



SrRuO₃超薄膜制备条件和拓扑霍尔效应的关联

张静娴 保明睿 叶飞 刘佳 成龙 翟晓芳

Correlation of preparation conditions of SrRuO₃ ultrathin films with topological Hall effect

Zhang Jing-Xian Bao Ming-Rui Ye Fei Liu Jia Cheng Long Zhai Xiao-Fang

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 72, 096802 (2023) DOI: 10.7498/aps.72.20221854

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.72.20221854>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

铁磁/非磁金属异质结中的拓扑霍尔效应

Topological Hall effect in ferromagnetic/non-ferromagnetic metals heterojunctions

物理学报. 2018, 67(13): 131202 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180369>

拓扑半金属ZrSiSe器件中面内霍尔效应的观测

Observation of planar Hall effect in topological semimetal ZrSiSe device

物理学报. 2019, 68(22): 227203 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20191501>

掺铌SrTiO₃中的逆自旋霍尔效应

Inverse spin Hall effect in Nb doped SrTiO₃

物理学报. 2019, 68(10): 106101 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190118>

单层二硫化钼的制备及在器件应用方面的研究

Controllable growth of monolayer MoS₂ films and their applications in devices

物理学报. 2022, 71(10): 108102 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20212447>

高超声速磁流体力学控制霍尔效应影响

Influence of Hall effect on hypersonic magnetohydrodynamic control

物理学报. 2020, 69(21): 214703 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200630>

超高真空条件下分子束外延生长的单层二维原子晶体材料的研究进展

Research progress of monolayer two-dimensional atomic crystal materials grown by molecular beam epitaxy in ultra-high vacuum conditions

物理学报. 2020, 69(11): 118101 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200174>

专题: 功能氧化物薄膜新奇物理性质

SrRuO₃ 超薄膜制备条件和拓扑霍尔效应的关联*

张静娴¹⁾²⁾ 保明睿²⁾ 叶飞²⁾ 刘佳²⁾ 成龙^{2)†} 翟晓芳^{2)‡}

1) (中国科学技术大学合肥微尺度物质科学国家研究中心, 材料物理与化学系, 合肥 230026)

2) (上海科技大学物质学院, 上海 201210)

(2022年9月22日收到; 2022年10月12日收到修改稿)

使用激光分子束外延在 SrTiO₃(001) 衬底上生长 SrRuO₃ 薄膜, 并研究激光能量密度、生长温度和靶材表面烧蚀度等生长参数对于 SrRuO₃ 表面形貌、基本磁电性质以及拓扑霍尔效应的影响. 当在最优条件下生长 SrRuO₃ 薄膜时, 样品表面平整、台阶清晰, 具有最低的金属-绝缘体转变温度, 电阻率最低, 且具有最显著的拓扑霍尔效应; 而改变生长参数生长的 SrRuO₃ 薄膜由于存在更多的缺陷, 其表面较粗糙, 金属-绝缘体转变温度增大, 或表现出绝缘体行为, 而拓扑霍尔效应会变弱甚至消失.

关键词: SrRuO₃, 激光分子束外延, 生长控制, 拓扑霍尔效应**PACS:** 68.55.-a, 73.61.-r, 74.70.Pq, 81.15.-z**DOI:** 10.7498/aps.72.20221854

1 引言

SrRuO₃ (SRO) 薄膜作为磁性过渡金属氧化物中的一员, 近些年来受到大家的深切关注. 首先, 它具有独特的巡游铁磁性, 铁磁转变温度 (T_c) 约为 160 K^[1]. 其次, 它具有不同寻常的电输运性质——低温时表现为费米液体, 高温时表现出坏金属行为^[2,3]. 这些有趣的物理现象及相转变行为是凝聚态物理领域长期探索的基础科学问题. 而其良好的金属导电性、化学和热稳定性, 特别是和其他钙钛矿氧化物的晶格匹配, 使得 SRO 通常被用作底部电极或缓冲层^[4,5].

以前的研究发现表面形貌^[6]、生长温度^[7]、氧压^[8,9]甚至厚度都会影响 SRO 薄膜的性质. 如当 SRO 薄膜厚度只有几个单胞厚时, 样品中的缺陷效应会越来越显著^[10], 因此随着厚度的降低, SRO 表现出金属-绝缘体转变, 当样品厚度低于 4 个单

胞时, 超薄膜表现出绝缘体行为^[11,12]. 所以超薄层 SRO 的生长条件更加苛刻, 优化生长条件后, 厚度在 2 层以上的超薄膜依然有很好的金属性^[13,14]. 虽然高质量 SRO 超薄膜的生长控制非常困难, 但近年来在 SRO 超薄膜及其异质结中发现的拓扑霍尔效应 (topological Hall effect, THE), 再次引发了领域内对其超薄膜的研究兴趣^[15-18].

然而, SRO 中 THE 的起源依然存在着很大的争议, 一种观点认为 THE 来源于样品中的手性自旋结构, 当样品中存在非共面手性自旋结构时, 电子通过这种手性自旋结构时, 受到实空间贝利相位产生的有效磁场的作用, 从而对霍尔电阻产生额外的贡献, 即拓扑霍尔效应^[19]. 有报道认为在 SRO 薄膜及异质结中, 由于发生反演对称性破缺, 界面处存在 Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用 (DM 相互作用) 诱导产生手性自旋结构, 于是产生了 THE^[15]. 另一方面, 由于超薄膜的许多缺陷, 如氧空位、薄膜与衬底的界面晶格失配等, 研究人员认为样品中

* 国家自然科学基金 (批准号: 52072244, 12104305)、上海市科委 (批准号: 21JC1405000) 和上海科技大学启动经费资助的课题.

† 通信作者. E-mail: chenglong1@shanghaitech.edu.cn‡ 通信作者. E-mail: zhaixf@shanghaitech.edu.cn

由于缺陷或样品厚度的不均匀性导致存在多相磁性, 而反常霍尔效应 (anomalous Hall effect, AHE) 线性依赖于磁性^[20], 故样品中存在多通道 AHE, 也可以引起霍尔数据中的驼峰结构, 与 THE 表现一致^[21,22]. 因此目前还无法确定 SRO 体系中 THE 产生的原因.

因此本文通过调节激光能量密度、生长温度 (即衬底温度) 和靶材表面烧蚀度等生长参数优化 SRO 薄膜的生长条件, 同时也探究 Ru 缺陷对于 SRO 中 THE 的影响, 以期能得出 SRO 中 THE 的来源. 通过对比实验结果, 阐明 THE 主要来自于界面 DM 相互作用, 而非样品中的缺陷引起的多通道 AHE.

2 实验部分

2.1 薄膜制备及表征方法

通过氢氟酸缓冲溶液 (buffered hydrofluoride acid, BHF) 腐蚀和 960 °C 氧氛围下退火 1 h, 获得了具有原子级平坦 TiO₂ 截止面的 SrTiO₃ (STO) (001) 单晶衬底. 通过使用 KrF 准分子激光 ($\lambda = 248$ nm, 固定频率 2Hz) 溅射化学计量比准确的 SRO 靶材, 并借助反射式高能电子衍射 (reflection high energy electron diffraction, RHEED) 监测薄膜的逐层生长, 获得了一系列 SRO 超薄膜. 生长过程中, 通过红外激光加热衬底. 沉积结束后, 样品在与生长期间相同的氧压下, 以大约 25 °C·min⁻¹ 的速度冷却至室温.

2.2 表面形貌、结构及电学性质表征方法

样品的结晶性通过 Rigaku TTR III X 射线衍射仪 (X ray diffraction, XRD) 进行表征, X 光来自 Cu-K α 线, 2θ 测量范围为 20°—50°. 使用综合物性测量系统 (physical property measurement system, PPMS) 和四探针法, 在 2—300 K 温度范围内对样品进行电输运和霍尔效应测量. 利用 Bruker Dimension Multimode 原子力显微镜 (atomic force microscope, AFM) 测试样品的表面形貌. 使用 SIRION200 扫描电子显微镜 (scanning electron microscope, SEM) 测试靶材表面微区形貌, 并选定局部区域进行 X 射线能量色散谱仪 (energy dispersive spectroscopy, EDS) 元素分布分析.

3 结果与讨论

为了探究不同生长参数 (激光能量密度、生长温度、靶材烧蚀度) 对于生长 SRO 超薄膜的影响, 采用单一变量法进行生长优化, 并对其表面形貌和电学性质进行测试对比. 本文中 SRO 最优生长条件为激光溅射新鲜靶材 (表面用砂纸打磨后)、激光能量密度 1.75 J/cm² 和生长温度 670 °C. 值得说明的是, 在参考了文献^[9, 23] 中 SRO 薄膜生长氧压以及结合我们此前的实验结果, 发现氧压为 10 Pa 时生长的薄膜其晶格常数最小, 结晶性也更好, 所以本文中所有样品均固定氧压为 10 Pa 进行生长.

3.1 激光能量密度

为了探究激光能量密度对于生长及性质的影响, 磨靶后固定生长温度为 670 °C, 使用不同激光能量密度生长 SRO, 图 1(a)—(e) 为不同激光能量密度下所生长薄膜的表面形貌, 薄膜厚度均为 6 个单胞, 测试区域均为 2 μ m \times 2 μ m, 得出不同激光能量密度下生长得到的薄膜的表面形貌图后, 接着对其电学性质进行表征并将其汇总在图 1(f) 中. 当激光能量密度为 1.25 J/cm² 时, 如图 1(a) 所示, 由于使用的激光能量过低, AFM 图显示样品表面台阶不清晰, 表面粗糙度较大, 为 0.318 nm, 在图 1(f) 中其电学行为表现出绝缘性, 且在温度低于 10 K 时超出量程, 这可能是由于 SrO 相较于 RuO₂ 更易蒸发, 使得较低激光能量密度生长的薄膜中含有过量的 SrO, 导致其表现为绝缘体^[24–26]. 而激光能量密度增大至 1.5 J/cm² 时, 如图 1(b) 所示, 样品表面台阶比较清晰, 粗糙度为 0.203 nm, 由于存在过量的 SrO, 其电学性质仍表现出绝缘体行为 (图 1(f)), 但电阻率相较于 1.25 J/cm² 时显著降低. 图 1(c) 显示了当激光能量密度为 1.75 J/cm² 时, 台阶很平整, 且台阶较平直, 表面粗糙度降低至 0.173 nm, 图 1(f) 中电输运结果显示其在 45 K 时表现出金属-绝缘体转变, 这是由于薄膜较薄时弱局域化作用较显著, 从而低温时电阻随温度的降低而上升^[27]. 当继续提高激光能量密度至 2 J/cm², AFM 图显示台阶明显变差, 表面粗糙度又增加为 0.232 nm, 图 1(f) 中显示其虽然也存在金属-绝缘体转变, 但该转变温度提升至约 160 K, 电阻率也有所上升. 如图 1(e) 所示, 使用 2.25 J/cm² 进行生长得到的 SRO 薄膜,

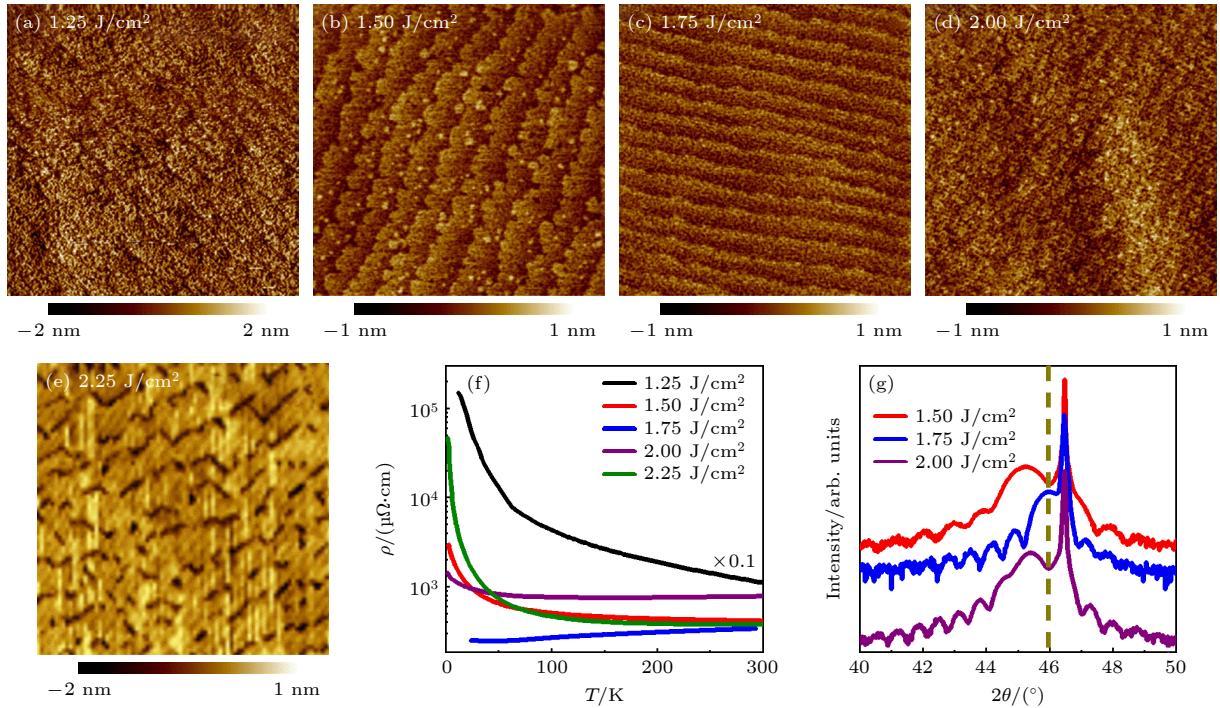


图1 不同激光能量密度下生长的SRO薄膜表面形貌AFM图及电学性质和结构表征。(a)–(e)激光能量密度分别为1.25, 1.5, 1.75, 2和2.25 J/cm²时样品AFM图,测试区域为2 μm × 2 μm,薄膜厚度均为6个单胞;(f)不同激光能量密度生长的薄膜电阻率随温度的变化,其中1.25和2.25 J/cm²样品数据绘制在右坐标轴中;(g)不同激光能量密度生长的薄膜的XRD图,虚线为面外晶格常数 c 最小时SRO(002)峰位置

Fig. 1. AFM images and resistivity of 6-unit-cell SRO thin films grown using different laser fluence: (a)–(e) AFM images of SRO thin film grown under 1.25, 1.5, 1.75, 2 and 2.25 J/cm², the size is 2 μm × 2 μm, the film thickness is 6 unit cells. (f) Resistivity of each thin film as a function of temperature. (g) XRD patterns for SRO films deposited under various laser fluence, the dashed line indicates the SRO (002) peak position when the out-of-plane lattice constant c reaches the minimum.

其台阶边缘处存在沟壑,深达1.5 nm,而粗糙度达到了0.548 nm,且电阻表现为绝缘体行为,这显示使用高激光能量生长时,生长模式发生了层状到岛状转变倾向,由于沟壑的分布非常类似于台阶的分布,因此我们认为生长模式是层状和岛状的复合。Zakharov等^[28]发现存在沟壑的薄膜中,晶界和晶格错位缺陷非常多,能够解释薄膜导电性的变差。同时由于高能量密度羽辉成分也发生变化,既有可能发生RuO₂过量,也有可能发生高氧氛围内的RuO₂到易挥发RuO₄的转变,从而发生薄膜中Ru含量的不足,也能够解释薄膜的电输运性质的变化^[29]。同时,我们也生长了30个单胞(约12 nm)的薄膜,并对其进行测试XRD来探究激光能量密度对于SRO薄膜结构的影响,如图1(g)所示,XRD数据也显示激光能量密度偏低或偏高生长的SRO薄膜面外晶格常数 c 均会变大,只有在1.75 J/cm²进行生长时, c 值降至最小为3.943 Å,与文献^[30]中一致,表明激光能量密度偏低或偏高生长的SRO薄膜中存在更多的缺陷^[24–26,29],发生晶格膨胀。

3.2 生长温度

进一步改变衬底温度生长SRO,并测试其表面形貌、电输运和结构性质,图2(a)–(d)为不同温度下生长的薄膜其表面形貌,薄膜厚度均为6个单胞,测试区域均为2 μm × 2 μm,图2(e)为不同温度生长薄膜的电学性质汇总。为了探究生长温度对于SRO薄膜结构的影响,生长了30个单胞(约12 nm)薄膜并测试XRD绘制在图2(f)中。图2(a)中生长温度为630 °C,AFM图显示样品表面台阶近乎消失,粗糙度为0.299 nm,由于低温生长,样品的结晶性不好^[31,32],导致其电学性质表现出绝缘体行为,图2(f)中XRD结果也显示630 °C生长的薄膜峰位偏左, c 值更大,表明薄膜中存在更多的缺陷。当使用最优生长温度670 °C生长时,如图2(b)所示,台阶很平整,表面粗糙度变小为0.173 nm,样品表现出很好的金属性,XRD(图2(f))结果显示此时 c 值最小^[30],表明薄膜中缺陷较少。继续升高生长温度至700 °C时,图2(c)中AFM图显示台阶很清晰,表面粗糙度为0.182 nm,与670 °C

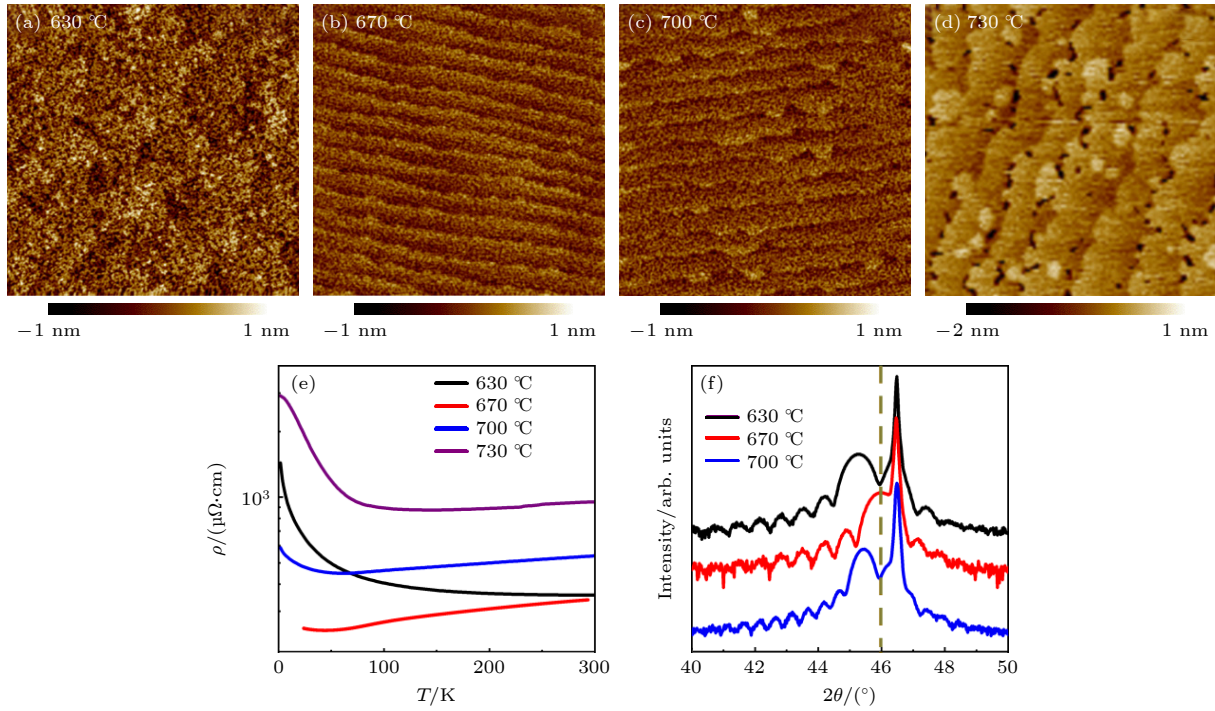


图 2 不同生长温度下生长的 SRO 薄膜表面形貌 AFM 图及电学性质表征 (a)–(d) 生长温度分别为 630, 670, 700 和 730 °C 下生长的薄膜表面 AFM 图, 区域为 $2 \mu\text{m} \times 2 \mu\text{m}$, 薄膜厚度均为 6 个单胞; (e) 不同生长温度下生长的薄膜的电阻率随温度变化关系图; (f) 不同生长温度下生长的薄膜其 XRD 图, 虚线为面外晶格常数 c 最小时 SRO(002) 峰位置

Fig. 2. AFM images and resistivity of 6-unit-cell SRO thin films grown using different deposition temperature: (a)–(d) AFM images of SRO thin film grown at 630, 670, 700 and 730 °C, the size is $2 \mu\text{m} \times 2 \mu\text{m}$, the film thickness is 6 unit cells. (e) Resistivity of each thin film as a function of temperature. (f) XRD patterns for SRO films deposited under various deposition temperature, the dashed line indicates the SRO (002) peak position when the out-of-plane lattice constant c reaches the minimum.

生长的样品表面几乎相同, 也有很好的金属性, 但金属-绝缘体转变温度升高至 60 K, 且低温下电阻率的上升更为剧烈, 电阻率也相应变大 (图 2(e)), 同时 XRD 显示 700 °C 时生长的薄膜峰位左移, c 值变大, 表明存在更多的缺陷. 继续升高温度至 730 °C 进行生长, 图 2(d) 中显示虽然仍可以看到台阶, 但是台阶边缘处存在较深的沟壑, 深度约 1.2 nm, 粗糙度显著变大为 0.418 nm, 与高能量密度生长类似^[28,29], 薄膜变得更加绝缘, 图 2(f) 中显示其在约 150 K 时发生金属-绝缘体转变, 且电阻率最大.

3.3 靶材表面烧蚀度

不只是激光能量密度、生长温度会影响 SRO 的生长, 靶材表面烧蚀度也会对其产生显著影响. 磨靶后初始生长、靶面经过溅射 3×10^4 激光脉冲数 (P) 和 2×10^5 P 后生长的薄膜, 分别测试其电输运行为和表面形貌并绘制在图 3(a)–(d), 薄膜厚度均为 6 个单胞, AFM 测试区域为 $2 \mu\text{m} \times 2 \mu\text{m}$. 磨靶后初始生长的薄膜表面很平整, 粗糙度为 0.173 nm, 在 45 K 时存在金属-绝缘体转变, 表现

出很好的金属性; 当靶面溅射 3×10^4 P 后, 生长的 SRO 薄膜仍能看出台阶, 但台阶边界相对于初始生长的薄膜变得模糊, 表面粗糙度增大为 0.217 nm, 虽然也表现出金属-绝缘体转变, 但转变温度升至约 62 K, 且低温下电阻上翘更严重, 电阻率也有所上升; 而靶面溅射 2×10^5 P 后生长的薄膜尽管表面粗糙度仍仅有 0.222 nm, 却呈现出绝缘体行为, 且在低于 25 K 时电阻率超出测量量程.

为了进一步了解靶面烧蚀度对于生长 SRO 薄膜的影响, 分别在新鲜靶材和溅射 2×10^5 P 后生长 30 个单胞厚度的 SRO 薄膜, 并对其表面形貌、电学和结构性质进行表征, 如图 3(e)–(h) 所示, AFM 测试区域为 $1 \mu\text{m} \times 1 \mu\text{m}$, 红色和蓝色数据线分别为新鲜靶材和靶面烧蚀 2×10^5 P 后生长得到的样品. 在图 3(e) 中, 磨靶后初始生长的厚 SRO 薄膜表现出金属行为, 其顺磁-铁磁转变温度即居里温度 T_c 约 130 K, 图 3(f) 中 AFM 图显示初始生长的薄膜台阶较清晰, 表面粗糙度为 0.185 nm, 图 3(h) 中 XRD 结果显示其面外晶格常数 c 为 3.943 Å, 与文献^[30]中一致, 膜厚振荡峰很明显表明其界面很

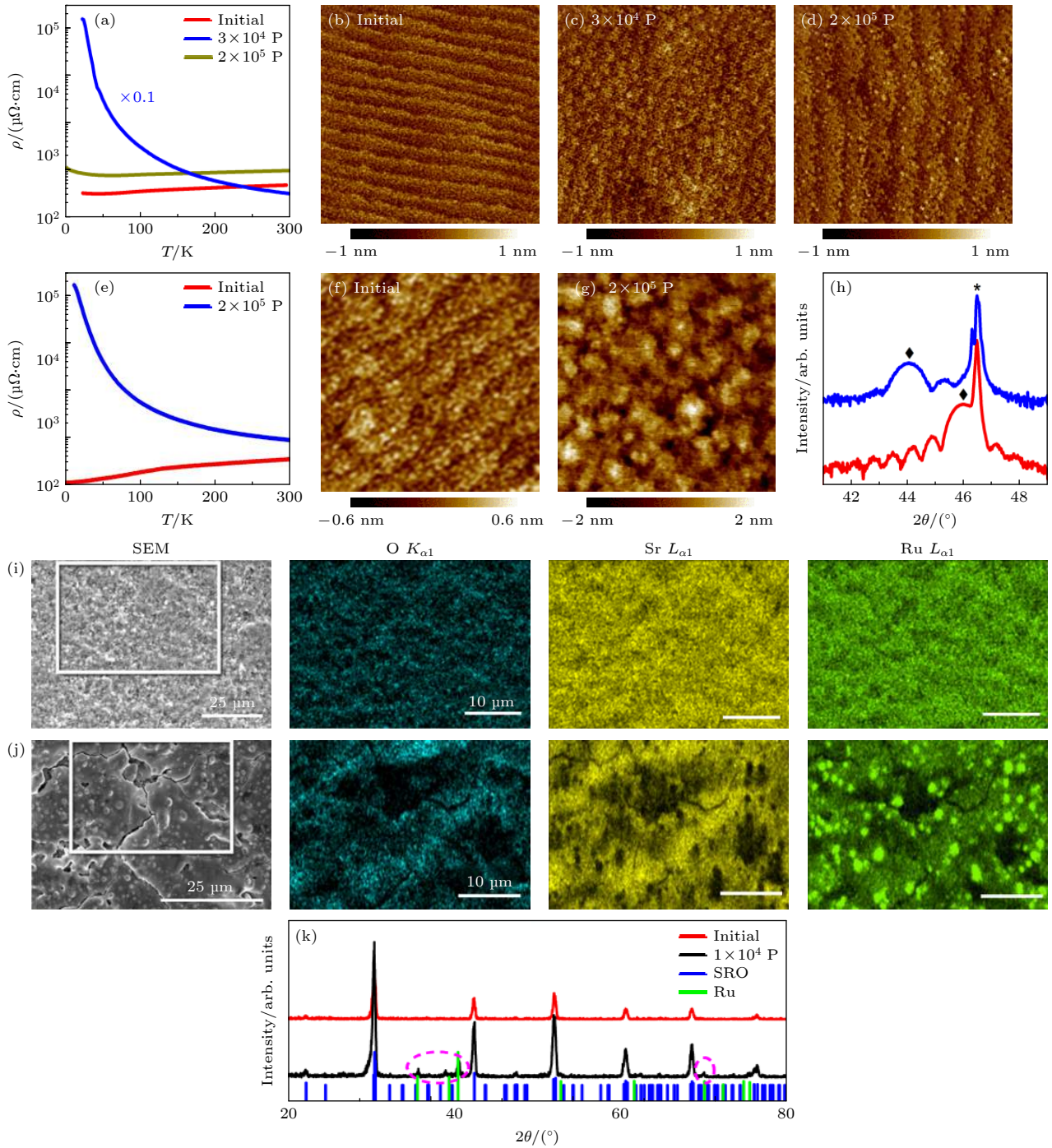
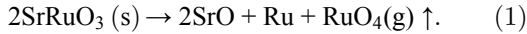


图 3 靶材表面经过不同激光脉冲数烧蚀后生长的 SRO 薄膜表面形貌和电学性质表征以及靶面 SEM 对比图 (a)–(d) 磨靶后最初生长及靶材分别经过 3×10^4 P 和 2×10^5 P 溅射后生长的薄膜电阻率随温度变化图 (a) 及表面形貌图 (b)–(d), 厚度均为 6 个单胞, AFM 测试区域为 $2 \mu\text{m} \times 2 \mu\text{m}$; (e)–(h) 新鲜靶材和靶面经过 2×10^5 P 溅射后生长的薄膜电阻率随温度变化图 (e)、表面形貌图 (f), (g) 和 XRD 图 (h), AFM 测试区域为 $1 \mu\text{m} \times 1 \mu\text{m}$, (h) 中*为衬底 STO(002) 峰, \blacklozenge 为 SRO(002) 峰, 薄膜厚度为 30 个单胞; (i), (j) 未经激光烧蚀与经过 2×10^5 P 溅射后的 SRO 靶材表面 SEM 成像及 EDS 图; (k) 新鲜靶材、经过 1×10^4 P 溅射后的靶面的 XRD 图以及 SRO(蓝色) 和 Ru(绿色) 的 XRD 标准卡片

Fig. 3. AFM images and resistivity of SRO thin films grown after the target surface is ablated by different laser pulse numbers and SEM images of the target surface before and after laser ablation: (a)–(d) Resistivity and AFM images of the 6-unit-cell SRO thin films grown using fresh target and after the target is ablated by 3×10^4 P and 2×10^5 P, respectively. (e)–(h) Resistivity, AFM images and XRD patterns of the 30-unit-cell SRO thin films grown using fresh target and after the target is ablated by 2×10^5 P, respectively. * denotes the (002) peak of STO while \blacklozenge denotes the (002) peak of SRO in (h). (i), (j) SEM and EDS image of SRO target surface before and after 2×10^5 P laser ablation; (k) XRD patterns for the fresh target, the ablated target with 2×10^5 P, and the standard cards of SRO (blue) and Ru (green), respectively.

平整. 而对于溅射 2×10^5 P 后生长的 30 个单胞 SRO 薄膜来说, 图 3(e) 中电输运结果表明其表现出绝缘体行为, 且在 13 K 以下超出测量量程, 而图 3(g) 中 AFM 图显示样品表面很粗糙, 存在约 2 nm 深的孔洞以及 2 nm 高的小岛, XRD 结果 (图 3(h)) 显示相较于新鲜靶材生长的薄膜, 溅射 2×10^5 P 后生长的薄膜其 (002) 峰位左移, c 值增大至 4.113 Å, 表明生长的薄膜中存在很多缺陷.

为了研究靶面状态对于 SRO 薄膜成分的影响, 对靶面进行 SEM 成像并圈定一片区域利用元素特征峰对靶面进行 EDS 测试, 得到元素面分布图, 如图 3(i)–(k) 所示. 图 3(i) 为未经过激光烧蚀的 SRO 靶材表面, SEM 图中显示表面较粗糙, EDS 图谱中 O, Sr 和 Ru 元素在靶材表面均匀分布, 表明靶材中 Sr 和 Ru 均以氧化物的形式存在; 图 3(j) 为溅射 2×10^5 P 后的靶面, SEM 图中显示表面出现龟裂, 且存在很多圆形小凸起, 通过 EDS 进行元素分析, 发现圆形小凸起处均存在大量的 Ru, 整个靶面呈现出 Ru 富集, 这表明在激光烧蚀靶材时可能会发生化学反应 [33]:



随着靶材表面烧蚀度增加, 表面 SRO 会发生分解反应, 生成金属 Ru 和挥发性氧化物 RuO_4 , 而 EDS 图中金属 Ru 沉积在靶材表面证明了该分解反应的进行. 为了进一步证明靶材表面经激光溅射后会存在 Ru 富集, 对新鲜靶材和激光溅射 1×10^4 P 后的靶材表面进行测试 XRD 并将其绘制在图 3(k), 发现相较于新鲜靶材, 经过较多激光溅射后的靶面其 XRD 会出现额外的 Ru 单质峰 (紫色虚线圈内所示), 表明靶面确实存在金属 Ru. 故当靶材表面烧蚀度过大时, 表面会发生 Ru 挥发, 可能导致生成具有 Ru 缺陷的 $\text{SrRu}_{1-x}\text{O}_3$ 薄膜 [29], 从而使得薄膜 c 值增大 (与图 3(h) 中一致), 结构发生改变, 薄膜性质也随之发生改变, 由金属性变为绝缘性.

3.4 SRO 薄膜中缺陷对拓扑霍尔效应的影响

当样品中存在非共面手性自旋结构时, 电子通过这种手性自旋结构时, 受到贝里相位产生的有效磁场的作用, 从而对霍尔电阻产生额外的贡献, 即 THE [15–18]. 有报道指出在 SRO 薄膜及异质结中, 由于发生反演对称性破缺, 界面处存在 DM 相互作用诱导产生手性自旋结构, 于是产生了 THE, 表现在霍尔效应测试数据上会出现一个非单调变化

的驼峰结构. 对于霍尔效应, 霍尔电阻由三部分构成:

$$\begin{aligned} \rho_H &= \rho_{\text{OHE}} + \rho_{\text{AHE}} + \rho_{\text{THE}} \\ &= R_0H + R_sM + \rho_{\text{THE}} = R_0H + \rho_{xy}, \end{aligned} \quad (2)$$

分别为常规霍尔效应 (ordinary hall effect, OHE), AHE 和 THE, 其中 $\rho_{\text{OHE}} = R_0H$, R_0 是常规霍尔系数, H 是面外磁场, OHE 对于霍尔效应的贡献是在强磁场区域由线性外推确定的; $\rho_{\text{AHE}} = R_sM$, R_s 是反常霍尔系数, M 是样品面外磁化强度, 即 AHE 与样品磁性成线性依赖关系 [20]; ρ_{THE} 为 THE 部分; ρ_{xy} 为 AHE 和 THE 共同贡献部分.

为了研究样品质量对于 SRO 中 THE 的影响, 分别改变激光能量密度、衬底温度和靶面状态生长得到 6 个单胞厚 SRO 薄膜, 对其测试霍尔效应并与最优条件下制备的薄膜比较, 将结果绘制在图 4 中, 测试均在 2 K 进行, 图中数据已减去 OHE, 其中棕色阴影部分为样品的 THE 特征峰. 图 4(a) 是在最优条件 (1.75 J/cm^2 , $670 \text{ }^\circ\text{C}$, 新鲜靶面) 下生长的 SRO 薄膜, 其霍尔数据中存在驼峰结构, 即 THE, 且 THE 电阻率约为 $0.1 \mu\Omega\cdot\text{cm}$ (棕色阴影部分高度). 图 4(b) 为高激光能量密度 (2.25 J/cm^2) 下时生长的薄膜, 由于采用高激光能量生长, 使得样品中存在很多沟壑, 而其 THE 消失. 图 4(c) 为 $730 \text{ }^\circ\text{C}$ 时生长的薄膜, 生长温度过高也导致台阶边缘处存在沟壑, 其 THE 也消失. 图 4(d) 为 SRO 靶材表面经过 3×10^4 P 溅射后生长的 SRO 薄膜, 通过上述分析我们认为该薄膜中可能存在 Ru 缺陷, 而其 THE 部分相较于图 4(a) 中最优条件生长的变得更小, 约为 $0.02 \mu\Omega\cdot\text{cm}$.

有文献提出薄膜中不均匀性引起的多通道 AHE 也可以产生霍尔数据中的驼峰结构, 如当样品存在厚度不均匀性 [21,22] 或 Ru 缺陷 [34,35] 时均会产生多通道 AHE 而形成 THE. 在本文中, 高激光能量密度 2.25 J/cm^2 和高生长温度 $730 \text{ }^\circ\text{C}$ 生长的薄膜均在其台阶边缘处存在沟壑, 使得表面存在厚度不均匀性, 但其 THE 均消失; 而图 4(d) 中靶面烧蚀度 3×10^4 P 生长的薄膜其 THE 仅约为 $0.02 \mu\Omega\cdot\text{cm}$, 小于图 4(a) 中最优条件生长的薄膜, 因此 SRO 薄膜中厚度不均匀性和 Ru 缺陷导致的多通道 AHE 无法解释本实验中存在的 THE, 故我们倾向于认为 THE 是由于界面处产生对称性破缺, 因此存在 DM 相互作用而诱导产生手性自旋结构 [15–18].

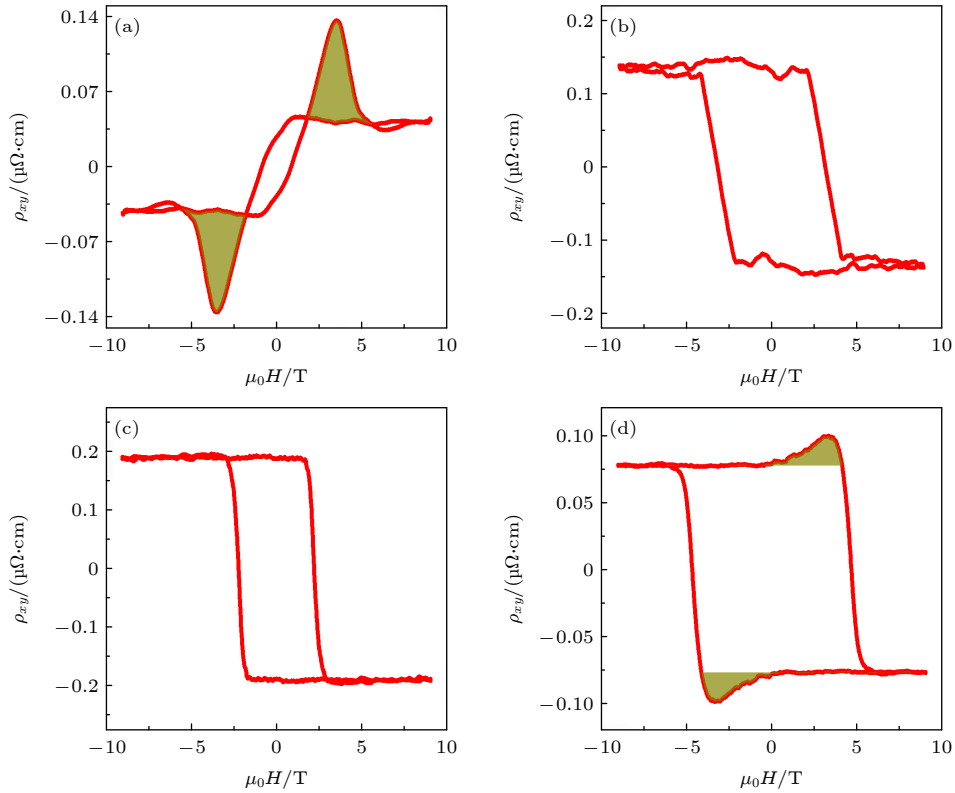


图 4 不同条件下生长的 SRO 薄膜在 2 K 时的霍尔效应表征 (a) 最优生长条件; (b) 激光能量密度为 2.25 J/cm^2 ; (c) 生长温度为 $730 \text{ }^\circ\text{C}$; (d) 靶材表面被预烧蚀 $3 \times 10^4 \text{ P}$

Fig. 4. Hall resistivity of 6-unit-cell SRO grown under different conditions at 2 K. (a) The optimal growth conditions; (b) the laser fluence is 2.25 J/cm^2 ; (c) the growth temperature is $730 \text{ }^\circ\text{C}$; (d) the target surface is ablated by $3 \times 10^4 \text{ P}$.

4 结 论

本文通过激光分子束外延生长 SRO 薄膜, 详细研究了激光能量密度、生长温度以及靶材表面烧蚀度等生长参数对薄膜性质的影响, 并通过改变生长参数探究其对于 SRO 中 THE 的影响. 对于高激光能量密度和高温下生长的薄膜, 由于在台阶边缘处存在沟壑, 因此影响了薄膜的输运性质; 低激光能量密度生长的薄膜中可能存在更多的 SrO, 而低温时生长薄膜结晶性不好, 故薄膜均表现出绝缘体行为; 靶材表面烧蚀度增大, 由于发生分解反应, 使得部分 Ru 挥发, 导致生长的薄膜中存在 Ru 缺陷, 并进而影响 SRO 薄膜的电学性质和结构, 使其由金属性变为绝缘性. 而在最优条件下生长得到的 SRO 薄膜, 其表现出很好的金属性, 且 SRO 超薄膜还表现出 THE, 而当更改生长条件使薄膜中存在厚度不均匀或者更多的 Ru 缺陷时, THE 变小甚至消失, 故我们认为 THE 的存在, 是由于界面存在反演对称性破缺和 DM 相互作用诱导产生的手性自旋结构.

参考文献

- [1] Randall J J, Ward R 1959 *J. Am. Chem. Soc.* **81** 2629
- [2] Mackenzie A P, Reiner J W, Tyler A W, Galvin L M, Julian S R, Beasley M R, Geballe T H, Kapitulnik A 1998 *Phys. Rev. B* **58** R13318
- [3] Klein L, Dodge J S, Ahn C H, Snyder G J, Geballe T H, Beasley M R, Kapitulnik A 1996 *Phys. Rev. Lett.* **77** 2774
- [4] Maria J P, Trolrier-McKinstry S, Schlom D G, Hawley M E, Brown G W 1998 *J. Appl. Phys.* **83** 4373
- [5] Choi K J, Baek S H, Jang H W, Belenky L J, Lyubchenko M, Eom C B 2010 *Adv. Mater.* **22** 759
- [6] Rijnders G, Blank D H A, Choi J, Eom C B 2004 *Appl. Phys. Lett.* **84** 505
- [7] Choe H C, Kang T S, Je J H, Moon J H, Lee B T, Kim S S 2005 *Thin Solid Films* **474** 44
- [8] Lee H N, Christen H M, Chisholm M F, Rouleau C M, Lowndes D H 2004 *Appl. Phys. Lett.* **84** 4107
- [9] Sun Y, Zhong N, Zhang Y Y, Qi R J, Huang R, Tang X D, Yang P X, Xiang P H, Duan C G 2016 *J. Appl. Phys.* **120** 235108
- [10] Toyota D, Ohkubo I, Kumigashira H, Oshima M, Ohnishi T, Lippmaa M, Kawasaki M, Koinuma H 2006 *J. Appl. Phys.* **99** 08N505
- [11] Toyota D, Ohkubo I, Kumigashira H, Oshima M, Ohnishi T, Lippmaa M, Takizawa M, Fujimori A, Ono K, Kawasaki M, Koinuma H 2005 *Appl. Phys. Lett.* **87** 162508
- [12] Shen X, Qiu X B, Su D, Zhou S Q, Li A D, Wu D 2015 *J. Appl. Phys.* **117** 015307

- [13] Jeong H, Jeong S G, Mohamed A Y, Lee M, Noh W S, Kim Y, Bae J S, Choi W S, Cho D Y 2019 *Appl. Phys. Lett.* **115** 092906
- [14] Chang Y J, Kim C H, Phark S H, Kim Y S, Yu J, Noh T W 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 057201
- [15] Matsuno J, Ogawa N, Yasuda K, Kagawa F, Koshibae W, Nagaosa N, Tokura Y, Kawasaki M 2016 *Sci. Adv.* **2** e1600304
- [16] Ohuchi Y, Matsuno J, Ogawa N, Kozuka Y, Uchida M, Tokura Y, Kawasaki M 2018 *Nat. Commun.* **9** 213
- [17] Wang L F, Feng Q Y, Kim Y, Kim R, Lee K H, Pollard S D, Shin Y J, Zhou H B, Peng W, Lee D, Meng W J, Yang H, Han J H, Kim M, Lu Q Y, Noh T W 2018 *Nat. Mater.* **17** 1087
- [18] Gu Y D, Wei Y W, Xu K, Zhang H R, Wan F, Li F, Saleem M S, Chang C Z, Sun J R, Song C, Feng J, Zhong X Y, Liu W, Zhang Z D, Zhu J, Pan F 2019 *J. Phys. D:Appl. Phys.* **52** 404001
- [19] Wang W B, Daniels M W, Liao Z L, Zhao Y F, Wang J, Koster G, Rijnders G, Chang C Z, Xiao D, Wu W D 2019 *Nat. Mater.* **18** 1054
- [20] Matl P, Ong N P, Yan Y F, Li Y Q, Studebaker D, Baum T, Doubinina G 1998 *Phys. Rev. B* **57** 10248
- [21] Wang L, Feng Q, Lee H G, Ko E K, Lu Q, Noh T W 2020 *Nano Lett.* **20** 2468
- [22] Kimbell G, Sass P M, Woltjes B, Ko E K, Noh T W, Wu W, Robinson J W A 2020 *Phys. Rev. Mater.* **4** 054414
- [23] Lee S A, Oh S, Lee J, Hwang J Y, Kim J, Park S, Bae J S, Hong T E, Lee S, Kim S W, Kang W N, Choi W S 2017 *Sci. Rep* **7** 11583
- [24] Ohnishi T, Lippmaa M, Yamamoto T, Meguro S, Koinuma H 2005 *Appl. Phys. Lett.* **87** 241919
- [25] Keeble D J, Wicklein S, Dittmann R, Ravelli L, Mackie R A, Egger W 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 226102
- [26] Ohnishi T, Takada K 2011 *Appl. Phys. Express* **4** 025501
- [27] Zhang J, Cheng L, Cao H, Bao M, Zhao J, Liu X, Zhao A, Choi Y, Zhou H, Shafer P, Zhai X 2022 *Nano Res.* **15** 7584
- [28] Zakharov N D, Satyalakshmi K M, Koren G, Hesse D 1999 *J. Mater. Res.* **14** 4385
- [29] Koster G, Klein L, Siemons W, Rijnders G, Dodge J S, Eom C B, Blank D H A, Beasley M R 2012 *Rev. Mod. Phys.* **84** 253
- [30] Kaur P, Sharma K K, Pandit R, Choudhary R J, Kumar R 2014 *Appl. Phys. Lett.* **104** 081608
- [31] Jia Q X, Chu F, Adams C D, Wu X D, Hawley M, Cho J H, Findikoglu A T, Foltyn S R, Smith J L, Mitchell T E 1996 *J. Mater. Res.* **11** 2263
- [32] Jia Q X, Foltyn S R, Hawley M, Wu X D 1997 *J. Vac. Sci. Technol. A* **15** 1080
- [33] Shin J, Kalimin S V, Lee H N, Christen H M, Moore R G, Plummer E W, Baddorf A P 2005 *Surf Sci.* **581** 118
- [34] Sohn B, Kim B, Choi J W, Chang S H, Han J H, Kim C 2020 *Curr. Appl. Phys.* **20** 186
- [35] Kim G, Son K, Suyolcu Y E, Miao L, Schreiber N J, Nair H P, Putzky D, Minola M, Christiani G, van Aken P A, Shen K M, Schlom D G, Logvenov G, Keimer B 2020 *Phys. Rev. Materials* **4** 104410

SPECIAL TOPIC—Novel physical properties of functional oxide thin films

Correlation of preparation conditions of SrRuO₃ ultrathin films with topological Hall effect*

Zhang Jing-Xian¹⁾²⁾ Bao Ming-Rui²⁾ Ye Fei²⁾Liu Jia²⁾ Cheng Long^{2)†} Zhai Xiao-Fang^{2)‡}

1) (*Department of Materials Science and Engineering, Hefei National Laboratory for Physical Sciences at the Microscale, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China*)

2) (*School of Physical Science and Technology, ShanghaiTech University, Shanghai 201210, China*)

(Received 22 September 2022; revised manuscript received 12 October 2022)

Abstract

As one of the magnetic transition metal oxides, SrRuO₃ (SRO) has received much attention in recent years, which is mainly due to its unique itinerate ferromagnetism and the unusual electrical transport properties—behaving as Fermi liquid at low temperature and bad metal at high temperature. In the growth of SRO thin films, there are many factors that can affect the quality of thin films. In this work, we study various factors affecting the growth and quality of SRO thin films by using laser molecular beam epitaxy (laser MBE), including laser energy density, substrate temperature and target surface conditions, and explore their influences on the topological Hall effect (THE) in SRO. For thin films grown at high laser energy density and high temperature, we found that there are large trenches at the edge of steps, which deteriorate the transport properties of the thin films. When using low laser energy density, extra SrO may exist in the films, which also suppresses the conductivity. Films grown at low temperature tend to have poor crystallinity while films grown at high temperature exhibit island structures. The ablation degree of the target surface increases the decomposition of SRO to SrO, Ru and volatile RuO₄, resulting in Ru defects in the grown thin film. The SRO thin film grown under the optimal conditions (1.75 J·cm⁻², 670 °C, fresh target surface) exhibits the optimal conductivity and the strongest THE. For non-optimal growth conditions that favors thickness inhomogeneity or Ru defects in the film, THE becomes weaker or even disappears. Therefore, we believe that the THE is due to the Dzyaloshinskii-Moriya interaction (DMI) resulting from the interfacial inversion asymmetry and the associated chiral spin structures.

Keywords: SrRuO₃, laser molecular beam epitaxy, growth control, topological hall effect

PACS: 68.55.-a, 73.61.-r, 74.70.Pq, 81.15.-z

DOI: 10.7498/aps.72.20221854

* Project supported by the National Science Foundation of China (Grant Nos. 52072244, 12104305), the Science and Technology Commission of Shanghai Municipality, China (Grant No. 21JC1405000), and the ShanghaiTech Startup Fund, China.

† Corresponding author. E-mail: chenglong1@shanghaitech.edu.cn

‡ Corresponding author. E-mail: zhaixf@shanghaitech.edu.cn