experimentell gewonnenen Messwerte rasch verlässt. Dieses Ergebnis zeigt sich für

alle 3D-Perkulationsmodelle, unabhängig davon in wie weit der Size-Effekt mit in die Rechnung einbezogen wurde. Auch für höhere Silberkonzentrationen von $x > 5$, bei denen auch die experimentellen Daten das Plateau bereits verlassen haben, findet man zu große Leitfähigkeitswerte.

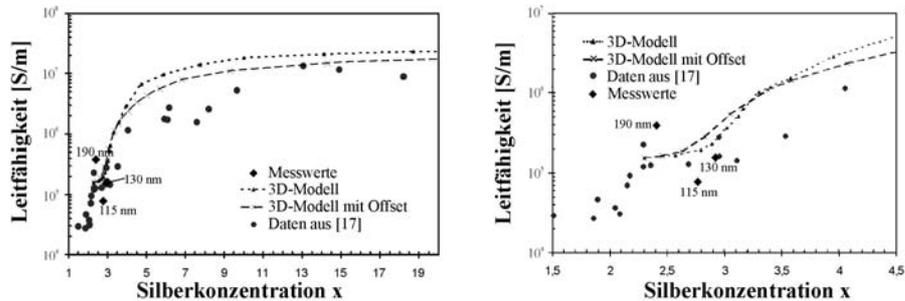


Abbildung 4.27: Leitfähigkeit des silberreichen Ag_xSe als Funktion der Silberkonzentration bei Berücksichtigung des parallelen Vorhandenseins von Silberpfaden und kompakten Silberclustern für einen Konzentrationsbereich von: Links $1.5 < x < 20$, rechts: $1,5 < x < 4,5$.

Die Tatsache, dass sich alle 3D-Modelle zu schnell vom Plateau weg bewegen — und es scheint, dass die Berücksichtigung des Size Effektes kaum eine Rolle spielt — hat mit der begrenzten Schichtdicke zu tun, durch die ein bekannter Effekt aus der Perkolationstheorie zum Tragen kommt: der Finite-Size-Effekt [184, 185]. Grundsätzlich wächst die Leitfähigkeit umso schneller, je eher die einzelnen Silbercluster zusammenfinden und geschlossene Pfade bilden. Im 3D-Modell liegt die Perkulationsgrenze bei 30 % Volumenanteil für den nearest-neighbour-Fall, also bei Erlauben des Stromflusses nur über die Flächen (jede Zelle besitzt 6 Kontaktflächen). Für den next-nearest-neighbour-Fall (NNN) gilt, dass der Stromfluss auch über Kanten stattfinden kann. Die Perkulationsgrenze verschiebt sich zu kleineren Werten und beträgt dann nur noch 24.5 % (nimmt man Stromfluss über die Ecken noch hinzu, verringert sich die Perkulationsgrenze auf 19.8 % [184]). In den vorliegenden FEM-Modellen liegt der letztgenannte Fall vor und so konnte die Perkulationsgrenze von etwa 20 % für sehr kleine Silbercluster von 15 nm auch beobachtet werden. Je größer die einzelnen Ag-Cluster modelliert werden, desto näher kommt man an das 2D-System, in dem die einzelnen Silbercluster eine Größe von 150 nm besitzen, also die ganze Schichtdicke durchlaufen. Hierdurch verschiebt sich natürlich die Perkulationsgrenze zum 2D-Fall. Sie beträgt für den NNN Fall 40.7245 % (NN: 59.2746 %) [186, 187]. Dies bedeutet, je kleiner die minimale Clustergröße eingestellt wird, desto schneller steigt die Leitfähigkeit mit der Ag-Konzentration an, da sich die Perkulationsgrenze zu kleineren Werten verschiebt (siehe Abb. 4.28).

Nun wurde bei einer Silberkonzentration von 33 % ($x = 3.48$) die Größe der einzelnen Zellen (minimal mögliche Clustergröße) variiert. Man erkennt, dass die Leitfähigkeit des dispersiven Systems um annähernd einen Faktor 2 ansteigt, wenn die Sites von 75 nm auf 25 nm verkleinert werden. (Hier wurde noch mit $s = 62.5$ MS/m anstelle von den üblichen 29 MS/m gerechnet, weshalb die Daten nicht mit den anderen im absoluten Sinne vergleichbar sind). Hieraus kann man aber erkennen, dass der Size-Effekt, der mit einer Verringerung der Leitfähigkeit verbunden ist, durch diesen Perkulations-Finite-Size-Effekt wieder egalisiert wird. Bei einer Verringerung der minimalen Clustergröße erhält man ein stärker ausgeprägtes 3D System (Schwächung des Finite-Size-Effektes), die Leitfähigkeit steigt. Im Gegenzug hat eine Verringerung der minimalen Clustergröße bei geringen Ag-Konzentrationen zur Folge, dass der klassische Size-Effekt im

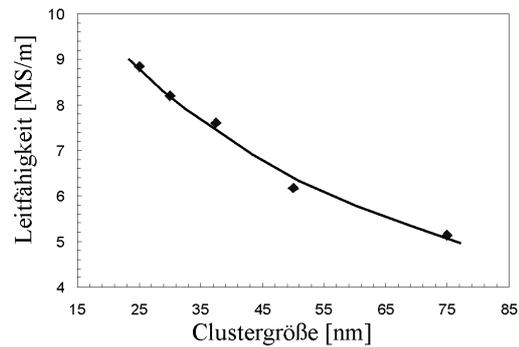


Abbildung 4.28: Leitfähigkeit von $\text{Ag}_{3.48}\text{Se}$ als Funktion der minimalen Clustergröße für einen Konzentrationsbereich von 33 % ($x = 3.48$).

Sinne des elektronischen Transportes und den damit verbundenen Streumechanismen zunimmt — die Leitfähigkeit der einzelnen Silbercluster sinkt.

Beide Effekte heben sich in etwa auf und wir können zusammenfassend konstatieren, dass unsere Messergebnisse nicht durch einen 3D-Perkolationseffekt zu erklären sind.

Als Konsequenz der Ergebnisse wird nun die minimale Clustergröße auf 150 nm vergrößert und das so entstehende 2D-System betrachtet. Bei freien Weglängen des Silbers von $\lambda = 57$ nm kann im 2D-System mit Schichtdicken von 150 nm der klassische Size-Effekt völlig vernachlässigt werden. Abbildung 4.29, in der für alle Darstellungen die gleiche Farbskala verwendet wird, zeigt die Stromverteilung für unterschiedliche Ag-Konzentrationen. Bei einer Silberkonzentration von 30 % sind erste Stromverästelungen zu erkennen. (Diese entstehen bereits bei kleineren Konzentrationen des Silbers, sind aber aufgrund der Falschfarbendarstellung mit konstantem Bereich noch nicht zu erkennen). Bei 40 % kann man sehen, wie die Stromverästelung zugenommen hat, allerdings ist das System noch nicht perkoliert — es gibt noch keinen durchgehenden Silberweg vom linken Schichtrand zum rechten. Bei Zugabe eines einzelnen weiteren Silberclusters an einem strategisch günstigen Platz würde sich ein durchgehender Strompfad bilden. Abbildung 4.29 (unten links) zeigt ein solches Beispiel für eine Konzentration von 40 Vol.% Silber, bei dem sich ein durchgehender Strompfad gebildet hat und die Stromstärke entlang des Pfades sich hierdurch deutlich erhöht hat, was wiederum mit einer Erhöhung der Leitfähigkeit einhergeht.

Zur Modellierung der Perkolation wurde mit 30×30 Zellen gerechnet. Abbildung 4.30 (links) zeigt die Leitfähigkeit als Funktion der Silberkonzentration im Bereich von $1.5 < x < 19$ und man erkennt, dass das Plateau der experimentellen Daten gut beschrieben wird. Allein der Anstieg für Konzentrationen größer 4 scheint ähnlich wie im 3D-Fall wieder etwas zu schnell von statten zu gehen. Dies mag daran liegen, dass in unserem Modell der NNN-Fall (Stromfluss auch über die Kanten) betrachtet wurde, deren Perkulationsgrenze ja bei etwa 40 % liegt. Um den Einfluss einer Verschiebung der Perkulationsgrenze zu demonstrieren, sind bei den Modellen manuell strategisch günstig gelegene besetzte Zellen entfernt und an eine für den Stromfluss unbedeutende Stelle versetzt worden, derart, dass ein bereits perkoliertes Modell seinen Strompfad wieder verliert. Somit bleibt die Konzentration die gleiche, doch die Leitfähigkeit steigt aufgrund des fehlenden Strompfades nicht so schnell an. In der Praxis mussten für Konzentrationen von 55 % ($x \approx 6$) nicht mehr als 3 Sites versetzt werden. Auch der umgekehrte Fall wurde manipuliert

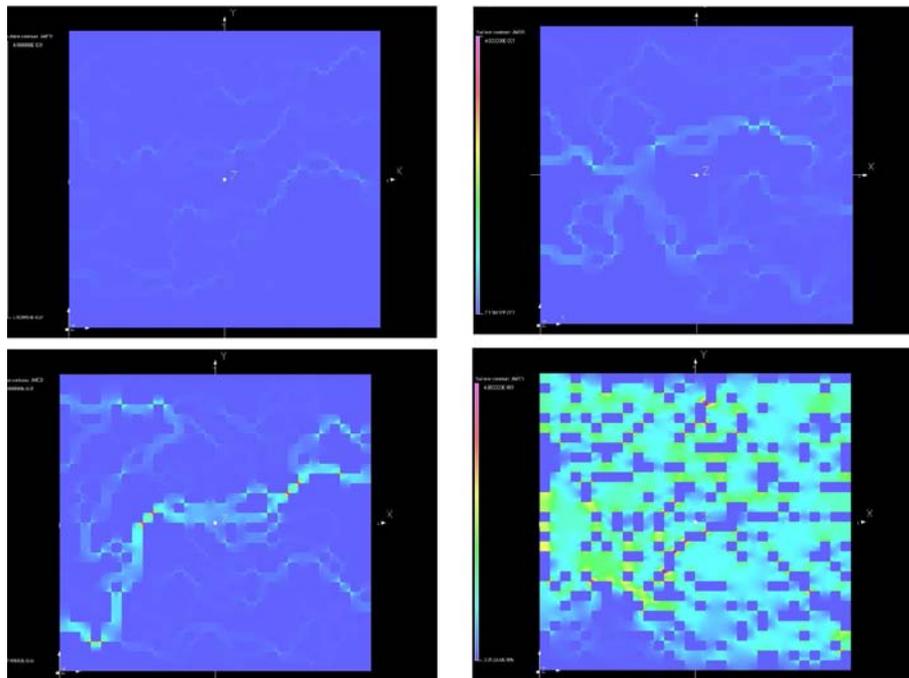


Abbildung 4.29: Visualisierung der Strompfade in Ag_xSe . Stromdichte normiert auf 0.4 A/mm^2 für unterschiedliche Silberkonzentrationen. Von oben links nach unten rechts: 30 %, 40 % ohne Pfad, 40 % mit Pfad, 70 %. Blau: verschwindende Stromdichte, rot: hohe Stromdichte (max. 0.4 A/mm^2).

— Silberzellen von unbedeutenden Stellen wurden zwangsweise an strategisch wichtige Stellen versetzt um Perkolation bei niedrigen Konzentrationen zu erzielen. In Abbildung 4.30 (rechts) ist zu erkennen, dass die erzwungene Nicht-Perkolation (dargestellt durch die Dreiecke) eine geringere Steigung aufweist, die die experimentell gefundenen Daten durchaus gut wiedergibt.

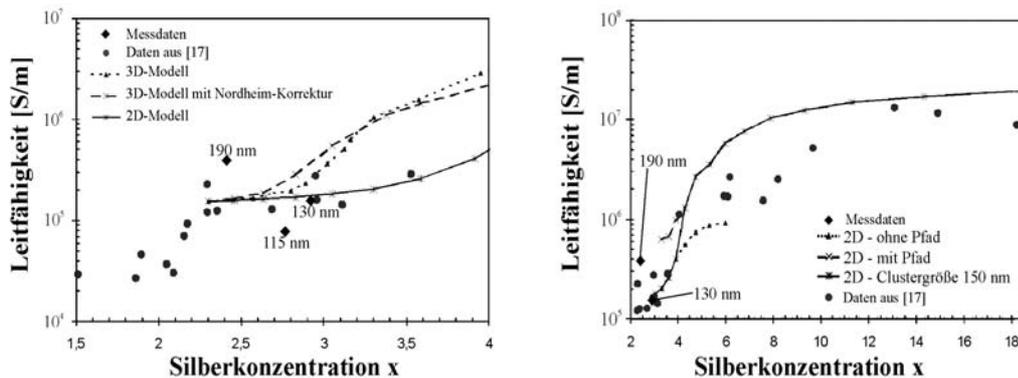


Abbildung 4.30: Leitfähigkeit von Ag_xSe als Funktion der Silberkonzentration x im 2D-Modell für einen Konzentrationsbereich von: Links: $1.5 < x < 4$, rechts: $2 < x < 18$. Offset: $\delta_P = 0.3$, $\sigma_P = 0.13 \text{ MS/m}$.

Die Simulationen bestätigen, dass es sich bei dem Leitfähigkeitsanstieg ab $x > 3.5$ um ein 2D-Perkolationsphänomen handelt. Experimentelle Untersuchungen mittels hochauflösender Transmissions-Elektronen-Mikroskopie (HRTEM) bestätigen dieses Ergebnis und zeigen die Koexistenz von frühzeitig entstandenen Strompfaden und vereinzelt ausgeschiedenen Silberclustern (vgl. Abb. 3.4 aus [22]).

Tieferen Einblick über die genaue räumliche Verteilung des Silbers kann durch weitere Probencharakterisierung mittels TEM gewonnen werden.

Zusammenfassung

Silberreiche, polykristalline Silberselenidschichten mit einer Schichtdicke von 150 nm zeigen für unterschiedliche Silberkonzentrationen ein komplexes elektronisches Transportverhalten. Dies beinhaltet einen raschen Anstieg der Leitfähigkeit über eine Größenordnung für $2 < x < 2.3$, eine konstante Leitfähigkeit für $2.3 < x < 3.5$ und einen zweiten Anstieg der Leitfähigkeit für Silberkonzentrationen von $x > 3.5$, der schließlich gegen die Leitfähigkeit des Silbers konvergiert. Dieses Verhalten wurde zwei voneinander unabhängigen Transportphänomenen zugeordnet. Der steile Anstieg ist darauf zurückzuführen, dass sich bereits geringe Mengen von ausgeschiedenem Silber in Korn- oder Domänengrenzen anhäufen und frühzeitig zu Strompfaden in der Schicht führen. Ein diesem Verhalten überlagertes Phänomen ist die Ausscheidung des Silbers in Silberclustern, das aber erst bei deutlich höheren Silberkonzentrationen entsprechend der Perkolationstheorie zur Erhöhung der Leitfähigkeit beiträgt.

Beide Transportphänomene wurden getrennt voneinander mittels der Finite-Elemente-Methode modelliert. Der unmittelbar eintretende steile Anstieg für eine Silberkonzentration größer als 2 wurde mit einem Modell bestehend aus einer Matrix von 10 x 10 Silberselenidkörnern, die von Silberfilmen umschlossen sind, beschrieben. Nimmt man an, dass sich das Silber bei Konzentrationen von $x < 2.3$ ausschließlich an den Korngrenzen ansiedelt, so findet man geringe Stärken der Silberfilme von etwa 10 nm und eine gegenüber dem experimentellen Befund um fast eine Größenordnung zu steil ansteigende Leitfähigkeit. Berücksichtigt man allerdings Streuprozesse an den Grenzflächen zwischen Ag-Clustern und Ag₂Se-Matrix (Size Effekt), die aufgrund der nanoskaligen Verhältnisse einen nicht zu vernachlässigenden Einfluss ausüben, kann das Kornmodell mit den an den Korngrenzen lokalisierten Silberfilmen den steilen Leitfähigkeitsanstieg relativ gut erklären.

Für Konzentrationen von $x > 2.3$ wurde mittels FEM ein Perkulationsmodell simuliert. Hierbei wurden in der Silberselenidschicht an zufälligen Positionen Silbercluster von einigen 10 nm erzeugt. Es zeigt sich, dass die Leitfähigkeit für ein 3D-System (kleinste Clustergröße kleiner als 30 nm) bereits für Konzentrationen von $x = 2.7$ signifikant ansteigt und somit das Plateau konstanter Leitfähigkeitswerte im Vergleich zu den experimentellen Daten zu früh verlässt. Bei den 3D-Systemen wurden unterschiedliche Clustergrößen betrachtet sowie eine effektive Leitfähigkeit für die Silbercluster benutzt, die den Size-Effekt berücksichtigen. Als Ergebnis kann festgehalten werden, dass sämtliche 3D-Modelle das experimentell gefundene Plateau nicht beschreiben können. Verkleinert man die Clustergröße, so verringert einerseits der Size-Effekt die Leitfähigkeit, andererseits vergrößert der zunehmende 3D-Charakter (Perkulations-Finite-Size-Effekt) wiederum die Leitfähigkeit, da im 3D-System die Perkulationsgrenze gegenüber dem 2D-System zu deutlich geringeren Werten verschoben wird. Beide Einflüsse heben sich in ihrer Wirkung auf die Leitfähigkeit in etwa auf.

Im 2D-System bei einer Clustergröße von 150 nm (= komplette Schichtdicke) findet sich eine sehr gute Beschreibung des Plateaus, allerdings zeigt sich immer noch für $x > 6$ eine etwas zu hohe berechnete Leitfähigkeit. Dies deutet darauf hin, dass die Perkulationsgrenze im Realsystem zu noch größeren Werten hin verschoben ist. Eine Anordnung, in der die Silberpfade sich erst bei höheren Ag-Konzentrationen zu verbinden beginnen, ist durch eine Lamellenstruktur

gegeben. Eine solche Anordnung wurde durch Mogwitz et al. [188] in dünnen $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ -Filmen experimentell gefunden, die das Vorhandensein von Clustern mit einer Größe von 130 nm experimentell nachwiesen, was bei einer Schichtdicke von 150 nm die Annahme eines 2D-Systems unterstreicht. Eine erzwungene Verschiebung der Perkulationsgrenze im FEM Modell belegt, dass die experimentellen Daten durch ein 2D-System mit erhöhter Perkulationsgrenze gut beschrieben werden können — was theoretisch im Einklang mit dem zweidimensionalen Modell von Parish und Littlewood steht.

Ausblick: Bestimmung der Perkolation über magnetische Rasterung

Die Simulation der Stromstärke innerhalb der Proben deutet auf die Möglichkeit hin, die Perkulationspfade anhand des durch sie entstehenden Magnetfeldes zu bestimmen. Jeder Stromfluss durch die perkolierende Probe erzeugt über dem Strompfad — und damit über dem Silbereinschluss — ein verstärktes Magnetfeld, das mittels eines geeigneten Magnetfelddetektors gemessen werden kann. Eine Abrasterung der Proben führt dann zu einem direkten visuellen Eindruck der in der Probe vorhandenen Pfade. Das Magnetfeld über den Pfaden gibt zwar aufgrund seiner räumlichen Ausdehnung kein allzu scharfes Bild, aber durch Bildung der örtlichen räumlichen Ableitung des Feldes werden die Unterschiede zwischen Proben mit perkolierenden Pfaden und solchen ohne gravierend, wie in Abbildung 4.31 gezeigt wird.

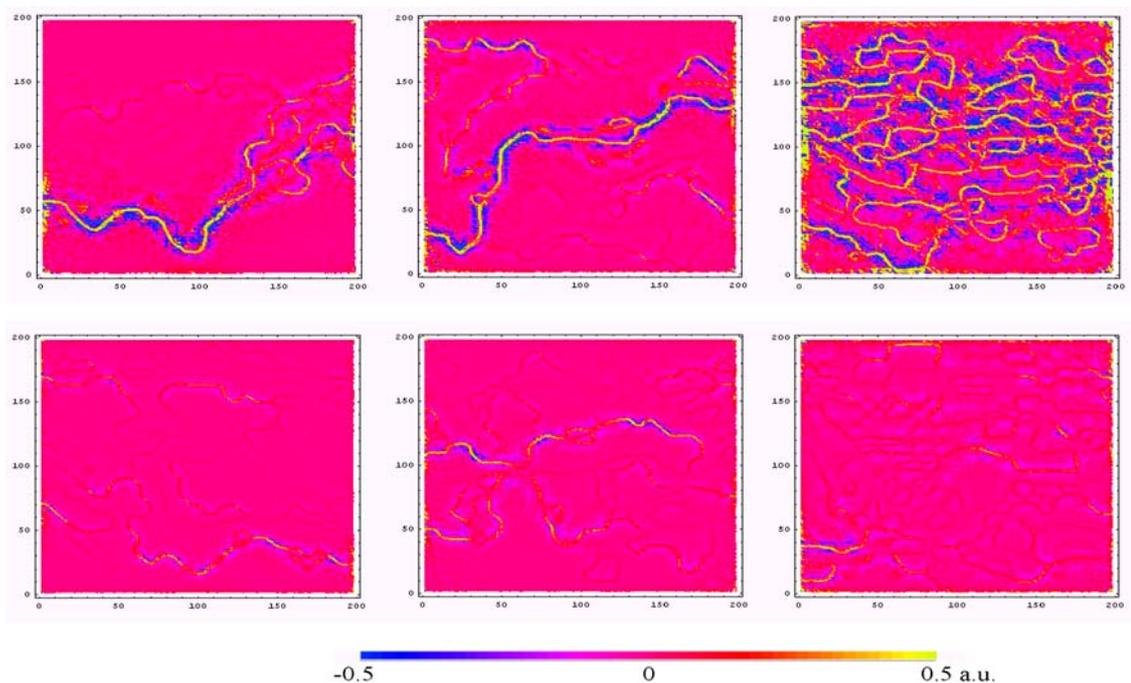


Abbildung 4.31: Visualisierung der Strompfade in Ag_xSe über die zweite lokale örtliche Ableitung des Magnetfeldes über dünnen Schichten mit (oben) und ohne (unten) perkolierende Pfade. Links: 35 % Silberanteil, Mitte: 40 % Silberanteil, Rechts: 55 % Silberanteil.

4.1.5 Auswertung des LMR

Nach der Klärung der Mikrostruktur der untersuchten Proben wird in dem nun folgenden Kapitel das Hauptthema dieser Arbeit vorgenommen: die Untersuchung des LMR in heterogenen 2-Phasen-Systemen und der Vergleich des Verhaltens mit den aktuellen theoretischen Modellen. Wie bereits gezeigt, ist in allen MR-Kurven ein Übergang der quadratischen B-Feld-Abhängigkeit bei niedrigen Feldwerten zu einem linearen Verhalten bei hohen Feldstärken zu beobachten. Hier sollen die aus meiner Sicht favorisierten Modelle von Parish und Littlewood und Solin et al. (siehe Kapitel 2.4.8) untersucht werden, da sie aus meiner Ansicht nach dem allgemeinsten und anschaulichsten Ansatz entsprechen und somit den Ansätzen des QMR von Abrikosov [10] und der EMA [11] überlegen sind. Ein allgemeiner Ansatz und Beschreibung mittels μ , MR und B_{linear} kommt zudem den hier vorliegenden komplexen Mikrostrukturen entgegen.

Die Auswertung der Kurven im Hinblick auf den Übergang zwischen quadratischem und linearem Verhalten erfolgt anhand ihrer ersten und zweiten Ableitung nach der magnetischen Flussdichte. In Abbildung 4.32 ist die Vorgehensweise beispielhaft für die transversale Messung an der 115 nm dicken Ag_2Se -Schicht (links) und die polare Messung der 680 nm dicken Schicht (rechts) dargestellt. Im ersten Schritt wird für jeweils neun Messpunkte die Steigung der normierten MR-Kurve gebildet, wobei für ein akzeptables Rauschverhalten eine Mittelung über jeweils fünf Steigungswerte gebildet wird. Im zweiten Schritt wird die Steigung der 1. Ableitungskurve berechnet (ebenfalls über neun Messpunkte mit anschließender Mittelung der Werte über fünf Steigungswerte) und anschließend auf den Wert bei der niedrigsten Feldstärke normiert. Man erhält eine exponentiell abfallende Kurve, die durch die diskrete Messwertaufnahme trotz der Mittelung noch recht große Schwankungen aufweist. Mittels eines logarithmischen Fits wird der Abfall der normierten 2. Ableitung charakterisiert und mit dieser Gleichung die Flussdichte bestimmt, bei der die zweite Ableitung der Messkurve auf 30 % abgefallen ist. Dieser Wert wird willkürlich als Übergangsfeld B_{linear} von linearem zu quadratischem Verhalten festgelegt.

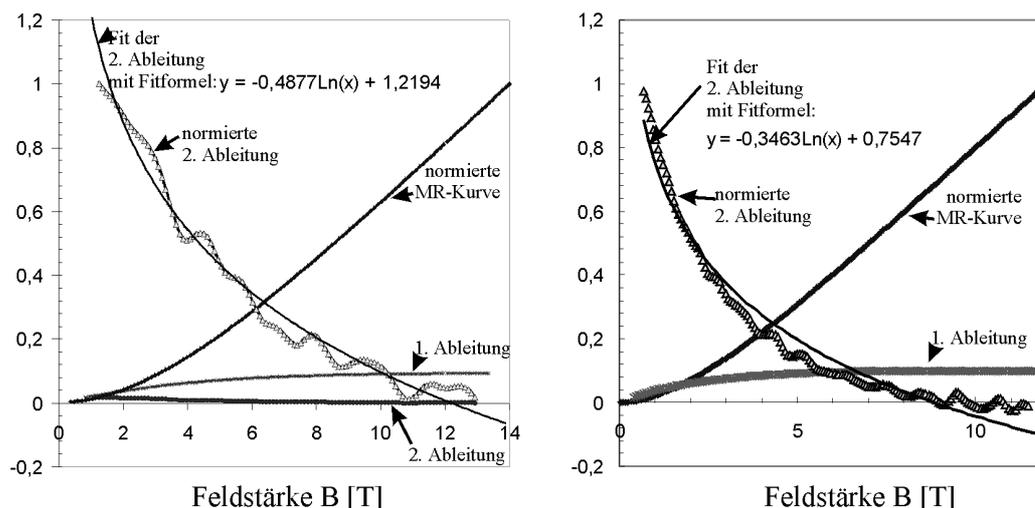


Abbildung 4.32: Auswertung des LMR am Beispiel der 115 nm dicken Schicht bei transversaler Messkonfiguration (links) und der 680 nm dicken Schicht bei polarer Messkonfiguration (rechts).

Problematisch bei dieser Auswertung sind die Messkurven von sehr dünnen Schichten, wo die schwache Lokalisierung den OMR überlagert, so dass bei der Durchführung der beschriebenen

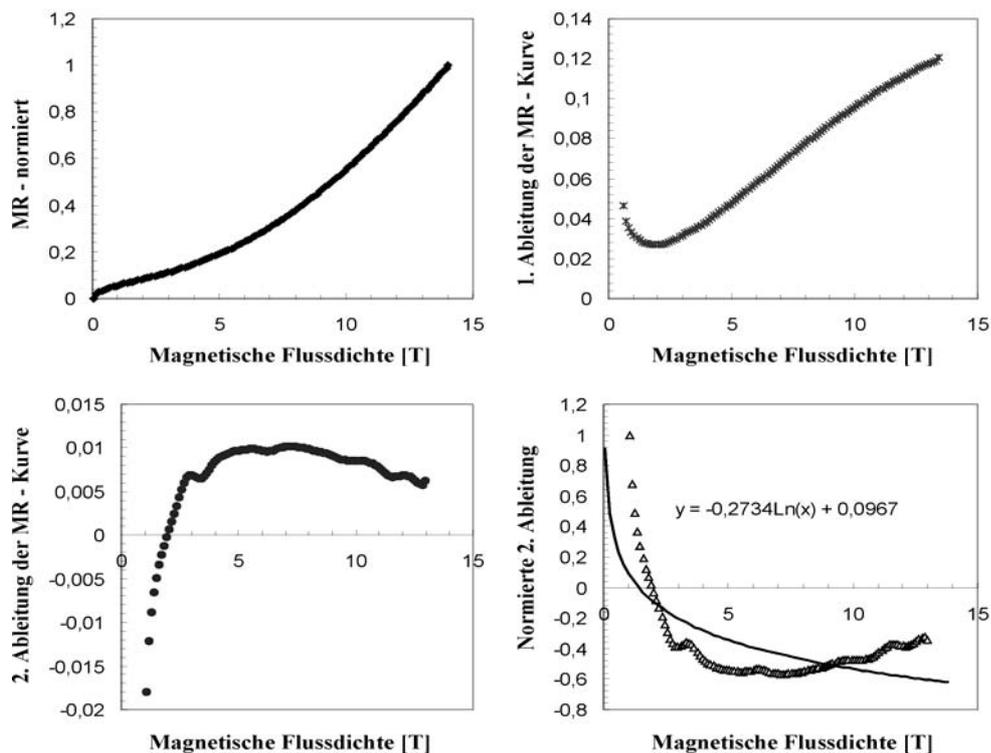


Abbildung 4.33: Beispiel zu möglichen Fehlern bei der Auswertung des LMR in sehr dünnen Schichten am Beispiel der 27 nm dicken Schicht bei transversaler Messkonfiguration. Oben links: Normierte MR-Kurve, oben rechts: 1. Ableitung der normierten MR-Kurve, unten links: 2. Ableitung der normierten MR-Kurve, unten rechts: Normierte 2. Ableitung der MR-Kurve mit logarithmischem Fit und Angabe der Fit-Gleichung.

Auswerteschritte hierdurch bedingt Fehler auftreten können. In Abbildung 4.33 wird dies am Beispiel der transversalen Messung an der 27 nm dicken Schicht demonstriert. Wie man an der MR-Kurve (Abb. 4.33, oben links) erkennen kann, ist die Steigung bei Flussdichten bis 1 T durch die schwache Lokalisierung stark erhöht und sinkt beim Übergang zum OMR auf geringe Werte nahe Null ab, wo ein je nach Kurve mehr oder weniger breites Minimum durchschritten wird. Anschließend steigt die Steigung nahezu linear an, um ab etwa 13 T erste Anzeichen einer erneuten Abflachung der Steigung zu zeigen (Abb. 4.33, oben rechts). Bei der Bildung der zweiten Ableitung erhält man erst einen negativen Wert, der schnell gegen Null geht und sich dann nur noch geringfügig ändert (Abb. 4.33, unten links), so dass bei einem Fit der normierten Kurve ein Abfall auf 30 % schon bei einem Feld von ca. 1 T erhalten wird, was aber ein viel zu geringer Wert ist (Abb. 4.33, unten rechts).

Eine Möglichkeit, diesen Fehler zu vermeiden, ist die Verwerfung der Messwerte im Einflussbereich der schwachen Lokalisierung, so dass die 1. und 2. Ableitung der Messkurve erst ab dem Flusswert ausgewertet wird, wo die Änderung der Steigung tatsächlich durch den Übergang zwischen OMR und LMR bedingt ist. Werden allerdings zu viele Messwerte nicht berücksichtigt, befindet man sich möglicherweise schon im linearen Abhängigkeitsbereich der Magneto-resistenz und erhält dadurch ein viel zu hohes Übergangsfeld, da sich die 2. Ableitung kaum noch verändert. Eine sinnvolle Einschränkung der Messwerte muss also für jede MR-Kurve „von Hand“ erfolgen, indem der Übergang zwischen schwacher Lokalisierung, OMR und LMR visuell vom Auswerter abgeschätzt wird. Überdeckt die schwache Lokalisierung allerdings den

Übergang völlig wie z.B. bei den MR-Kurven für die bis 13 nm dicken Schichten (in der polaren Messkonfiguration gilt das nur für die 9 nm dicke Schicht), ist eine Auswertung des LMR nicht möglich.

Trägt man die so ermittelten Übergangsfelder gegen die Schichtdicke auf, so erhält man die in Abbildung 4.34 gezeigten Abhängigkeiten. Bei allen drei Messkonfigurationen erhält man ein mit zunehmender Schichtdicke abfallendes Übergangsfeld B_{linear} . Die Ergebnisse für die transversale Messung zeigen für die 25 nm dicke Schicht und eine der beiden 27 nm dicken Schichten extrem hohe Werte von mehreren tausend T, deren Ermittlung aber aufgrund der Überlagerung durch die schwache Lokalisierung sehr fragwürdig ist. Diese beiden Messpunkte wurden daher ignoriert und man erhält so Anfangswerte von ca. 60 T für die 39 nm und 44 nm dicke Schicht (Abb. 4.34, links), die sich mit zunehmender Schichtdicke auf etwa 3 T bei der 600 nm dicken Schicht verringern.

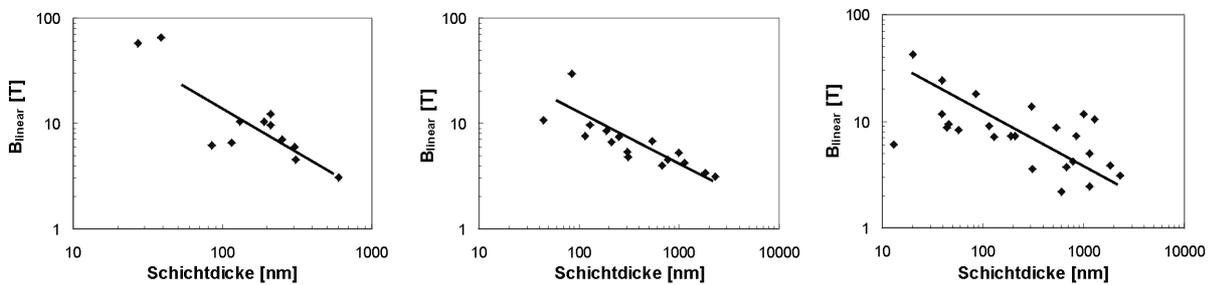


Abbildung 4.34: B_{linear} in Abhängigkeit von der Schichtdicke. Links: transversale Messung, Mitte: longitudinale Messung, Rechts: polare Messung. Die durchgezogene Linie veranschaulicht die Tendenz der Messwerte.

Bei der longitudinalen Messung liefert die Auswertung für die 56 nm dicke Schicht ein stark erhöhtes Übergangsfeld B_{linear} von etwa 250 T, doch auch hier war die Bestimmung des Übergangs vom Beitrag der schwachen Lokalisierung zum Kurvenverlauf des OMR problematisch. Bei Ignorieren des Wertes erhält man einen Anfangswert von ca. 30 Tesla für die 85 nm dicke Schicht und wie im transversalen Fall mit bis auf ca. 3 T abfallende Übergangsfelder — allerdings gilt die 3 T hierbei für die 2.3 μm dicke Schicht und bei der 600 nm dicken Schicht findet man ein Feld von etwa 5 T (Abb. 4.34, Mitte).

Die polare Messung liefert ein ähnliches Bild wie die longitudinale, allerdings mit einem Übergangsfeld von etwa 40 T für die 20 nm dicke Schicht, das dann bis auf 3 T bei der 2.3 μm dicken Schicht abfällt, wobei die Streuung der Messwerte größer ist (Abb. 4.34, rechts).

Das Verhalten des Magnetowiderstandes der Schichten (Abb. 4.7 und das eben geschilderte Verhalten) sind schon ein deutlicher Hinweis darauf, dass der MR und B_{linear} zusammenhängen, wie vom PL-Modell vorausgesagt. Nach der Theorie von Parish und Littlewood (siehe Kapitel 2.4.8) ist der MR proportional zur mittleren Beweglichkeit $\langle\mu\rangle$ falls $\Delta\mu/\langle\mu\rangle < 1$ und proportional zu $(\Delta\mu)$ falls $\Delta\mu/\langle\mu\rangle > 1$. Das Übergangsfeld B_{linear} hingegen tritt bei $\langle\mu\rangle^{-1}$ auf, wenn $\Delta\mu/\langle\mu\rangle < 1$ und bei $(\Delta\mu)^{-1}$ falls $\Delta\mu/\langle\mu\rangle > 1$. In den untersuchten Proben liegt der Fall $\Delta\mu/\langle\mu\rangle < 1$ vor, was durch die relativ großen Übergangsfelder bestätigt wird. Wenn man nun annimmt, dass die in den Hall-Messungen ermittelte Beweglichkeit ein Mittelwert über die komplette Probe ist, kann man den MR bei einer festen Feldstärke gegen diese mittlere Beweglichkeit $\langle\mu\rangle$ und das Übergangsfeld B_{linear} gegen das Inverse der mittleren Beweglichkeit $\langle\mu\rangle^{-1}$ auftragen und erhält die in Abbildung 4.35 gezeigten Graphen.

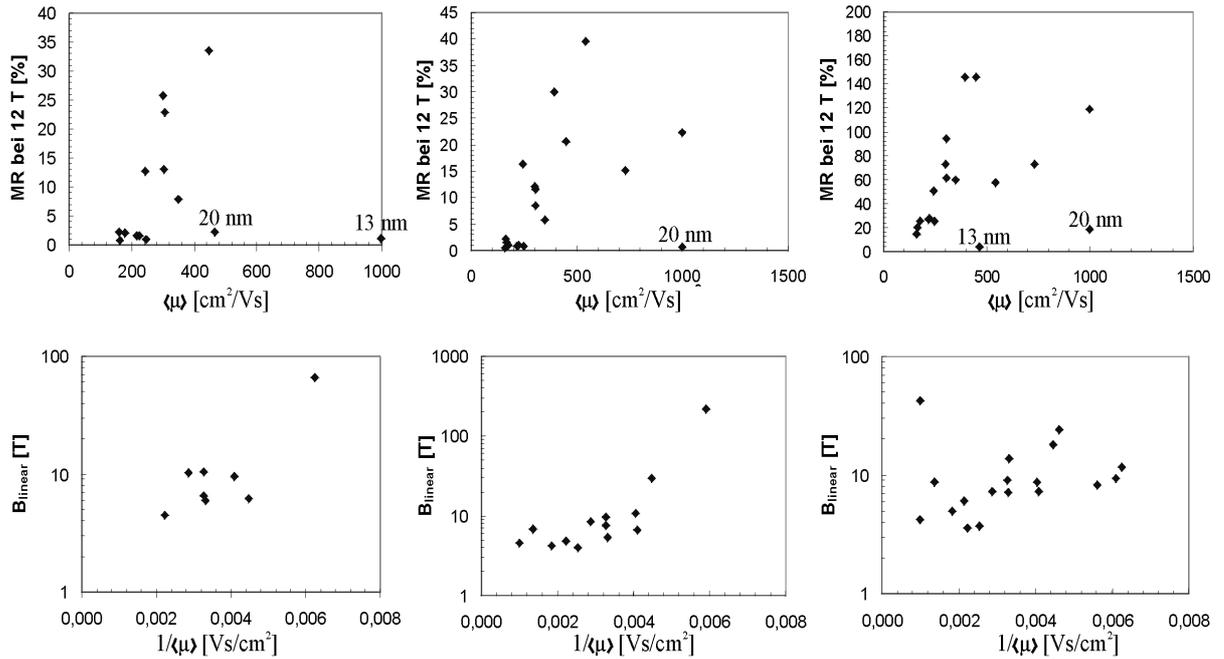


Abbildung 4.35: Oben: Magnetowiderstand in Abhängigkeit der mittleren Beweglichkeit $\langle\mu\rangle$. Unten: Übergangsfeld B_{linear} in Abhängigkeit der reziproken mittleren Beweglichkeit $\langle\mu\rangle^{-1}$. Links: transversale Messung, Mitte: longitudinale Messung, rechts: polare Messung.

Bei allen Messkonfigurationen zeigt sich, dass die Vorhersagen der Theorie grob erfüllt sind. Die Magnetoresistenz bei 12 T steigt mit der Beweglichkeit der Ladungsträger stark an, auch wenn einige Messpunkte von einer gedachten Geraden durch die Werte abweichen. Diese Messpunkte gehören aber in den meisten Fällen zu dünnen Schichten, bei denen zum ersten der Übergang vom OMR zum linearen Verhalten bei sehr hohen Feldern liegt und damit vermutlich nicht mehr im Feldbereich, in dem die Messungen durchgeführt wurden und zum zweiten die schwache Lokalisierung das gewohnte MR-Verhalten im Niedrigfeldbereich überlagert und so die Auswertung erschwert.

Da die Messdaten der Abhängigkeiten $B_{\text{linear}}(d)$ (Abb. 4.34) und $MR(d)$ (Abb. 4.7) aufgrund der Mikrostrukturabhängigkeit starke Streuungen aufweisen, wird nun versucht, diese beiden Größen direkt miteinander zu verbinden. Die Abhängigkeit des Magnetowiderstandes und des Übergangsfeldes von der Beweglichkeit im PL-Modell basiert auf der Mikrostruktur der Proben und ist damit auch eine Funktion der freien Weglänge l sowie der entsprechenden räumlichen Verteilung der Ladungsträgerbeweglichkeit. Diese Proportionalität kann als Produkt einer Konstanten k_1 und einer Funktion der Skalenlänge l beschrieben werden:

$$MR = \Delta\rho/\rho = k_1 \cdot f(l) \cdot \langle\mu\rangle \quad (4.11)$$

Wenn nun angenommen wird, dass die Abhängigkeit des Übergangsfeldes B_{linear} von der Beweglichkeit durch den gleichen Mechanismus verursacht wird wie der MR — nämlich durch die Mikrostruktur der Proben und damit der räumlichen Variation von μ und $\langle\mu\rangle$ sowie dem Unordnungsgrad in der Probe mit der entsprechenden Weglänge l — so kann die gleiche Skalenfunktion $f(l)$ zur Beschreibung der Abhängigkeit von $1/B_{\text{linear}}$ angenommen werden:

$$\frac{1}{B_{\text{linear}}} = k_2 \cdot f(l) \cdot \langle \mu \rangle \tag{4.12}$$

Stellt man nun die Gleichungen 4.11 und 4.12 nach $f(l)$ um und setzt sie gleich, so erhält man eine invers lineare Abhängigkeit der Magnetoresistenz vom Übergangsfeld B_{linear} , die nun unabhängig von der Mikrostruktur der Proben (also von μ und $\Delta\mu$) sein sollte:

$$MR = \frac{\Delta\rho}{\rho} = \frac{k_1}{k_2} \cdot \frac{1}{B_{\text{linear}}} \tag{4.13}$$

Abbildung 4.36 zeigt den Magnetowiderstand bei einer Feldstärke von 12 T, gemessen bei einer Temperatur von 4.2 K, aufgetragen gegen das reziproke Übergangsfeld $1/B_{\text{linear}}$ für die drei untersuchten Messkonfigurationen. Die angenommene lineare Abhängigkeit zeigt sich deutlich in allen drei Fällen, auch wenn vereinzelte Messpunkte von der theoretisch erwarteten Kurve abweichen.

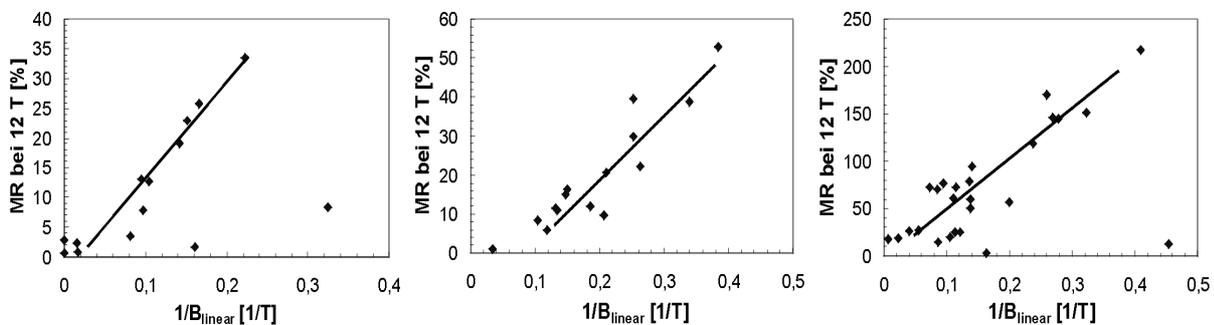


Abbildung 4.36: Magnetowiderstand als Funktion des reziproken Übergangsfelds $1/B_{\text{linear}}$. Links: transversale Messung, Mitte: longitudinale Messung, rechts: polare Messung. Die durchgezogenen Linien verdeutlichen die Tendenz der Messwerte.

Hiermit bestätigt sich das PL-Modell in erstaunlicher Art und Weise und zeigt, dass auch in der 3D-Konfiguration der polaren Messanordnung die Vorhersage des PL-Modells erfüllt wird. Dies war nicht zu erwarten, da das PL-Modell nur den transversalen Fall in einem 2D-Modell abdeckt.

Die hier vorgestellten Ergebnisse geben neben dieser Bestätigung neue Anstöße, die PL-Theorie auch für den 3D-Fall zu untersuchen. In Anbetracht der hier eindeutigen Ergebnisse ist zu erwarten, dass auch das 3D-System für die longitudinale und polare Konfiguration und Gleichung 4.13 ihre Gültigkeit behält.

4.1.6 Messungen bei Raumtemperatur

Die Temperaturabhängigkeit des MR im $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ wurde schon von F. Gruhl [9] ausführlich untersucht, weshalb im Rahmen dieser Arbeit nur noch als Bestätigung ihrer Ergebnisse der MR weniger Proben bei Raumtemperatur gemessen wird und die qualitativen Ergebnisse dieser Messungen in Kurzform dargestellt werden.

Sowohl die Beweglichkeit der Ladungsträger als auch ihre Konzentration im Halbleiter Ag_2Se ist stark temperaturabhängig, was wiederum die mittlere freie Weglänge der Elektronen sowie die stattfindenden Streumechanismen beeinflusst.

Dementsprechend verschwindet bei hohen Temperaturen der Beitrag der schwachen Lokalisierung vollständig und nur noch der OMR und der lineare Magnetowiderstand tragen zum MR bei, wie man in Abbildung 4.37 an den Kurven für die 46 nm und 57 nm dicken Schichten erkennt. Zudem verringert sich der MR mit zunehmender Temperatur und B_{linear} verschiebt sich zu höheren Feldsärken (Kurven der 115 nm und 600 nm dicken Schichten).

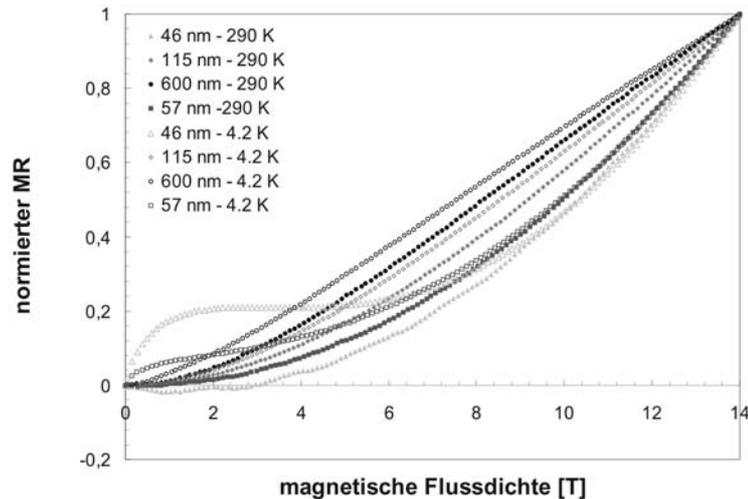


Abbildung 4.37: Vergleich des MR-Verhaltens einiger ausgewählter Proben bei 4.2 K und 290 K.

Mit einem Anstieg von 6.6 T auf 11.7 T verdoppelt sich B_{linear} beinahe für die 115 nm dicke Schicht, während bei der 600 nm dicken Schicht nur noch ein Anstieg um einen Faktor 1.7 zu beobachten ist.

Kreutzbruck et al. haben Formel 4.13 auch für höhere Temperaturen untersucht [195] und es zeigte sich, dass trotz der Erhöhung von B_{linear} die Vorhersagen des PL-Modells ihre Gültigkeit behalten.

4.2 Messungen an Silbergoldtellurid Ag_3AuTe_2

Um die Theorie von Parish und Littlewood [15, 16] weiter zu stärken, sollte ein weiteres heterogenes 2-Phasen-System untersucht werden. Die Komplexität und der hohe präparative Aufwand, mehr als 20 Schichten auf die wesentlichen Größen der PL-Theorie hin zu untersuchen (μ , MR und B_{linear}), sollte beim folgenden System vereinfacht werden. Idee ist hierbei, die Beweglichkeit nicht über die Schichtdicke als Einflussgröße für die Mikrostruktur zu kontrollieren, sondern die Änderung von μ , MR und B_{linear} über die Temperatur zu steuern. Bei einer einzelnen Probe ergibt sich keine Variation der Mikrostruktur und diese kann nun als Einflussgröße von vornherein vernachlässigt werden. Aufgrund seiner Defektstruktur, die der von $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ ähnelt, erwartet man beim $\text{Ag}_3\text{Au}_{1.1}\text{Te}_2$ ein ähnliches MR-Verhalten wie im Silberselenid und kann dieses System als Parallelsystem für Silberselenid verwenden.

Da hier der LMR unabhängig von der schwachen Lokalisierung untersucht werden sollte, wurde eine große Bulk-Probe dieses Materials für die Untersuchungen hergestellt. In der in Abbildung 3.18 dargestellten Probe sind kleine, kaum 10 nm große Gold-Ausscheidungen zu erkennen, d.h.

auch die Kornstruktur ähnelt der der $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ -Schichten. Aufgrund der durch die Unregelmäßigkeit der Probe bedingten Kontaktierungsschwierigkeiten wurde diese nur bei der transversalen Magnetfeldeinstellung untersucht, wobei man ein Verhalten findet, das dem des Silberselenids sehr ähnlich ist.

Im ersten Schritt wurde der Magnetowiderstand der Ag_3AuTe_2 -Bulk-Probe gemessen (siehe Abb. 4.38). Die Abmessungen der Probe lagen in allen drei Raumrichtungen in der Größenordnung von Millimetern, so dass wie erwartet bei geringen Feldstärken kein Beitrag der schwachen Lokalisierung zum Gesamtwiderstand zu beobachten ist. Wie beim Silberselenid nimmt der MR mit steigender Temperatur ab, während das Übergangsfeld von quadratischem zu linearem Verhalten B_{linear} mit steigender Temperatur ansteigt.

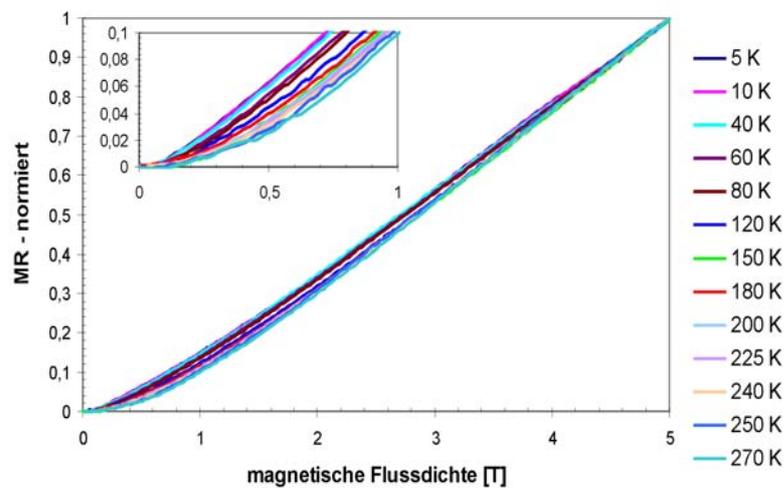


Abbildung 4.38: Magnetowiderstandsverhalten der Ag_3AuTe_2 -Bulkprobe für Temperaturen von 5 K bis 270 K. Der Einsatz zeigt eine Vergrößerung des Bereichs bis 1 T.

Eine Analyse der Übergangsfelder B_{linear} , der Magnetoresistenzen in Abhängigkeit von der Temperatur sowie die Abhängigkeit des MR von $1/B_{\text{linear}}$ zeigt Abbildung 4.39, wobei die Daten für $1/B_{\text{linear}}$ in Analogie zu der in Kapitel 4.1.5 dargestellten Methode bestimmt wurden.

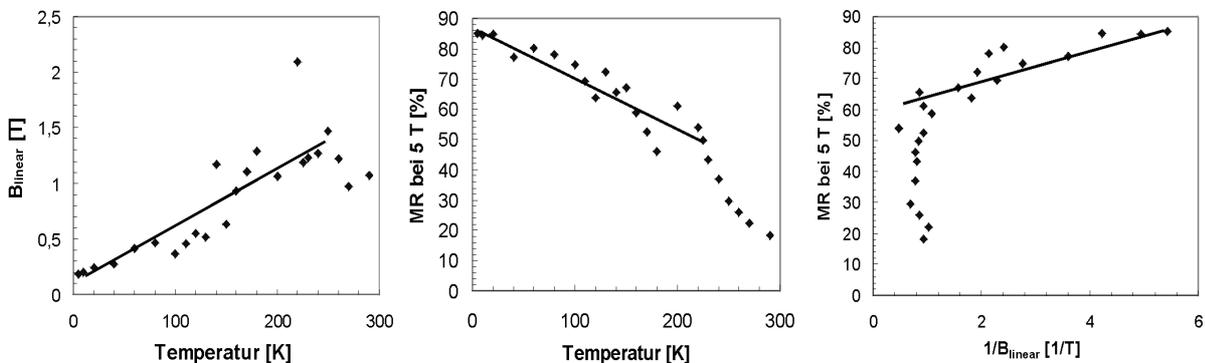


Abbildung 4.39: B_{linear} (links) und MR (Mitte) als Funktion der Temperatur sowie MR als Funktion von $1/B_{\text{linear}}$ (rechts).

Die Linearität von B_{linear} als Funktion der Temperatur zeigt sich deutlich in Abbildung 4.39 (links) und steht in Analogie mit dem von Gruhl beobachteten Verhalten im Silberselenid [9]. Jedoch erhöht sich die Streuung der Messwerte mit steigender Temperatur und ab ca. 250 K

scheint B_{linear} wieder abzufallen. Der Magnetowiderstand nimmt mit steigender Temperatur (bis zu ca. 220 K) ebenfalls nahezu linear und mit geringen Streuungen der Messwerte ab, ab ca. 220 K aber fallen die Messpunkte schneller als erwartet ab (Abb. 4.39, Mitte)). Trägt man nun den MR als Funktion des reziproken Übergangsfeldes $1/B_{\text{linear}}$ auf (Abb. 4.39, rechts), sieht man, dass bei tiefen Temperaturen die Linearität der beiden Größen wie erwartet zu beobachten ist (MR -Werte über 60 %), bei höheren Temperaturen allerdings das lineare Verhalten abbricht und die Messwerte unerwarteterweise sehr schnell absinken.

Betrachtet man nun die Abhängigkeit des Widerstandes von der Temperatur, so erhält man die in Abbildung 4.40 (links) gezeigte Kurve.

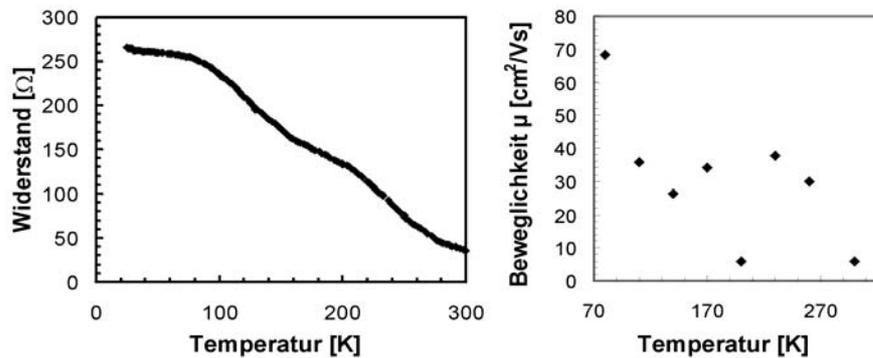


Abbildung 4.40: Widerstand (links) und Ladungsträgerbeweglichkeit μ (rechts) der $\text{Ag}_3\text{Au}_{1.1}\text{Te}_2$ -Probe als Funktion der Temperatur.

Die Probe zeigt demnach nur halbleitendes Verhalten, ohne Metall-Isolator-Übergang, was darauf schließen lässt, dass die Goldcluster innerhalb der Probe keinen perkolierenden Pfad bilden bzw. weiter von einem perkolierenden Pfad entfernt sind, als es in den Silberselenid-Proben der Fall ist, wo der Silberanteil nahe der Perkolationsgrenze eingestellt wurde. Ein ähnliches Verhalten dokumentierte Gruhl [9] bei einer $\text{Ag}_{1.18}\text{Se}$ -Schicht, die einen Silbergehalt weit weg von der Perkolationsgrenze aufweist, was die eben getätigte Annahme erhärtet.

Bei den $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ -Proben wurde dieser Abbruch der Linearität nicht beobachtet, allerdings wiesen auch alle untersuchten Proben einen Silbergehalt im Perkolationsbereich auf und die Beeinflussung der Beweglichkeit μ wurde über die Schichtdicke vorgenommen. Daraus kann geschlossen werden, dass die Linearität nur für Proben mit Metallgehalten innerhalb gewisser Grenzen der Perkolationschwelle gilt oder innerhalb gewisser Beweglichkeitsverteilungsgrenzen. Da die Mikrostruktur bei der $\text{Ag}_3\text{Au}_{1.1}\text{Te}_2$ -Probe gleich bleibt, scheint es plausibel, dass der beobachtete Abbruch der Linearität zwischen MR und B_{linear} auch von anderen, temperaturabhängigen Faktoren herrühren kann. Daher ist zu vermuten, dass die Änderung der Beweglichkeit durch die Schichtdicke einen anderen Charakter aufweist als die Änderung der Beweglichkeit durch die Temperatur. Bei einer Erhöhung der Temperatur verändert sich das Phononenspektrum proportional zur Temperatur, während bei einer Veränderung der Mikrostruktur die Beweglichkeit durch Streuung an Grenzflächen verändert wird, das Phononenspektrum aber gleich bleibt.

Um die Streuung der Messwerte zu verringern, wurde die $\text{Ag}_3\text{Au}_{1.1}\text{Te}_2$ -Probe zwecks besserer Kontaktierung am Physikalisch-Chemischen Institut der JLU Gießen in dünne Scheiben von 0.9 mm Dicke geschnitten, die aufgrund der schon ermittelten niedrigen Übergangsfelder B_{linear} nur noch bis zu einer Flussdichte von 3 T untersucht wurden.

Wie erwartet zeigt die Messung der $\text{Ag}_3\text{Au}_{1.1}\text{Te}_2$ -Schicht qualitativ das selbe MR -Verhalten wie die Bulkprobe (siehe Abb. 4.41): Das Übergangsfeld von quadratischem zu linearem Verhalten

B_{linear} steigt mit zunehmender Temperatur linear an, wobei die Streuung der Messwerte um die Gerade nicht so groß sind wie bei der Bulk-Probe. Das Startfeld allerdings ist etwa um den Faktor 3 größer als bei der Bulk-Probe, weicht aber schon bei 225 K mit 1.07 T im Vergleich zu 1.19 T kaum noch vom Wert der Bulk-Probe ab.

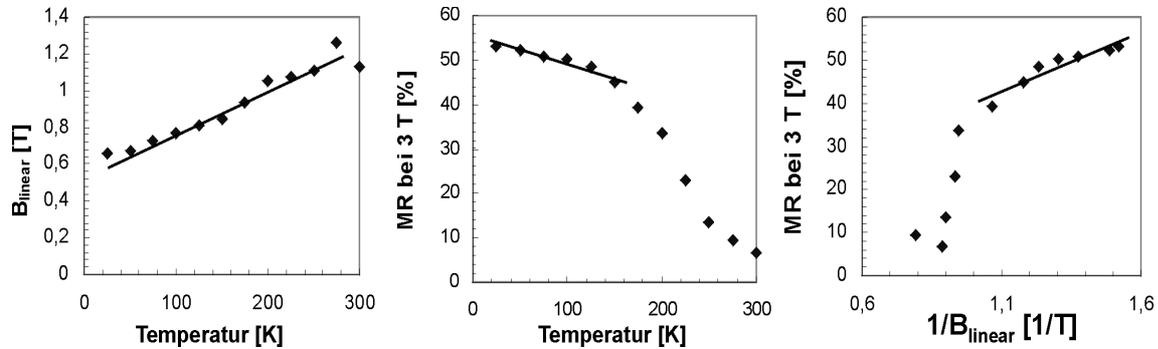


Abbildung 4.41: B_{linear} (links) und MR (Mitte) als Funktion der Temperatur sowie MR als Funktion von $1/B_{\text{linear}}$ (rechts). Die durchgezogenen Linien verdeutlichen die Tendenz der Messwerte.

Ein Vergleich der MR-Werte der Bulk-Probe bei 3 T mit denen der Schicht zeigt, dass beide Kurven maximal 5 % voneinander abweichen — also im Rahmen der Messgenauigkeit die gleichen Werte annehmen. Allerdings ist hier ersichtlich, dass die Abweichung vom linearen MR-Abfall mit der Temperatur schon ab 175 K einzusetzen beginnt, was sich auch im Verhalten der Abhängigkeit des MR von $1/B_{\text{linear}}$ zeigt.

Die Beweglichkeit der Ladungsträger in der $\text{Ag}_3\text{Au}_{1.1}\text{Te}_2$ -Probe wurde über Hall-Messungen als Funktion der Temperatur bestimmt und ist in Abbildung 4.40 (rechts) dargestellt. Die Kontaktierung erwies sich allerdings bei der geringen Größe der Proben als sehr kompliziert und die Bedingung, dass die Kontaktpunkte klein gegen die Probengröße sein sollen, ist nur unzureichend erfüllt, genauso wie die Symmetrie der Proben keine genau quadratische Anordnung der Kontaktpunkte erlaubte. Dementsprechend sind die Ergebnisse der Hall-Messung kritisch zu sehen, doch eine qualitative Auswertung der Beweglichkeit ist trotzdem durchführbar. Die Beweglichkeit sinkt zunächst mit steigender Temperatur, ähnlich dem Verlauf in Abhängigkeit von der Schichtdicke in den nicht-perkolierten $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ -Proben, steigt dann aber wieder leicht an und durchläuft ein Maximum bei etwa 220 K, bevor sie wieder abfällt. Genau ab diesem Temperaturwert fällt das Verhalten der $MR(B_{\text{linear}})$ -Messwerte vom linearen Verlauf ab, so dass die Annahme erhärtet wird, dass hier ein anderer temperaturabhängiger Effekt eine Rolle spielt, der bisher nicht betrachtet wurde.

Die gute Entsprechung des LMR-Verhaltens von $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ und $\text{Ag}_3\text{Au}_{1.1}\text{Te}_2$ bis zu einer Temperatur von etwa 200 K zeigt, dass die Variation der Beweglichkeit eines Materials durch Veränderung der Schichtdicke wie bei den $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ -Proben im Hinblick auf den LMR in gewissem Rahmen die gleiche Wirkung hat wie eine Veränderung der Beweglichkeit durch die Temperatur, wie es beim Silbergoldtellurid vorgenommen wurde.

Ein hervorragender Ansatz zur tiefergehenden Untersuchung der Vorgänge im $\text{Ag}_3\text{Au}_{1.1}\text{Te}_2$ und zum weiteren Vergleich mit den Ergebnissen der Silberselenidproben wäre die Herstellung dünner $\text{Ag}_3\text{Au}_x\text{Te}_2$ -Schichten mit einem Goldgehalt in der Nähe der Perkolationsgrenze. Da die Goldpfade in der Ag_3AuTe_2 -Matrix wesentlich einfacher zu erkennen sind als die Silberpfade in der Ag_2Se -Matrix, wäre hiermit auch eine Bestätigung der Beobachtungen der schwachen Lokalisierung möglich und der Beleg, dass hiermit die Mikrostruktur einer Probe zuverlässig bestimmt werden kann.

Kapitel 5

Zusammenfassung und Ausblick

Anwendungen, die durch die Beeinflussung der Elektronenbewegung durch Magnetfelder und die dadurch auftretende Änderung des elektrischen Widerstands möglich wurden, sind aus unserem heutigen Leben nicht mehr wegzudenken. Daher erweckte die Entdeckung eines linearen magnetoresistiven Effekts (LMR) in Silberchalkogeniden 1997 durch Xu et al. [2] ein massives Interesse an diesem Material, da diese Eigenschaft ideal für einen Einsatz als Sensormaterial ist [21, 3].

In den auf Xus Entdeckung folgenden Untersuchungen [5, 6, 7, 8, 9, 196, 197] stellte sich heraus, dass das MR-Verhalten der Silberchalkogenide stark von der Mikrostruktur und damit auch der Zusammensetzung ($\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ und $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Te}$ mit der Stöchiometrieabweichung δ) der Proben abhängt. Das erste theoretische Erklärungsmodell dieses Effekts von Abrikosov basiert demzufolge auf der Annahme, dass in dem nicht-magnetischen halbleitenden System Ag_2Se kleine clusterförmige Ausscheidungen des Überschusssilbers eingebettet sind, wodurch eine lineare Abhängigkeit des spezifischen Widerstandes vom angelegten Magnetfeld resultiert [10]. Ein weiteres Modell von Guttal und Stroud modellierte den Widerstand des Gesamtsystems in Anlehnung an die „effektive-medium-approximation“ als Ergebnis der Einzelwiderstände seiner Komponenten [11], wobei bei bestimmten Volumenverhältnissen und Einschlussformen ebenfalls ein lineares MR-Verhalten auftritt [13, 14].

In einem klassischen Ansatz, basierend auf einem zweidimensionalen Widerstandsnetzwerk aus vierpoligen Widerständen, zeigten Parish und Littlewood, dass eine inhomogene Verteilung der Ladungsträgerbeweglichkeit generell zu einem transversalen linearen Magnetowiderstand bei hohen Feldstärken führt und dass das Übergangsfeld von quadratischem zu linearem Verhalten ebenfalls hiervon abhängt [15, 16]. Geometrisch ähnlich hierzu ist ein Modell von Solin et al. [17, 18], die zeigten, dass der Widerstand eines in van-der-Pauw-Geometrie kontaktierten Halbleiters (InSb) mit eingeschlossenem metallischem Goldzylinder bei idealem Radius desselben zu linearen MR-Effekten von 750.000 % bei Raumtemperatur und 4 T führt. Hierbei ändert ein angelegtes Magnetfeld die Funktion des Metalleinschlusses von einem Kurzschluss zu einer Stromunterbrechung. Allerdings zeigt sich im Gegensatz zum LMR für eine einzelne van-der-Pauw-Einheit ein quadratisches und bei hohen Flussdichten sättigendes Widerstandsverhalten.

Diese beiden klassischen Bilder sowie die sich daraus ergebenden Abhängigkeiten des LMR bilden die theoretische Grundlage der Untersuchungen dieser Arbeit. Silberselenid ($\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$) ist ein Halbleiter mit kleiner Bandlücke (0.07 eV), in dem sich bei einer Stöchiometrieabweichung von $\delta > 10^{-4}$ überschüssiges Silber in Form von Clustern und Lamellen entlang der Korngrenzen

abscheidet [8, 9, 195]. Damit entspricht es sowohl dem Bild einer diskontinuierlichen Beweglichkeit, das im Modell von Parish und Littlewood angenommen wurde als auch dem Bild von Solin — nur mit vielen mikroskopisch kleinen eingeschlossenen Metallinhomogenitäten in einer halbleitenden Umgebung statt eines großen Einschlusses.

Die Variation der Beweglichkeit, die bei dem PL-Modell entscheidend ist, und die Veränderung der Metalleinschlüsse, die für das Modell von Solin ausschlaggebend ist, wurde bei den Silberselenid-Proben über die Mikrostruktur der Proben eingestellt, die wiederum von der schichtdickenabhängigen Korngröße im inhomogenen Material abhängt. Mit steigender Schichtdicke (von 9 nm auf 2.3 μm) erhöht sich die Korngröße, was bei nahezu konstanter Silberkonzentration im $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ sowohl die Ladungsträgerbeweglichkeit als auch die Größe der Metallinhomogenitäten entscheidend beeinflusst. Ab einer bestimmten Schichtdicke ist zudem die Wahrscheinlichkeit für ein Vorliegen perkolierter Silberpfade stark erhöht, was sich signifikant auf das Transportverhalten der Proben auswirkt. Für die Beantwortung der Frage nach dem Einfluss perkolierter Silberpfade auf das Transportverhalten ist daher zunächst die Untersuchung dieser Pfade nötig, was allerdings mit elektronenoptischen oder chemischen Methoden sehr aufwändig und ohne Zerstörung der Probe kaum möglich ist. Daher wurde im Rahmen dieser Arbeit ein geeignetes Mittel herausgearbeitet, um die Mikrostruktur der Proben zuverlässig zu untersuchen und ein Vorliegen perkolierter leitender Pfade zu bestimmen.

Der spezifische Widerstand der im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Silberselenidproben bei Nullfeld fällt mit zunehmender Schichtdicke um mehr als eine Größenordnung stärker ab als theoretisch aufgrund des klassischen Size-Effekts nach Sondheimer erwartet. Dieses Verhalten konnte anhand von Simulationen auf Basis der Finite-Elemente-Methode eindeutig als 2D-Perkolationsphänomen identifiziert werden. Zur Erhärtung der Perkolationsannahme wurde in einer van-der-Pauw-Anordnung der spezifische Widerstand der Proben unabhängig von der Schichtdicke bestimmt. Bei Schichtdicken um 40 nm zeigt sich hier ein Sprung von etwa 0.8 $\text{m}\Omega\text{cm}$ auf ca. 0.4 $\text{m}\Omega\text{cm}$; unterhalb von 40 nm wurde nur eine Schicht im Bereich der niedrigen Widerstände gefunden, während oberhalb nur eine den erhöhten Widerstandswert zeigte, so dass die Perkolationsgrenze in diesem Schichtdickenbereich anzusiedeln ist. Die entsprechende Ladungsträgerdichte und -beweglichkeit zeigt diesen abrupten Sprung nicht, so dass anhand dieser beiden Größen keine Unterscheidung der Proben in perkolierte / nicht-perkolierte Schichten möglich ist.

Glücklicherweise zeigen die gemessenen Magnetowiderstandskurven neben dem theoretisch erwarteten OMR und LMR einen weiteren Effekt, der bei genauer Betrachtung und Auswertung hervorragend zur Bestimmung der Mikrostruktur der Proben geeignet ist: die schwache Lokalisierung der Elektronen — ein Quantenphänomen, das durch die Rückstreuung zirkularer Elektronenwellen im Kristall zustande kommt und eine Änderung des Widerstandes bewirkt [52]. Durch ein äußeres Magnetfeld wird die Phasenkohärenz der Elektronenwellenfunktionen zerstört und der Widerstand im Magnetfeld verändert sich in charakteristischer Weise. Über die mathematische Auswertung dieses Verhaltens können die Phasendekohärenzlängen (inelastische Dekohärenzlänge L_i und Spin-Orbit-Dekohärenzlänge L_{SO}) in den Proben bestimmt werden und geben Rückschlüsse auf die Mikrostruktur, d.h. auf die Präsenz perkolierter Silberpfade, da bei deren Vorhandensein der elektrische Transport bevorzugt hierüber stattfindet, während bei deren Fehlen der Transport über die halbleitende Ag_2Se -Matrix vonstatten geht.

Die Messung der schwachen Lokalisierung und der damit verbundenen Dephasierungslängen ergab mit zunehmender Schichtdicke abfallende Spin-Orbit-Dephasierungslängen L_{SO} zwischen 5

nm und 160 nm — also in der Größenordnung der in der Literatur referierten Werte in dünnen Silberdrähten [72], was auf eine drahtartige Geometrie der Silberpfade in der Ag_2Se -Matrix schließen lässt. Die inelastische Dephasierungslänge L_i stieg hingegen mit der Schichtdicke an und lag mit Werten zwischen 22 nm und 210 nm um etwa eine Größenordnung niedriger als die in der Literatur erhaltenen Daten von ca. 2000 nm bei Gogam et al. [72] in dünnen Silberdrähten, aber nur noch etwa um einen Faktor 3 bis 4 unter dem von Cavalloni und Joss referierten Wert in dünnen Silberschichten [165]. Dies lässt schließen, dass die Charakteristik der $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ -Schichten im Hinblick auf die inelastische Dephasierung der einer dünnen Schicht ähnelt. Im Allgemeinen war die Spin-Orbit-Dephasierungslänge L_{SO} bei dünnen Schichten (unter 13 nm Schichtdicke) größer als die inelastische Dephasierungslänge L_i , was eine Dominierung der inelastischen Streuung bei sehr dünnen Schichten gegenüber der Spin-Orbit-Streuung bedeutet. Dies erklärt sich damit, dass in sehr dünnen Schichten die Wahrscheinlichkeit für perkolierende Silberpfade sehr gering ist und dementsprechend der elektrische Transport an vielen Stellen durch die Ag_2Se -Matrix stattfindet, während mit zunehmender Schichtdicke die Elektronenleitung mehr und mehr in die Silberpfade verlagert wird, wo die Spin-Orbit-Streuung dominiert. Dementsprechend steigt die inelastische Dephasierungslänge L_i an, während L_{SO} absinkt und für dickere Schichten ($d > 20$ nm) den elektrischen Transport bestimmt. Eine Auftragung der erhaltenen Werte gegen die Schichtdicke zeigt eine klare Aufteilung der Proben in zwei Bereiche, die als Trennung in perkolierte und nicht-perkolierte Schichten interpretiert wird. Damit wurde eine Möglichkeit herausgearbeitet, in makroskopischen heterogenen Schichten, bestehend aus einem halbleitenden und metallischen Material, ohne elektronenoptische Abbildungsmethoden festzustellen, ob perkolierende Metallpfade vorhanden sind — eine Technik, die wegweisend für die zukünftige Charakterisierung solcher Strukturen werden kann.

Der Magnetowiderstand der Schichten hängt generell signifikant von der Schichtdicke der Proben ab: Er steigt mit zunehmender Schichtdicke an und nähert sich mit 170 % bei der 2.3 μm dicken Schicht bei einer Feldstärke von 12 T langsam dem von Xu et al. beobachteten Bulk-Wert (370 % bei 5.5 T und 4.5 K). Da Kreuzbruck et al. in [22] Proben mit Dicken von 150 nm untersuchten, erklären sich hierüber auch die vergleichsweise geringen MR-Werte, die von ihnen gemessen wurden. Bei geringen Flussdichten zeigen die untersuchten Schichten nicht das von Xu beobachtete ausschließlich lineare Verhalten [2], sondern einen quadratisch von B abhängenden Kurvenverlauf (OMR), der mit zunehmender Flussdichte bei nahezu allen Proben in einen linearen, bis zu 14 T nicht sättigenden Verlauf übergeht (LMR). Das Übergangsfeld von quadratischem zu linearem Verhalten B_{linear} sinkt dabei mit steigender Schichtdicke ab, so dass die Beobachtung eines linearen MRs bis zu Feldern von wenigen 10^{-4} T von Xu im Rahmen dieses Modells als Verhalten im Bulk-Silber mit makroskopischen Abmessungen von der Tendenz her übereinstimmt.

In einem simplen theoretischen Ansatz zur Eliminierung der Mikrostruktur als bestimmende Größe erhält man eine lineare Abhängigkeit des MR als Funktion dieses inversen Übergangsfeldes — ein Verhalten, das in den Messungen dieser Arbeit eindeutig zu sehen ist. Hiermit bestätigt sich das Modell von Parish und Littlewood [15, 16] auf erstaunliche Art und Weise und zeigt, dass auch in der 3D-Konfiguration der polaren Messanordnung die Vorhersage des PL-Modells erfüllt wird. Dies war nicht zu erwarten, da das PL-Modell nur den transversalen Fall in einem zweidimensionalen System abdeckt. Die hier vorliegenden Ergebnisse geben neben dieser Bestätigung also auch neue Anstöße, die PL-Theorie für den 3D-Fall zu untersuchen. In Anbetracht der hier eindeutigen Ergebnisse ist zu erwarten, dass auch das 3D-System für die

longitudinale und polare Messkonfiguration die gleichen Beziehungen zeigt und die Linearität von MR und B_{linear} auch in diesen Systemen ihre Gültigkeit behält.

Als weitere Bestätigung der Aussagen des PL-Modells wurden Messungen an Silbergoldtellurid $\text{Ag}_3\text{Au}_{1.1}\text{Te}_2$ vorgenommen, das aufgrund mehrerer Eigenschaften als Parallelsystem zum Silberselenid angesehen werden kann. Silbergoldtellurid ist ebenfalls ein Halbleiter mit geringer Bandlücke (0.004 eV), in dem überschüssiges Gold in Form von Goldclustern ausgeschieden wird. Demnach zeigt es eine ähnliche Defektstruktur wie $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$, was ein ähnliches MR-Verhalten erwarten lässt. Um keine Beeinflussung durch die schwache Lokalisierung zu messen, wurde eine Probe mit Abmessungen in der Größenordnung von Millimetern in allen Raumrichtungen hergestellt und untersucht. Die Variation der Beweglichkeit wurde bei konstanter Schichtdicke über die Temperatur erzielt. Die Messungen an der Bulk-Probe für Temperaturen von 5 K bis 270 K zeigten wie erwartet bei geringen Flussdichten einen quadratischen Verlauf, der mit zunehmender Feldstärke in eine lineare Abhängigkeit übergeht. Die Absolutwerte des MR erreichen mit ca. 85 % bei 5 K und 5 T etwa ein Viertel des von Xu in Ag_2Se beobachteten Wertes in den Silberchalkogeniden, liegen aber durchaus in der Größenordnung der im Rahmen dieser Arbeit untersuchten $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ -Schichten. Der absolute Magnetowiderstand sinkt mit zunehmender Temperatur auf etwa 18 % bei 270 K und 5 T und zeigt bis zu dieser Flussdichte noch keine Anzeichen von Sättigung.

Der Übergang vom quadratischen zum linearen Verlauf verschiebt sich mit zunehmender Temperatur zu höheren Flussdichten (von 0.18 T bei 5 K zu 1.5 T bei 270 K), so dass eine Zunahme der Temperatur unter diesem Gesichtspunkt phänomenologisch einer Verminderung der Schichtdicke entspricht. Übersetzt man dieses Verhalten in Veränderung der mittleren Beweglichkeit, so steigt diese in (perkolierten) Silberselenidschichten mit zunehmender Schichtdicke, da die Streuung an Korngrenzen sich vermindert, während sie im $\text{Ag}_3\text{Au}_{1.1}\text{Te}_2$ durch die steigende Phononenstreuung bei zunehmender Temperatur sinkt. Dieses Verhalten beobachtet man am Verlauf des Übergangsfeldes B_{linear} als Funktion der Schichtdicke (bei den $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ -Schichten) bzw. der Temperatur (bei der $\text{Ag}_3\text{Au}_{1.1}\text{Te}_2$ -Probe).

Zusammenfassend lässt sich feststellen, dass die Voraussage des Modells von Parish und Littlewood [15, 16], nämlich die Abhängigkeit des Übergangsfeldes B_{linear} sowie des MR von der mittleren Beweglichkeit $\langle\mu\rangle$ gleich in zwei Materialien (sowohl 2D-System als auch 3D-System) bestätigt wurde. Damit lässt sich konstatieren, dass sich sowohl der LMR als auch der EMR durch geometrische klassische Theorien erklären lassen, was den Schluss zulässt, dass sie auf ähnlichen physikalischen Grundprinzipien basieren. Allerdings zeigt der EMR im Gegensatz zum LMR eine quadratische Feldabhängigkeit und sättigt bei hohen Feldstärken.

Obwohl der höchste MR-Effekt in makroskopischen EMR-Elementen auftritt, wurden nanostrukturierte mesoskopische EMR-Bauteile als alternative Magnetfeldsensoren zu den bisher etablierten GMR-Leseköpfen vorgeschlagen. Bisher ist noch unklar, ob nanostrukturierte LMR-Filme mit lateralen Abmessungen in der Größenordnung von nm wie erhofft funktionieren, da der lineare Effekt verschwinden könnte. In diesem Bereich sind daher weitere Arbeiten nötig, um den Zusammenbruch des MR-Verhaltens in niederdimensionalen Strukturen zu untersuchen und die möglichen nanoskopischen Sensorapplikationen auszuloten. In jedem Fall wird Silberselenid aufgrund seiner hohen Silberionendiffusion nur bei Niedertemperaturanwendungen das Material der Wahl darstellen. Im Hinblick auf Einsatzgebiete bei Raumtemperatur sind alternative LMR-Materialien mit kleiner Bandlücke, wie z.B. der Halbleiter LaSb_2 , der ebenfalls einen großen, nicht-sättigenden linearen MR-Effekt zeigt [198, 199], eine vielversprechende Alternative.

Abbildungsverzeichnis

Theoretische Grundlagen

2.1	Bändermodell	9
2.2	Beispiel eines Bandschemas bei einem Metall–Halbleiter–Kontakt	17
2.3	Kondo–Effekt am Beispiel von Kupfer	19
2.4	Freie Weglänge in dünnen Schichten	21
2.5	Langer–Neal–Diagramm zur Berechnung des Beitrags der schwachen Lokalisierung	24
2.6	Beitrag des Elektronenzustands \vec{k} zum Impuls als Funktion der Zeit	25
2.7	Möglicher Diffusionspfad eines Elektrons in einem ungeordneten System	28
2.8	Wahrscheinlichkeitsverteilung eines diffundierenden Elektrons	28
2.9	Magnetoresistiver Effekt von Magnesium mit Gold–Schicht	29
2.10	Driftbewegung von Elektronen mit und ohne Magnetfeld	36
2.11	Aufspaltung der s - und d -Bänder in einem Übergangsmetall durch die Austausch- kopplung	39
2.12	Magnetfeldabhängigkeit von ρ in einem ferromagnetischen Metall	40
2.13	Ersatzschaltbild magnetischer Vielschichtstrukturen zur Erklärung des GMR	42
2.14	Perowskitstruktur am Beispiel des LaMnO_3	43
2.15	Aufspaltung der Energiezustände eines Manganions	44
2.16	Doppelaustauschmechanismus	45
2.17	Perkolation in $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$	46
2.18	Bahnkrümmung im Magnetfeld beim Size–Effekt	47
2.19	Rückstreupunkt eines Elektrons mit und ohne magnetisches Feld	49
2.20	Magnetowiderstand $\Delta\rho_{e,xx}$ und Hallkonstante R_H gemäß der EMA, Modell I	61
2.21	Magnetowiderstand $\Delta\rho_{e,xx}$ und Hallkonstante R_H gemäß der EMA, Modell II	62
2.22	Magnetowiderstand $R(x, H)$ für drei Inhomogenitätsmodelle	63
2.23	Magnetowiderstand $R(H)$ bei charakteristischen Zusammensetzungen x für drei Inhomogenitätsmodelle	64
2.24	Grundlegendes Netzwerkelement des Modells von Parish und Littlewood	66
2.25	$N \times M$ -Netzwerkmodell von Parish und Littlewood	67
2.26	Beispiele kleiner Netzwerke	68
2.27	Magnetowiderstand $\Delta R/R$ für $N \times 1$ -Netzwerke mit geradem und ungeradem N	69

2.28 Magnetowiderstand $\Delta R/R$ für $N \times N$ -Netzwerke gleichartiger Widerstände . . . 71

2.29 Magnetowiderstand $\Delta R/R$ für $N \times N$ -Netzwerke beliebiger Widerstände 72

2.30 Visualisierung von Stromfluss und Spannung in einem 20×20 -Netzwerk 73

2.31 Modell des geometrischen magneto-resistiven Effekts von Solin 74

Experimentelle Grundlagen

3.1 Phasendiagramm von $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ 78

3.2 Magnetowiderstand von $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ für Temperaturen von 4.5 K bis 300 K 80

3.3 REM-Aufnahmen von Silberausscheidungen in $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ 81

3.4 HRTEM-Aufnahmen von Nanopartikeln und Silberlamellen in $(\text{Cu,Ag})_{2+\delta}\text{Se}$. . 82

3.5 Spezifischer Widerstand und $\lambda \cdot n^{2/3}$ in $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ -Proben 83

3.6 Magnetowiderstand in dünnen $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ -Proben 84

3.7 Foto des 17-Tesla-Kryo-Magnetsystems zur Untersuchung des MR-Verhaltens . 86

3.8 FEM-Modell des Magneten und berechnete Magnetfeldstärke 87

3.9 Querschnitt des 17-Tesla-Kryo-Magnetsystems zur Untersuchung des MR-Verhaltens 88

3.10 Probenhalterkopf 89

3.11 Einspannvorrichtungen für die Proben 89

3.12 4-Punkt-Methode zur Widerstandsmessung 90

3.13 Screenshot der Benutzeroberfläche des LabVIEW Messprogramms 91

3.14 Van-der-Pauw-Anordnung zur Messung des Flächenwiderstandes 92

3.15 Schematische Darstellung der PLD 94

3.16 REM-Bild einer 730 nm dicken $\text{Ag}_{2.4}\text{Se}$ -Schicht sowie Abhängigkeit der Korngröße von der Schichtdicke 95

3.17 Kontaktierung der Ag_3AuTe_2 -Bulk-Probe 95

3.18 HRTEM-Aufnahmen der Ag_3AuTe_2 -Probe 97

3.19 HRTEM-Aufnahmen der [100]- und [111]-Ebenen der Ag_3AuTe_2 -Probe 98

Messungen und Ergebnisse

4.1 Spezifischer Widerstand ρ als Funktion der Schichtdicke d bei 4.2 K 100

4.2 Leitfähigkeit und $\lambda \cdot n^{2/3}$ als Funktion der Silberkonzentration x 101

4.3 Ergebnisse der Hall-Messungen an den $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ -Schichten 102

4.4 Transversaler Magnetowiderstand der $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ -Schichten bei 4.2 K 104

4.5 Longitudinaler Magnetowiderstand der $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ -Schichten bei 4.2 K 105

4.6 Polarer Magnetowiderstand der $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ -Schichten bei 4.2 K 105

4.7 Magnetowiderstand als Funktion der Schichtdicke bei einer Feldstärke von 12 T . 106

4.8 Auf 14 T normierter transversaler Magnetowiderstand der $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ -Schichten bei 4.2 K 107

Abbildungsverzeichnis	149
4.9 Auf 12 T normierter longitudinaler Magnetowiderstand der $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ -Schichten bei 4.2 K	107
4.10 Auf 12 T normierter polarer Magnetowiderstand der $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ -Schichten bei 4.2 K	108
4.11 Schwache Lokalisierung und LMR der $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ -Schichten bei 4.2 K, transversale Messung	108
4.12 Schwache Lokalisierung und LMR der $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ -Schichten bei 4.2 K, longitudinale Messung	109
4.13 Schwache Lokalisierung und LMR der $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ -Schichten bei 4.2 K, polare Messung	110
4.14 Beispiele für den Fit des Magnetowiderstands-Verlaufs der $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ -Schichten	112
4.15 Phasendekohärenzlängen der $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ -Schichten	113
4.16 Verhältnis L_i/L_{SO} der $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ -Schichten	115
4.17 Phasendekohärenzlängen der $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ -Schichten als Funktion von n und ρ	118
4.18 Verhältnis L_i/L_{SO} der $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ -Proben als Funktion der Ladungsträgerdichte n	120
4.19 Simulationsmodell zum Einfluss von Silberpfaden in Ag_2Se	122
4.20 Silberanteil als Funktion des ausgeschiedenen Silbervolumens	123
4.21 Leitfähigkeit als Funktion der Silberkonzentration	124
4.22 Simulierte Stromdichte in $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ für unterschiedliche Ag-Schichtdicken	125
4.23 Leitfähigkeit als Funktion der Silberkonzentration	126
4.24 Modell für eine Clustergröße von 25 nm	127
4.25 Modell für kombinierte Clustergrößen von 25 nm und 50 nm	127
4.26 Leitfähigkeit von Ag_xSe als Funktion von x für $1.5 < x < 4$	128
4.27 Leitfähigkeit von Ag_xSe als Funktion von x für $1.5 < x < 20$	129
4.28 Leitfähigkeit von $\text{Ag}_{3.48}\text{Se}$ als Funktion der minimalen Clustergröße	130
4.29 Visualisierung der Strompfade in Ag_xSe	131
4.30 Leitfähigkeit von Ag_xSe als Funktion von x im 2D-Modell	131
4.31 Visualisierung der Strompfade in Ag_xSe über die zweite Ableitung des Magnetfeldes	133
4.32 Beispiele zur Auswertung des LMR	134
4.33 Beispiel zu möglichen Fehlern bei der Auswertung des LMR in dünnen Schichten	135
4.34 B_{linear} in Abhängigkeit von der Schichtdicke	136
4.35 Magnetowiderstand und Übergangsfeld B_{linear} als Funktion der Beweglichkeit ..	137
4.36 Magnetowiderstand als Funktion des reziproken Übergangsfelds $1/B_{\text{linear}}$	138
4.37 MR-Verhalten einiger ausgewählter Proben bei 4.2 K und 290 K	139
4.38 Magnetowiderstandsverhalten in Ag_3AuTe_2	140
4.39 B_{linear} und MR als Funktion der Temperatur sowie MR als Funktion von $1/B_{\text{linear}}$	140
4.40 Widerstand und Ladungsträgerbeweglichkeit μ der $\text{Ag}_3\text{Au}_{1.1}\text{Te}_2$ -Probe als Funktion der Temperatur	141
4.41 B_{linear} und MR als Funktion der Temperatur sowie MR als Funktion von $1/B_{\text{linear}}$	142

Tabellenverzeichnis

Theoretische Grundlagen

2.1 Modelle zur Erklärung des LMR	76
---	----

Experimentelle Grundlagen

3.1 Elektronische Eigenschaften von $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$	80
3.2 Elektronische Eigenschaften von Silber	85
3.3 Zusammensetzung der Ag_xSe -Schichten	96

Messungen und Ergebnisse

4.1 Phasendekohärenzlängen in $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$	114
---	-----

Literaturverzeichnis

- [1] P. Grünberg, R. Schreiber, Y. Pang, M. B. Brodsky, H. Sowers: Phys. Rev. Lett. **57** (1986) 2442
- [2] R. Xu, A. Hussmann, T. F. Rosenbaum, M. - L. Saboungi, J. E. Enderbya, P. B. Littlewood: Nature **390** (1997) 57
- [3] A. Husmann, J. B. Betts, G. S. Boebinger, A. Migliori, T. F. Rosenbaum, M.-L. Saboungi: Nature **417** (2002) 421
- [4] M. Lee, T. F. Rosenbaum, M.-L. Saboungi, H. S. Schnyders: Phys. Rev. Lett. **88** (2002) 066602
- [5] H. S. Schnyders, M.-L. Saboungi, T. F. Rosenbaum: Appl. Phys. Lett **76** (2000) 1710
- [6] S. S. Manoharan, S. J. Prasanna, D. E. Kiwitz, C. M. Schneider: Phys. Rev. B **63**, (2001) 212405
- [7] Z. Ogorelec, A. Hamzic, M. Basletic: Europhys. Lett. **46** (1999) 56
- [8] G. Beck: **Magnetowiderstands-Effekt im System Silberselenid-Silber**, Dissertationsschrift am Physikalisch-Chemischen Institut der JLU Gießen (2002)
- [9] F. Gruhl: **Magnetowiderstandseffekte in Silberselenid-Schichten**, Dissertationsschrift am Institut für Angewandte Physik der JLU Gießen (2004)
- [10] A. A. Abrikosov: Phys. Rev. B **58**, (1998) 2788
- [11] V. Guttal, D. Stroud: Phys. Rev. B **73**, (2006) 085202
- [12] S. A. Bulgadaev, F. V. Kusmartsev: Physics Letters A **337**, (2005) 449
- [13] S. A. Bulgadaev, F. V. Kusmartsev: Physics Letters A **342**, (2005) 188
- [14] R. Magier, D. J. Bergman: Phys. Rev. B **74**, (2006) 094423
- [15] M. M. Parish, P. B. Littlewood: Nature **426**, (2003) 162
- [16] M. M. Parish, P. B. Littlewood: Phys. Rev. B **72**, (2005) 094417
- [17] S. A. Solin, Tineke Thio, D. R. Hines, J. J. Heremans: Science **289** (2000) 1530
- [18] S. A. Solin, D. R. Hines, A. C. H. Rowe, J. S. Tsai, Yu. A. Pashkin, S. J. Chung, N. Goel, M. B. Santos: Appl. Phys. Lett. **80** (2002) 4012
- [19] J. J. Lin, J. P. Bird: J. Phys.: Cond. Matt. **14** (2002) R501
- [20] G. Bergmann: Phys. Rep. **107** (1984) 1-58

- [21] Y.-A. Soh, G. Aeppli: *Nature* **417** (2002), 392
- [22] M. v. Kreutzbruck, B. Mogwitz, F. Gruhl, L. Kienle, C. Korte, J. Janek: *Appl. Phys. Lett.* **86** (2005) 072102
- [23] D. Stauffer, A. Aharony: **Perkolationstheorie: Eine Einführung**, 1. Auflage, Weinheim Verlag, 1995
- [24] S. Kirkpatrick: *Rev. Mod. Phys.* **45** (1973) 574
- [25] C. Kittel: **Einführung in die Festkörperphysik**, 14. Auflage, Oldenburg Verlag München Wien, 1999
- [26] R. F. Gross, A. Marx: **Grundlagen der Magnetoelektronik**, Vorlesungsskript des Walther-Meißner-Instituts, Garching (2000/2001)
- [27] http://de.wikipedia.org/wiki/Bild:Baenderdiagramm_metal-n-type.png
- [28] J. Kondo: *Progress in Theoretical Physics* **32**, (1964) 37
- [29] W. B. Pearson: *Phil. Mag.* **46**, (1955) 911 und 920
- [30] E. Grüneisen: *Annalen der Physik* **16**, (1933) 530
- [31] J. J. Thomson: *Proc. Camb. Phil. Soc.* **11**, (1901)120
- [32] K. Fuchs: *Proc. Camb. Phil. Soc.* **34**, (1938) 100
- [33] E. H. Sondheimer: *Adv. Phys.* **1**, (1952) 1
- [34] L. Nordheim: *Acta Sci. Et Ind.* N0 131, Hermann, Paris (1934) Nordheim Formel
- [35] R. B. Dingle: *Proc. Roy. Soc. A* **201**, (1950) 545
- [36] A. Berman and H. J. Juretschke: *Appl. Phys. Lett.* **18(10)**, (1971) 415
- [37] K. L. Chopra, R. Suri, A. P. Thakoor: *J. Appl. Phys.* **48 (2)**, (1977) 538
- [38] K. L. Chopra: *Phys. Rev.* **155 (3)**, (1967) 661
- [39] R. Suri, A.P. Thakoor, and K. L. Chopra: *J. Appl. Phys.* **46 (6)**, (1975) 2574
- [40] G. Bergmann: *Phys. Rev. B* **28** (1983) 2914
- [41] E. Abrahams, P. W. Anderson, D. C. Licciardello, T. V. Ramakrishnan: *Phys. Rev. Lett.* **42** (1979) 673
- [42] P. W. Anderson, E. Abrahams, T. V. Ramakrishnan: *Phys. Rev. Lett.* **43** (1979) 718
- [43] R. Oppermann, K. Jüngling: *Phys. Lett. A* **76** (1980) 449
- [44] B. L. Altshuler, D. Khmel'nitzkii, A. I. Larkin, P. A. Lee: *Phys. Rev. B* **22** (1980) 5142
- [45] D. J. Thouless: *Phys. Rev. Lett.* **39** (1977) 1167
- [46] B. L. Altshuler, A. G. Aronov: *Sol. State Com.* **38** (1981) 11
- [47] B. L. Altshuler, A. G. Aronov: *Sol. State Com.* **39** (1981) 619
- [48] J. S. Langer, T. Neal: *Phys. Rev. Lett* **16** (1966) 984

- [49] G. J. Dolan, D. D. Osheroff: Phys. Rev. Lett. **43** (1979) 721
- [50] L. Van den dries, C. Van Haesendonck, Y. Bruynseraede, G. Deutscher: Phys. Rev. Lett. **46** (1981) 565
- [51] B. L. Altshuler, A. G. Aronov, P. A. Lee: Phys. Rev. Lett. **44** (1980) 1288
- [52] G. Bergmann: Sol. State Comm. **42** (1982) 815
- [53] S. Hikami, A. I. Larkin, Y. Nagaoka: Prog. Theor. Phys. **63** (1980) 707
- [54] R. Oppermann, K. Jüngling: Phys. Lett. **76A** (1980) 449
- [55] G. Bergmann: Phys. Rev. Lett. **48** (1982) 1046
- [56] H. Rauch, A. Zeilinger, G. Badurek, A. Wilfing, W. Bauspiess, U. Bonse: Phys. Lett. **54A** (1975) 425
- [57] K. F. Berggren: J. Phys. C: Solid State Phys. **15** (1982) L843
- [58] Z. Ovadyahu, S. Moehlecke, Y. Imry: Surf. Sci. **113** (1982) 544
- [59] Yu. F. Komnik, V. Yu. Kashirin, B. I. Belevtsev, E. Yu. Beliaev: Phys. Rev. B **50** (1994) 15298
- [60] G. Bergmann, Wei Wei, Yao Zou, R. M. Mueller: Phys. Rev. B **41** (1990) 7386
- [61] J. Liu, N. Giordano: Phys. Rev. B **43** (1991) 3928
- [62] P. A. Lee, T. V. Ramakrishnan: Rev. Mod. Phys. **57** (1985) 287
- [63] P. Santhanam, S. Wind, D. E. Prober: Phys. Rev. B **35** (1987) 3188
- [64] J. Rammer, A. Schmid: Phys. Rev. B **34** (1986) 1352
- [65] D. Belitz, K. I. Wysokinski: Phys. Rev. B **36** (1987) 9333
- [66] H. Fukuyama, E. Abrahams: Phys. Rev. B **27** (1983) 5976
- [67] E. Abrahams, P. W. Anderson, P. A. Lee, T. V. Ramakrishnan: Phys. Rev. B **24** (1981) 6783
- [68] B. L. Altshuler, A. G. Aronov, D. E. Khmel'nitzky: J. Phys. C: Sol. State Phys. **15** (1982) 7367
- [69] D. Natelson, R. L. Willett, K. W. West, L. N. Pfeiffer: Phys. Rev. Lett. **86** (2001) 1821
- [70] J. J. Lin, N. Giordano: Phys. Rev. B **35** (1987) 1071
- [71] P. Mohanty, R. A. Webb: Phys. Rev. B **55** (1997) R13452
- [72] A. B. Gougam, F. Pierre, H. Pothier, D. Esteve, N. O. Birge: J. Low Temp. Phys. **118** (2000) 447
- [73] M. E. Gershenson: Ann. Phys., Berlin **8** (1999) 559
- [74] S. Geier, G. Bergmann: Phys. Rev. Lett. **68** (1992) 2520
- [75] N. Papanikolaou, N. Stefanou, P. H. Dederichs, S. Geier, G. Bergmann: Phys. Rev. Lett. **69** (1992) 2110

- [76] G. Bergmann: Phys. Rev. B **3**, (1971) 3797
- [77] C. Wu, W. Jian, J. Lin: Phys. Rev. B **57**, 11232 (1998)
- [78] D. Bohm, T. Staver: Phys. Rev. **84**, 836 (1951)
- [79] A. Abrikosov, L. P. Gor'kov: Zh. Eksp. Teor. Fiz. **42**, 1088 (1962) [Sov. Phys. - JETP **15**, 752 (1962)]
- [80] siehe z.B. J. M. Ziman: **Electrons and Phonons**, Calderon Press (1963) 49
- [81] E. Fawcett: Advances in Physics **13** (1964) 139
- [82] J. M. Harris, Y. F. Yan, P. Matl, N. P. Ong, P. W. Anderson, T. Kimura, K. Kitazawa: Phys. Rev. Lett **75** (1995) 1391
- [83] N. F. Mott: Advances in Physics **13** (1964) 325
- [84] H. Ebert, A. Vernes, J. Banhart: Phys. Rev. B **54** (1996) 8479
- [85] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Eitenne, G. Creuzet, A. Friederich, J. Chazelas: Phys. Rev. Lett. **61** (1988) 2472
- [86] A. E. Berkowitz, J. R. Mitchell, M. J. Carey, A. P. Young, S. Zhang, F. E. Spada, F. T. Parker, A. Hutten, G. Thomas: Phys. Rev. Lett. **68** (1992) 3745
- [87] J. H. van Santen, G. H. Jonker: Physica XVI (1950) 599
- [88] R. M. Kusters, J. Singleton, D. A. Keen, R. McGreevy, W. Hayes: Physica B **155** (1989) 362
- [89] R. von Helmolt, J. Wecker, B. Holzapfel, L. Schultz, K. Samwer: Phys. Rev. Lett. **71** (1999) 2331
- [90] M. von Kreutzbruck, G. Lembke, C. Korte, B. Franz: Applied Physics A **88** (2007) 201
- [91] C. Zener: Phys. Rev. **82** (1951) 403
- [92] H. Y. Hwang, S.-W. Cheong, N. P. Ong, B. Batlogg: Phys. Rev. Lett. **77**, 2041 (1996)
- [93] R. Mahendiran, S. K. Tiwary, A. K. Raychaudhuri, T. V. Ramakrishnan, R. Mahesh, N. Rangavittal, C. Rao: Phys. Rev. B **53**, 3348 (1996)
- [94] P. Raychaudhuri, K. Sheshadri, P. Taneja, S Bandyopadhyay, P. Ayyub, A. K. Nigam, R. Pinto: Phys. Rev. B **59**, 13919 (1999)
- [95] M. Fäth, S. Freisem, A. A. Menovsky, Y. Tomioka, J. Aarts, J. A. Mydosh: Science **285**, 1540 (1999)
- [96] P. Grosse **Freie Elektronen in Festkörpern**, Springer-Verlang (1979)
- [97] C. Renner, G. Aeppli, B.-G. Kim, Y.-A. Soh, S.-W. Cheong: Nature **416**, 518 (2002)
- [98] J. Burgy, M. Mayr, V. Martin-Mayor, A. Moreo, E. Dagotto: Phys. Rev. Lett. **87**, 277202 (2001)
- [99] Y. Guo, X. Zhang, R. Wäppling: J. Alloys Compd. **306** (2000) 133
- [100] P. W. Anderson: Phys. Rev. **100** (1955) 675

- [101] P.-G. deGennes: Phys. Rev. **118** (1960) 141
- [102] J. I. Gittleman, Y. Goldstein S. Bozowski, Phys. Rev. B **5**, 3609 (1972)
- [103] J. S. Helman and B. Abeles, Phys. Rev. Lett. **37**, 1429 (1976)
- [104] S. Yunoki, J. Hu, A. L. Malvezzi, A. Moreo, N. Furukawa, E. Dagotto: Phys. Rev. Lett. **80** (1998) 845
- [105] M. Uehara, S. Mori, C. H. Chen, S.-W. Cheong: Nature **399** (1999) 560
- [106] T. Becker, C. Streng, Y. Luo, V. Moshnyaga, B. Damaschke, N. Shannon, K. Samwer: Phys. Rev. Lett. **89**, 237203 (2002)
- [107] M. Mayr, A. Moreo, J. A. Vergés, J. Arispe, A. Feiguin, E. Dagotto: Phys. Rev. Lett. **86**, 135 (2001)
- [108] A. Moreo, M. Mayr, A. Feiguin, S. Yunoki, E. Dagotto: Phys. Rev. Lett. **84**, 5568 (2000)
- [109] H. Fukuyama, K. Hoshino: J. Phys. Soc. Japan **50** (1981) 2131
- [110] A. I. Larkin: JETP Lett. **31** (1980) 219
- [111] B. L. Altshuler, A. G. Aronov, A. I. Larkin, D. E. Khmel'nitskii: Sov. Phys. - JETP **54** (1981) 411
- [112] A. Kawabata: Sol. State Comm. **34** (1980) 431
- [113] D. V. Baxter, R. Richter, M. L. Trudeau, R. W. Cochrane, J. O. Strom-Olsen: J. Physique **50** (1989) 1673
- [114] J. M. Lopes dos Santos, E. Abrahams: Phys. Rev. B **31** (1985) 172
- [115] S. Hikami, A. Larkin, Y. Nagaoka: Prog. Theor. Phys. **63** (1980) 707
- [116] R. Rosenbaum: Phys. Rev. B **32** (1985) 2190
- [117] M. Abramowitz, I. A. Stegun: **Handbook of Mathematical Functions with Formulae Graphs and Mathematical Tables**, Department of Commerce and National Bureau of Standards Applied Mathematic Series No. 55 (U.S. GPO, Washington, D.C.) 1964
- [118] B. L. Alt'shuler, A. G. Aronov: JETP Lett. **33** (1981) 499
- [119] R. S. Markiewicz, J. C. Rollins: Phys. Rev. B **29** (1985) 735
- [120] P. L. Kapitza: Proc. Roy. Soc. London Ser. A **119** (1928) 358
- [121] P. L. Kapitza: Proc. Roy. Soc. London Ser. A **123** (1929) 292
- [122] I. M. Lifshitz, V. G. Peschansky: Sov. Phys. JETP **8** (1959) 875
- [123] A. A. Abrikosov: Sov. Phys. JETP **29** (1969) 476
- [124] A. A. Abrikosov: Phys. Rev. B **60/6** (1999) 4231
- [125] D. A. G. Bruggemann: Ann. Phys. (Leipzig) **24** (1935) 636
- [126] R. Landauer: J. Appl. Phys. **23** (1952) 779
- [127] C. Herring: J. Appl. Phys. **31** (1960) 1939

- [128] M. H. Cohen, J. Jortner: Phys. Rev. Lett. **30** (1973) 696
- [129] H. Stachowiak: Physica **45** (1970) 481
- [130] D. J. Bergmann: Phys. Rev. B **39** (1989) 4598
- [131] L. Sali1, D. J. Bergman: J. Stat. Phys. **86** (1997) 455
- [132] D. Stroud: Phys. Rev. B **12** (1975) 3368
- [133] D. Stroud, F. P. Pan: Phys. Rev. B **13** (1976) 1434
- [134] D. J. Bergman, Y. M. Strelniker: Phys. Rev. B **60** (1999) 13016
- [135] L. Gao, Z. Li: J. Phys. Cond. Matt. **15** (2003) 4397
- [136] D. Stroud: Superlattices and Microstructures **23** (1998) 567
- [137] V. Guttal, D. Stroud: Phys. Rev. B **71**, (2005) 201304(R)
- [138] P. Soven: Phys. Rev. **156** (1967) 809
- [139] B. Velick, S. Kirkpatrick, H. Ehrenreich: Phys. Rev. **175** (1968) 747
- [140] J. Korringa: J. Phys. Chem. Solids **7** (1958) 252
- [141] J. B. Sampsel, J. C. Garland: Phys. Rev. B **13** (1976) 583
- [142] D. Stroud, F. P. Pan: Phys. Rev. B **20** (1979) 455
- [143] A. K. Sarychev, D. J. Bergman, Y. M. Strelniker: Phys. Rev. B **48** (1993) 3145
- [144] D. J. Bergman, D. G. Stroud: Phys. Rev. B **62** (2000) 6603
- [145] Y. M. Strelniker, D. J. Bergman: Phys. Rev. B **67** (2003) 184416
- [146] J. M. Ziman: **Electrons and Phonons**, (Clarendon, Oxford, England) 1962, Kap. XII
- [147] T. Zhou, D. R. Hines, S. A. Solin: Appl. Phys. Lett. **78** (2001) 667
- [148] W. R. Branford, A. Husmann, S. A. Solin, S. K. Clowes, T. Zhang, Y. V. Bugoslavsky, L. F. Cohen: Appl. Phys. Lett. **86** (2005) 202116-1
- [149] G. Beck, C. Korte, J. Janek, F. Gruhl, M. Kreutzbruck: J. Appl. Phys. **96** (10), (2004) 5619
- [150] J. Hu, T. F. Rosenbaum, J. B. Betts: Phys. Rev. Lett. **95**, 186603 (2005)
- [151] G. Beck, J. Janek: Solid State Ionics **170** (2004) 129
- [152] T. B. Massalski: **Binary Alloy Phase Diagrams**. ASM International, second edition (1990)
- [153] I. Karakaya, W. T. Thompson: Bull. Alloy Phase Diagrams **11/3** (1990) 266
- [154] J. R. Gnter, P. Keusch: Ultramicroscopy **49** (1993) 293
- [155] V. Damodara Das, D. Karunakaran: J. Appl. Phys. **67** (1990) 878
- [156] V. Damodara Das, D. Karunakaran: Phys. Rev. B **39** (1989) 10872

- [157] P. Junod: *Helv. Phys. Acta* **32** (1959) 567
- [158] S. A. Aliev, F. F. Aliev: *Neorgan. Mater.* **21** (1985) 1869
- [159] V. V. Gorbach, I. M. Putilin: *Phys. Status Solidi B* **69** (1975) K153
- [160] Y. Tsuchiya: *J. Non-Crystalline Solids* **205-207** (1996) 94
- [161] A. A. Aivazov, A. S. Okhotin, A. F. Gutsev: *Fizika* **4** (1971) 128
- [162] S. Imai, T. Ohachi, I. Taniguchi: *Sol. State Ionics* **35** (1989) 343
- [163] K. L. Chopra: **Thin Film Phenomena** McGraw-Hill, New York (1969)
- [164] G. Dumpich, B. Leven, M. Brands: *Phys. Stat. Sol. (a)* **201** (2004) 3237
- [165] C. Cavalloni, W. Joss: *Phys. Rev. B* **35** (1987) 7338
- [166] M. Henzler, T. Lüer, J. Heitmann: *Phys. Rev. B* **59** (1999) 2383
- [167] R. Schad, S. Heun, T. Heidenblut, M. Henzler: *Phys. Rev. B* **45** (1992) 11430
- [168] G. Bergmann, C. Horriar-Esser: *Phys. Rev. B* **31** (1985) 1161
- [169] J. R. Petta, D. C. Ralph: *Phys. Rev. Lett.* **87** (2001) 266801-1
- [170] A. Sahnoune, J. O. Ström-Olsen, H. E. Fischer: *Phys. Rev. B* **46** (1992) 10035
- [171] N. Giordano, M. A. Pennington: *Phys. Rev. B* **47** (1993) 9693
- [172] D. P. Young, C. L. Brown, P. Khalifah, R. J. Cava: *J. Appl. Phys.* **88** (2000) 5221
- [173] L. J. van der Pauw: *Philips Tech. Rew.* **20** (1958/59) 220
- [174] M. von Kreutzbruck, B. Mogwitz, K. Allweins, F. Gruhl, L. Kienle, C. Korte, J. Janek: **Percolation Phenomena in Polycrystalline Ag_xSe Films with High Silver Excess**, Bunsen-Tagung (2005)
- [175] D. B. Williams, C. B. Carter: **Transmission Electron Microscopy: A Textbook in Material Science** New York, Plenum Press (1996)
- [176] O. Scherzer: *J. Appl. Phys.* **20** (1949) 20
- [177] H. R. Schwarz, *Methode der Finiten Elemente*, 3. Auflage, Teubner Verlag, 1991
- [178] S. C. Brenner, L.R. Scott, *The Mathematical Theory of Finite Element Methods*, Springer Verlag, 2002
- [179] K. Knothe, H. Wessels, *Finite Elemente*, 3. Auflage, Springer Verlag, 2002
- [180] A. Kost, *Numerische Methoden in der Berechnung elektromagnetischer Felder*, Springer Verlag, 1994
- [181] P. Knabner, L. Angermann, *Numerik partieller Differentialgleichungen*, Springer Verlag, 2000
- [182] K. Allweins: **Echtzeitfähiges Prüfverfahren zur Schweißnahtkontrolle an Aluminium-Bauteilen mittels magnetoresistiver Sensoren**, Dissertationsschrift am Institut für Angewandte Physik der JLU Gießen (2005)

- [183] T. Ohachi, M. Hiramoto, Y. Yoshihara, I. Taniguchi: *Sol. State Ionics* **51** (1992) 191
- [184] A. Bunde, S. Havlin, eds.: *Fractals and Disorderd Systems* (Springer Berlin, NewYork, 1991) p.62
- [185] J. Schmelzer, S.A. Brown, A. Wurl, M. Hyslop and R. J. Blaikie: *Phys. Rev. Lett.* **88** (**22**) (2002) 226802-1
- [186] R. M. Ziff and B. Sapoval, *J.Phys. A: Math. Gen.* **19** (1986) 1169
- [187] R. M. Ziff, *Phys. Rev. Lett.* **69** (**18**) (1992) 2670
- [188] B. Mogwitz, C. Korte, J. Janek, M. v. Kreutzbruck, L. Kienle: *J. Appl. Phys.* **101** (2007) 043510
- [189] G. Dumpich, A. Carl: *Phys. Rev. B* **43** (1991) 12074
- [190] S. Friedrichowski, A. Carl, G. Dumpich: *Europhys. Lett.* **32** (**3**) (1995) 247
- [191] G. Dumpich, S. Friedrichowski, P. Mikitisin: *Thin sol. Films* **281-282** (1996) 368
- [192] J. B. Caceres, R. Rincon: *Phys. Stat. Sol. (b)* **234** (2002) 541
- [193] Y. L. Zhong, J. J. Lin: *Phys. Rev. Lett.* **80** (1998) 588
- [194] A. Sergeev, V. Mittin: *Phys. Rev. B* **61**, (2000) 6041
- [195] M. v. Kreutzbruck, G. Lembke, B. Mogwitz, C. Korte, J. Janek: submitted to *Phys. Rev. Lett.* (2007)
- [196] I. S. Chupakrov, K. H. Dahmen: *Appl. Phys. Lett.* **72** (1998) 2165
- [197] B. Q. Liang, X. Chen, Y. Wang, Y. J. Tang: *Phys. Rev. B* **61** (2000) 3239
- [198] D. P. Young, R. G. Goodrich, J. F. DiTusa, S. Guo, P. W. Adams, J. Y. Chan, D. Hall: *Appl. Phys. Lett.* **82** (2003) 3713
- [199] R. G. Goodrich, D. Browne, R. Kurtz, D. P. Young, J. F. DiTusa, P. W. Adams, D. Hall: *Phys. Rev. B* **69** (2004) 125114

Danksagung

Die vorliegende Arbeit wurde am Institut für Angewandte Physik der Justus-Liebig-Universität Gießen angefertigt. Ich bedanke mich bei allen, die zum erfolgreichen Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Mein besonderer Dank gilt

- *PD M. v. Kreuzbruck* für die interessante Thematik, die Betreuung der Arbeit sowie zahlreiche Diskussionen und Hilfestellungen. Seine wegweisenden Ratschläge hatten stets den notwendigen Weitblick, mich sowohl in meiner Arbeit als auch in der Doppelbelastung von Studium und Familie in allen Lebenslagen zu unterstützen. Ich habe davon sehr viel lernen können.
- *Prof. Dr. C.D. Kohl* für die Übernahme des Zweitgutachtens, für sein Interesse am Fortgang der Untersuchungen sowie die Bereitstellung der dafür notwendigen Mittel.
- *Prof. Dr. J. Janek* stellvertretend für das Physikalisch-Chemische Institut der Justus-Liebig-Universität Gießen für hilfreiche Diskussionen und Unterstützung; darüber hinaus speziell *Dr. C. Korte*, *B. Mogwitz* und *B. Franz* für die Herstellung der $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Se}$ Proben, die Charakterisierung durch elektronenoptische Methoden und insbesondere die Chance, das untersuchte Material aus der Sicht eines Chemikers kennenzulernen.
- *Prof. Dr. G. Thummes* für seine Unterstützung und stellvertretend für seine Arbeitsgruppe für die freundliche Arbeitsatmosphäre.
- *PD M. Mück* für seine stets geduldige und freundliche Hilfestellung im Rahmen diverser unerwarteter Probleme mit der Messapparatur.
- *Dr. L. Kienle* stellvertretend für das Max-Planck-Institut Stuttgart für die Herstellung der $\text{Ag}_3\text{Au}_{1.1}\text{Te}_2$ -Probe und deren Charakterisierung sowie hilfreiche Gespräche und Unterstützung.
- *Prof. Dr. B. K. Meyer* stellvertretend für das I. Physikalische Institut für die Bereitstellung der Hall-Messapparatur.
- *Dr. K. Allweins* und *Dr. F. Gruhl* für die angenehme Zusammenarbeit sowie die hilfreichen Gespräche.
- *Dr. C. Mucha* und allen anderen Mitgliedern des Instituts für die angenehme Arbeitsatmosphäre.
- *M. Wagner* und *N. Katzer* stellvertretend für die unbürokratische Arbeit der feinmechanischen Werkstatt und den ständigen Nachschub an Helium auch unter schwierigen Bedingungen.
- *D. Kirschbaum*, *A. Gabriel* sowie *B. Reichhardt* für ihre Unterstützung.
- *N. Seehagen* stellvertretend für die Elektronik-Werkstatt.

Abschließend gilt mein ganz besonderer Dank *meiner Familie* für die finanzielle und moralische Unterstützung während meines Studiums und der Promotion, ohne die diese Arbeit nicht hätte fertiggestellt werden können.

Ich versichere, dass ich – Gertrud Lembke – die vorliegende Arbeit selbständig verfasst und keine anderen als die angegebenen Hilfsmittel verwendet habe.