

# La 掺杂 BaSnO<sub>3</sub> 薄膜的低温电输运性质\*

杨健 高矿红 李志青†

(天津大学理学院, 天津市低维功能材料物理与制备技术重点实验室, 天津 300350)

(2023 年 7 月 2 日收到; 2023 年 8 月 2 日收到修改稿)

利用射频磁控溅射技术在 MgO (001) 单晶基片上沉积了一系列 Ba<sub>0.94</sub>La<sub>0.06</sub>SnO<sub>3</sub> 薄膜, 并对薄膜的结构和电输运性质进行了系统研究. 所有薄膜均表现出简并半导体 (金属) 导电特性: 在  $T > T_{\min}$  的高温区 ( $T_{\min}$  为电阻最小值对应的温度), 薄膜的电阻率随温度的升高而升高, 并且与温度的平方呈线性关系. 在  $T < T_{\min}$  的低温区域, 薄膜的电阻率随温度降低而上升, 并且电阻率随  $\ln T$  呈线性变化, 均匀无序系统中的电子-电子相互作用、弱局域效应以及 Kondo 效应均不能解释这种现象. 经过定量分析, 发现电阻率在低温下  $\ln T$  的依赖关系源于颗粒间电子的库仑相互作用. 同时, 在 Ba<sub>0.94</sub>La<sub>0.06</sub>SnO<sub>3</sub> 薄膜中也观察到霍尔系数  $R_H$  与  $\ln T$  呈线性关系, 并且该线性关系也定量的符合金属颗粒体系中库仑相互作用的理论. 薄膜断面高分辨透射电子显微镜结果表明, 虽然薄膜整体呈现外延结构, 但其中存在诸多条状非晶区域, 这使得薄膜整体表现出类似金属颗粒膜的电输运性质. 本文的结果为金属颗粒系统中库仑相互作用对电导率和霍尔系数修正理论的正确性提供了有力的支持.

**关键词:** 透明导电氧化物, 金属颗粒系统, 电子-电子相互作用, 电输运性质**PACS:** 73.50.-h, 72.15.Qm, 73.20.Fz, 72.10.-d**DOI:** 10.7498/aps.72.20231082

## 1 引言

近年来, 电子掺杂的 BaSnO<sub>3</sub> 由于具有高的室温迁移率而倍受研究者的关注<sup>[1-4]</sup>. BaSnO<sub>3</sub> 是一种宽带隙 (约 3.1 eV) 三元钙钛矿氧化物半导体, 具有理想的钙钛矿结构<sup>[5]</sup>. 三元钙钛矿氧化物  $MSnO_3$  ( $M = \text{Sr}, \text{Ca}, \text{Ba}$ ) 的结构容忍因子可从 0.927 变化至 1.018<sup>[6]</sup>, 并且 M 位和 Sn 位都能进行替位掺杂<sup>[2,7]</sup>, 因此相比二元透明导电氧化物, BaSnO<sub>3</sub> 具有灵活的结构可调整性和性能可调控性<sup>[8]</sup>. La 掺杂的 BaSnO<sub>3</sub> 单晶具有很好的可见光透过性, 同时具有高达 320 cm<sup>2</sup>/(V·s) 的室温迁移率, 该迁移率为当前透明导电氧化物中的最高值<sup>[2]</sup>. (La, Ba) SnO<sub>3</sub> 外延薄膜兼具优良导电性和可见光透过性<sup>[3]</sup>, 并且在空气中具有良好的热稳定性. 电子掺杂的

BaSnO<sub>3</sub> 具备上述多种优异的物理性质, 使得其在高功率器件、PN 结、透明场效应晶体管等领域具有巨大的应用前景. 此外, 近期在基于 BaSnO<sub>3</sub> 的异质结界面发现了 5s 轨道二维电子气, 这提供了探索界面新奇物理现象的新平台<sup>[9,10]</sup>. 过去的十多年里, 对 La 掺杂的 BaSnO<sub>3</sub> 的研究主要集中在高质量外延薄膜的制备<sup>[3,11-18]</sup> 和室温附近的电输运性质<sup>[2,4,17,19]</sup>. 电阻率及霍尔系数与温度的关系是理解材料的导电机理的关键要素, 而理解导电机理对提高材料的迁移率至关重要. 因此, 本文使用磁控溅射法制备了一系列 La 掺杂的 BaSnO<sub>3</sub> 薄膜, 系统研究了其低温下的导电机理.

## 2 实验

利用射频磁控溅射技术在 MgO(001) 单晶基底

\* 国家自然科学基金 (批准号: 12174282) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: zhiqingli@tju.edu.cn

上沉积了名义组分为  $\text{Ba}_{0.94}\text{La}_{0.06}\text{SnO}_3$  (BLSO) 的系列薄膜. 所用靶材为  $\text{Ba}_{0.94}\text{La}_{0.06}\text{SnO}_3$  (纯度为 99.9%) 商用陶瓷靶. 腔室背底真空为  $1.4 \times 10^{-4}$  Pa, 溅射气氛为纯氩气 (99.999%). 在沉积过程中, 基底温度设置为 750 °C, 氩气压强保持 0.4 Pa. 沉积结束后各薄膜在原位经不同时间退火, 然后以 5 °C/min 降温至室温. 本实验制备了 3 个不同的薄膜, 薄膜的退火时间分别 0, 1 和 2 h, 厚度分别为 800, 800 和 500 nm. 使用掩模板将进行电输运性质测量的样品制成了宽度 1 mm、长度 10 mm 的 Hall 棒形状.

采用台阶仪 (Dektak 6M) 测量样品的厚度, 利用 X 射线衍射仪 (XRD miniflex 600) 表征薄膜的晶体结构, 使用扫描电子显微镜 (SEM SEM-SUPRA 55VP) 测量样品的表面形貌, 使用高分辨透射电子显微镜 (HRTEM) 进一步表征样品的微观结构. 使用物理性质测量系统 (PPMS-6000, 量子设计) 测量电阻率及霍尔系数与温度的关系, 测量过程中, 接线方式均采用四引线法. 在测量霍尔系数过程中, 采用固定电流扫描磁场的方式进行测量, 磁场扫描范围为  $-1$ — $1$  T, 扫描步长为 0.1 T.

### 3 结果与讨论

图 1 为所制备 BLSO 薄膜的 X 射线衍射图, 图谱中只出现了 BLSO 薄膜的 (002) 和 MgO 基底 (002) 的衍射峰, 没有出现其他杂相和其他晶面的衍射峰, 表明薄膜具有单一相 (钙钛矿结构) 并且沿  $c$  轴取向生长. 另外, 可以看出, 样品 No.1, No.2, No.3 的 (002) 衍射峰强度逐渐增强, 这是由于退火时间变长使得薄膜的结晶质量提高, 从而导致薄膜的衍射峰强度逐渐变强. 利用高斯函数对各样品的 (002) 衍射峰进行拟合, 得到薄膜 No.1, No.2 和 No.3 的 (002) 衍射峰的半峰宽分别为  $0.282^\circ$ ,  $0.259^\circ$  和  $0.256^\circ$ , 这同样表明随着退火时间的延长, 薄膜的结晶质量变得更好. 由 (002) 衍射峰所得到的 3 个薄膜的晶格常数均为  $(4.122 \pm 0.002)$  Å, 与纯的  $\text{BaSnO}_3$  ( $a = 4.116$  Å) 相比 [20], 晶格常数增大了约 0.15%.  $\text{La}^{3+}$  和  $\text{Ba}^{2+}$  的离子半径分别为 1.36 Å 和 1.61 Å, 这似乎与晶格常数变大相矛盾 [21]. 然而, 已有报道发现  $\text{La}^{3+}$  作为电子施主部分取代  $\text{Ba}^{2+}$  时, 会提供电子进入 Sn 5s-O 2p  $\sigma^*$  反键轨道组成的导带中, 导致 Sn-O 之间产生排斥, 从而引

起了晶格的膨胀 [3,22]. 此外, 为保持体系的电中性,  $\text{Sn}^{4+}$  (离子半径为 0.69 Å) 部分转变为  $\text{Sn}^{2+}$  (离子半径 1.12 Å) 也会引起晶格的扩张 [23–25]. 图 1 插图给出了退火 2 h 薄膜 (111) 晶面的  $\phi$  扫描图, 可以看出, 衍射谱图中出现了 4 个均匀分布的衍射峰, 表明 BLSO 薄膜在 MgO 基底上是外延生长的.

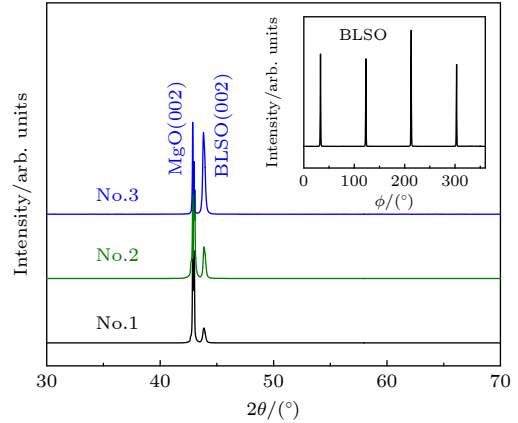


图 1 退火时间为 0, 1 和 2 h 的 BLSO 薄膜的 XRD  $\theta - 2\theta$  扫描图谱. 插图为退火 2 h 的 BLSO 薄膜的 (111) 晶面的  $\phi$  扫描图

Fig. 1. XRD  $\theta - 2\theta$  scan patterns of BLSO films annealed *in situ* for 0, 1, and 2 h. The inset is the  $\phi$ -scan spectrum of (111) plane for the BLSO film annealed for 2 h.

图 2 为 3 个薄膜的归一化电阻率  $\rho/\rho(300\text{ K})$  与温度的关系. 可以看出, 在  $T_{\min}$  (电阻率最小值对应的温度) 温度以上, 3 个样品的电阻温度系数均为正, 具有金属导电特性. Kim 等 [3] 利用第一性原理计算, 研究了 La 掺杂  $\text{BaSnO}_3$  的电子结构. 研究结果表明, 随着少量 La 的掺入,  $\text{BaSnO}_3$  的费米能级从带隙上移至导带, 发生从半导体到导体 (简并半导体) 的转变, 这与我们样品中的高温区电阻温度系数为正相一致. 图 2(a) 中插图为  $T > T_{\min}$  温区的  $\rho/\rho(300\text{ K})$  与  $T^2$  的关系, 可以看出, 在  $T > T_{\min}$  的温区,  $\rho/\rho(300\text{ K})$  与  $T^2$  呈线性关系, 根据以前的理论及实验研究可知, 电阻率与温度平方项来源于电子-声子散射与电子-杂质散射的干涉效应 [26–29]. 在  $T < T_{\min}$  温区, 3 个薄膜的电阻温度系数是负值, 并且  $\rho/\rho(300\text{ K})$  与  $\log_{10}T$  ( $\ln T$ ) 呈线性关系, 下面详细讨论其来源.

根据传统理论, 二维无序导体, 电子-电子相互作用和弱局域效应对电阻的修正均会导致电阻率与  $\ln T$  的依赖关系 [30–33]. 在均匀无序导体中, 对于电子-电子相互作用, 判断材料维度的特征长度为

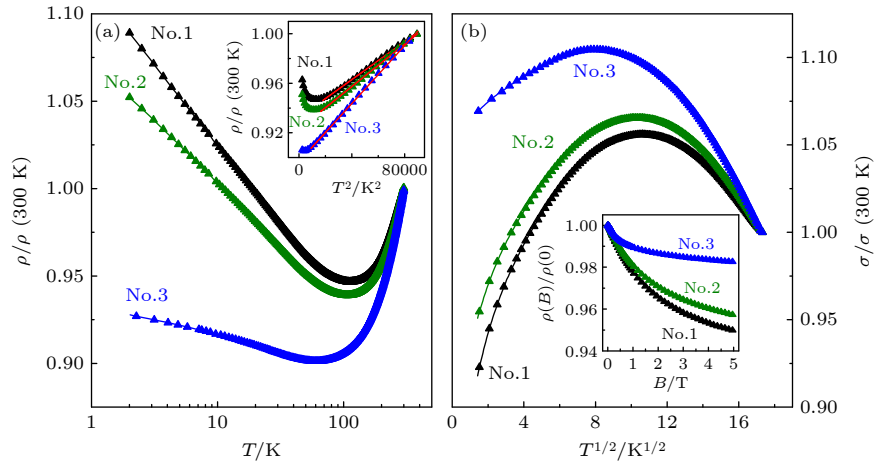


图 2 (a) 退火时间为 0, 1 和 2 h 的 BLSO 薄膜的归一化电阻率  $\rho/\rho(300\text{ K})$  与  $T$  (对数刻度) 的关系, 插图为  $\rho/\rho(300\text{ K})$  与  $T^2$  的关系; (b) 归一化电导率  $\sigma/\sigma(300\text{ K})$  与  $T^{1/2}$  的关系, 插图为  $T = 2\text{ K}$  时样品的磁电阻

Fig. 2. (a) Normalized resistivity  $\rho/\rho(300\text{ K})$  varies as a function of  $T$  (logarithmic scale) for BLSO films annealed for 0, 1, and 2 h, inset is  $\rho/\rho(300\text{ K})$  vs.  $T^2$  for the films; (b) normalized conductivity  $\sigma/\sigma(300\text{ K})$  versus  $T^{1/2}$ , and the inset is the magnetoresistance of the samples at  $T = 2\text{ K}$ .

表 1 BLSO 薄膜的相关参数, 其中  $t_A$  是薄膜原位退火时间,  $t$  是薄膜的厚度,  $n^*$  是有效载流子浓度,  $g_T$  是使用 (3) 式拟合电导率与温度关系得出的值,  $c_d$  是使用 (4) 式拟合霍尔系数与温度关系得出的值

Table 1. Relevant parameters for BLSO films, where  $t_A$  is in-situ annealing time.  $t$  is the thickness of the films.  $n^*$  is the mean value of carrier concentration,  $g_T$  is the value obtained by fitting the conductivity vs. temperature with Eq. (3),  $c_d$  is the value obtained by fitting the Hall coefficient vs. temperature with Eq. (4).

Sample	$t_A/\text{h}$	$t/\text{nm}$	$\rho(300\text{ K})/(\text{m}\Omega\cdot\text{m})$	$\rho(2\text{ K})/(\text{m}\Omega\cdot\text{m})$	$D/(\text{cm}^2\cdot\text{s}^{-1})$	$n^*/(10^{20}\text{ cm}^{-3})$	$g_T$	$c_d$
No.1	0	800	0.3	0.33	0.09	1.20	1.53	0.81
No.2	1	800	0.19	0.21	0.142	1.35	1.89	0.31
No.3	2	500	0.084	0.079	0.037	1.44	6.15	0.75

电子的热扩散长度  $L_T = \sqrt{\hbar D/k_B T}$  ( $D$  为电子扩散系数,  $\hbar$  为约化普朗克常数,  $k_B$  为玻尔兹曼常数): 当薄膜厚度  $t \leq L_T$  时, 样品是二维的; 当  $t \gg L_T$  时, 样品是三维的. 表 1 列出了各样品的扩散系数, 由此可得  $T = 2\text{ K}$  时, 样品 No.1, No.2 和 No.3 的特征长度分别为 6.2, 7.4 和 11.7 nm. 均远小于薄膜的厚度, 因此对于电子-电子相互作用来讲, 样品是三维的. 根据均匀无序导体中电子-电子相互作用理论, 三维无序导体中电子-电子相互作用对电导率的修正为  $\delta\sigma \propto T^{1/2}$  [33]. 图 2(b) 给出了归一化电导率  $\sigma/\sigma(300\text{ K})$  与温度  $T^{1/2}$  的关系, 显然, 在  $T < T_{\min}$  温区, 并未出现  $\sigma/\sigma(300\text{ K})$  与  $T^{1/2}$  的线性关系, 因此低温下薄膜电阻率的上升与 Altshuler 等 [30,31,33] 提出的均匀无序导体中的电子-电子相互作用无关.

如前所述, 二维弱局域效应也会导致低温下电阻与  $\ln T$  的线性关系 [32,33]. 为此测量了样品的低温磁电阻, 使用三维弱局域理论 [34–37] 对磁电阻进行

了分析, 得到了各薄膜的退相干长度与温度的关系. 在  $2\text{ K}$  下, 样品 No.1, No.2 和 No.3 的退相干长度分别为 90.6, 82.8 和 70.1 nm, 均远远小于薄膜的厚度, 因此, 对弱局域效应来讲样品也是三维的. 而三维弱局域效应对电导率的修正为  $\delta\sigma \propto T^{p/2}$  [33], 这里指数  $p$  依赖于散射机制, 在三维情况下  $p$  通常取 3 或 4 [38,39]. 因此, 低温下电阻率与  $\ln T$  的线性关系与弱局域效应无关.

Kondo 效应 [40,41] 也会导致低温下电阻率随温度降低而增大, 并且与  $\ln T$  呈线性关系. 但 Kondo 效应 [41] 导致的电阻率的变化在低温下会趋于饱和, 然而, 对于我们的 3 个 BLSO 薄膜, 当温度降低至  $2\text{ K}$  时, 电阻率仍按  $\ln T$  的关系保持单调升高趋势, 没有出现饱和现象. 另外, 对于 Kondo 效应来说, 在 Kondo 温度 ( $T_{\min}$ ) 以下, 样品应表现开口向下的抛物线型的负磁电阻 [42,43] (即呈现上凸型负磁电阻曲线). 图 2(b) 插图 3 个样品  $2\text{ K}$  下的磁电阻  $\rho(B)/\rho(0)$  与磁场的关系, 可以看出, 3 个薄膜的

磁电阻呈现出上凹型曲线, 与 Kondo 效应引起的磁电阻曲线形状不符. 我们也尝试利用 Kondo 效应引起的磁电阻公式<sup>[42–44]</sup>拟合本实验中的磁电阻数据, 发现拟合理论曲线偏离实验数据. 因此, 样品低温区电阻率与  $\ln T$  的线性关系也不是由 Kondo 效应导致的.

那么, BLSO 薄膜低温下电阻率与  $\ln T$  的线性关系的起源到底是什么呢? 从 2003—2007 年间, Beloborodov 等<sup>[45–47]</sup>系统地研究了金属颗粒系统中颗粒间电子的库仑相互作用对电导率的影响. 研究表明, 当颗粒间无单位隧穿电导  $g_T$  满足  $g_T^c \ll g_T \ll g_0$  时, 这里  $g_T = G_T/(2e^2/h)$ ,  $g_0 = G_0/(2e^2/h)$ ,  $g_T^c = G_T^c/(2e^2/h)$ ,  $e$  是电子电荷,  $G_T$  和  $G_0$  分别是金属颗粒间隧穿电导和颗粒内部电导,  $G_T^c$  是临界隧穿电导, 当  $G_T > G_T^c$  时, 体系处于金属态, 反之处于绝缘态, 在  $g_T\delta/k_B \lesssim T \lesssim E_c/k_B$  温度范围内 ( $\delta$  是晶粒内的平均能级间距、 $E_c$  是单个金属颗粒的充电能), 颗粒间电子的库仑相互作用对电导率的修正与  $\ln T$  成正比, 此时体系的电导率可写成<sup>[45–47]</sup>:

$$\sigma(T) = \sigma_0 \left[ 1 - \frac{1}{2\pi g_T \tilde{d}} \ln \left( \frac{g_T E_c}{k_B T} \right) \right], \quad (1)$$

其中,  $\sigma_0$  是无库仑作用时的电导率,  $\tilde{d}$  是颗粒体系的维度. 此外, Kharitonov 和 Efetov<sup>[48,49]</sup>在理论上系统地研究了金属颗粒系统中库仑相互作用对霍尔系数的影响. 研究表明, 在  $g_T\delta/k_B \lesssim T \lesssim E_c/k_B$  温度范围内, 金属颗粒内部的虚电子扩散会对霍尔系数产生修正, 该修正与  $\ln T$  成正比, 此时体系的霍尔系数可写成<sup>[48,49]</sup>:

$$R_H = \frac{1}{n^* e} \left[ 1 + \frac{c_d}{2\pi g_T \tilde{d}} \ln \left( \frac{g_T E_c}{k_B T} \right) \right], \quad (2)$$

其中,  $n^*$  是有效载流子浓度,  $c_d$  为接近 1 的常数, 与颗粒的几何结构相关. 取颗粒体系维度  $\tilde{d} = 3$ , 取任意参考温度  $T_0$ , 则 (1) 式可改写成:

$$\Delta\sigma = \sigma(T) - \sigma(T_0) = \frac{\sigma_0}{6\pi g_T} \ln \left( \frac{T}{T_0} \right). \quad (3)$$

图 3 展示了样品  $\Delta\sigma$  与温度的关系, 其中参考温度  $T_0 = 2$  K. 使用 (3) 式对实验数据进行拟合, 拟合过程中,  $g_T$  为唯一的可调参数. 退火 0, 1 和 2 h 薄膜的  $\sigma_0$  分别取 100, 80 和 80 K 的电导率. 图 3 中的实线是 (3) 式拟合的结果, 在 2—30 K 温度范围内, (3) 式的拟合结果与实验值吻合得很好.

3 个薄膜的拟合参数  $g_T$  分别为 1.53, 1.89 和 6.15, 均大于 1, 满足 (1) 式有效的前提条件.

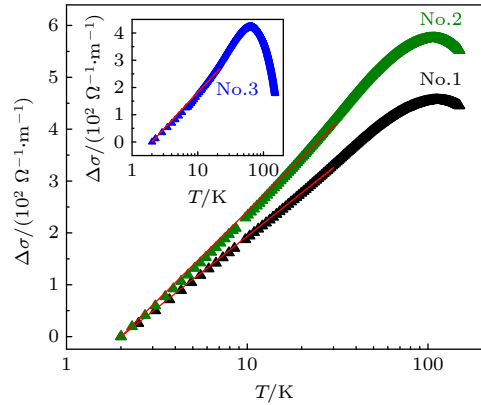


图 3 退火 0, 1 和 2 h (插图) 的 BLSO 薄膜在零磁场下的  $\Delta\sigma$  与  $T$  (对数刻度) 的关系, 实线是 (3) 式拟合的结果

Fig. 3. At zero magnetic field,  $\Delta\sigma$  vs.  $T$  (logarithmic scale) for BLSO films annealed for 0, 1 and 2 h (inset), the solid lines are the fitting results using Eq. (3).

根据上述讨论可知, 考虑颗粒间电子的库仑相互作用后, 金属颗粒系统的霍尔系数  $R_H$  也应该与  $\ln T$  呈线性相关, 为此测量了各样品不同温度时的霍尔系数. 图 4 给出了霍尔系数与温度的关系, 其中横轴 (温度) 为对数坐标. 由该图可以看出, 在 2—30 K 温度范围内, 3 个薄膜的霍尔系数均随  $\ln T$  线性变化. 为了定量分析霍尔系数与温度的关系, 将 (2) 式改写成:

$$R_H = R_H(T_0) + \frac{1}{n^* e} \frac{c_d}{6\pi g_T} \ln \left( \frac{T}{T_0} \right), \quad (4)$$

其中,  $T_0$  仍然是参考温度, 利用 (4) 式对霍尔系数的实验数据进行最小二乘法拟合. 拟合过程中,  $c_d$  和  $R_H(T_0)$  为拟合参数,  $g_T$  取分析电导率与温度关系数据中得到的值,  $T_0$  取 30 K,  $n^*$  值为 150—200 K 温度范围内载流子浓度的平均值, 此温度范围内可以忽略颗粒间电子的库仑相互作用对霍尔系数的修正. 图 4 中的实线是 (4) 式的拟合结果, 由图可知薄膜的霍尔系数与温度的依赖关系与理论预测几乎一致. 对于退火 0, 1 和 2 h 的薄膜, 拟合得到的  $c_d$  值分别为 0.81, 0.31 和 0.75, 均处于合理范围. 另外, 3 个薄膜的  $R_H(30$  K) 拟合值和实验值基本一致. 因此, (4) 式能很好地描述样品霍尔系数与温度的关系. 由上述分析可以得出, 对于 BLSO 薄膜, 不仅低温电导率与  $\ln T$  呈线性关系, 霍尔系数与  $\ln T$  也呈线性关系, 这些线性关系均来源于 BLSO 薄膜颗粒间电子的库仑相互作用.



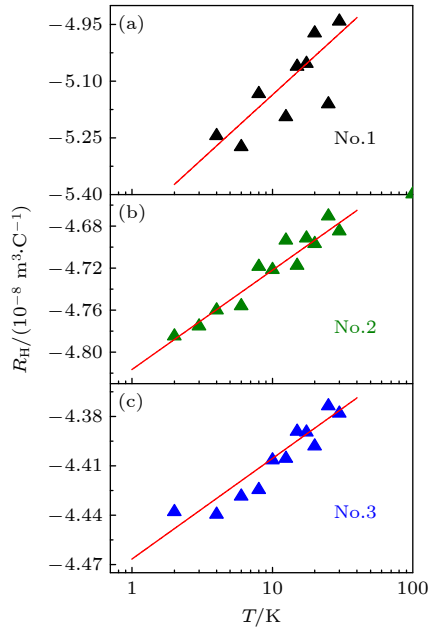


图 4 薄膜的  $R_H$  与  $T$  (对数刻度) 的关系. 实心三角形是实验值, 实线是使用 (4) 式拟合得出的结果 (a) 退火 0 h; (b) 退火 1 h; (c) 退火 2 h

Fig. 4. Temperature (logarithmic scale) dependence of  $R_H$  for films. The solid triangles are experimental values, and the solid lines are least-squares fits to Eq. (4): (a) Annealed for 0 h; (b) annealed for 1 h; (c) annealed for 2 h.

上文电阻率及霍尔系数与温度关系的结果说明样品是非均匀体系, 存在类似颗粒膜的结构. 而

前面由 XRD 的  $\theta - 2\theta$  及  $\phi$  扫描图的结果显示薄膜具有外延结构, 这两者似乎矛盾. 为了细致研究薄膜的微观结构, 我们对样品进行了 SEM 及断面 HRTEM 分析. 图 5(a) 和图 5(b) 分别为退火 1 h 和退火 2 h 薄膜的 SEM 图像, 可以看出, 两个薄膜表面并不平坦, 而是具有晶粒生长的痕迹, 随着退火时间的增加, 表面晶粒逐渐变大, 说明退火有利于薄膜的结晶. 图 5(c) 给出了退火 2 h 薄膜的 HRTEM 形貌图, 从该图可以清楚区分出 BLSO 薄膜和 MgO 基底的界面. 另外, 虽然 BLSO 薄膜中大部分区域都已结晶, 但薄膜中仍存在一些长条状的非晶区域, 图 5(c) 中的矩形区域标识的即是非晶区域, 图 5(d) 给出了图 5(c) 中虚线矩形区域的放大图, 可以明显地看出矩形范围内中部分区域为非晶结构. 一般来讲, 非晶区域的电阻率要明显高于结晶区域, 因此这些非晶区域在电子输运过程中充当了电子隧穿的势垒, 使得薄膜在电输运性质上呈现类金属颗粒膜 [50,51] 的非均匀体系的特征.

值得一提的是, 颗粒间电子的库仑相互作用对电导率的  $\ln T$  的修正已在多种体系中得到证实 [52-55], 在很多二维颗粒金属体系中也发现了库仑相互作用对霍尔系数的修正 [29,50,51,56]. 然而, 实验上却很少有三维金属颗粒系统中库仑相互作用

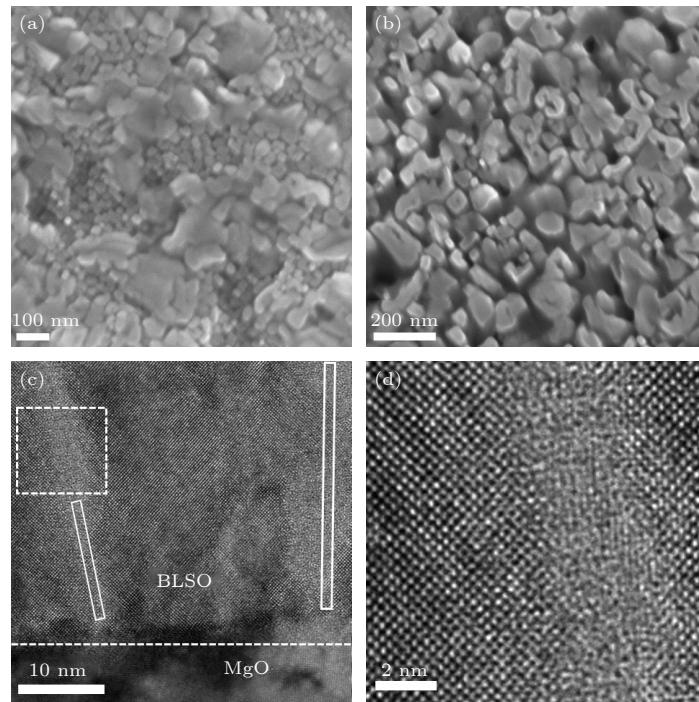


图 5 (a) 退火 1 h 和 (b) 退火 2 h 的 BLSO 薄膜的表面 SEM 图像; (c) 退火 2 h 薄膜的断面 HRTEM 形貌图; (d) 图 (c) 中虚线矩形区域的放大图

Fig. 5. SEM images for the surfaces of the BLSO films (a) annealed for 1 h and (b) annealed for 2 h; (c) cross-sectional HRTEM micrograph of the BLSO films annealed for 2 h; (d) the enlarged image of the dashed rectangular area in panel (c).

对霍尔系数修正的发现, 至今只在  $\text{Ag}_x(\text{SnO}_2)_{1-x}$ <sup>[51]</sup> 和  $\text{Cr}_x(\text{SnO}_2)_{1-x}$ <sup>[57]</sup> 曾有报道. 而本文的结果不仅证实了库仑相互作用对电导率修正的理论结果, 而且也证实了三维金属颗粒系统 (BLSO 薄膜) 中库仑相互作用对霍尔系数修正的理论结果, 本文结果更加全面地验证了金属颗粒系统中库仑相互作用理论的正确性.

## 4 结 论

通过射频磁控溅射技术在  $\text{MgO}(001)$  单晶基片上成功制备了一系列 BLSO 薄膜. 薄膜在电输运性质上具有简并半导体的性质, 在  $T > T_{\min}$  温区, 电阻率随温度的升高而增大, 并且与温度的平方呈线性关系; 在  $T < T_{\min}$  温区, 电阻率随温度的降低而增大, 并且与  $\ln T$  呈线性关系. 定量研究结果表明, 低温下电阻与温度的  $\ln T$  依赖关系与弱局域效应、均匀无序体系中电子-电子相互作用以及 Kondo 效应均没有关系, 而是起源于导体颗粒间电子的库仑相互作用. 同时, 我们在  $\text{Ba}_{0.94}\text{La}_{0.06}\text{SnO}_3$  薄膜中也观察到霍尔系数  $R_H$  与  $\ln T$  呈线性关系, 并且霍尔系数与  $\ln T$  的线性关系也定量的符合金属颗粒体系中库仑相互作用的理论. 断面 HRTEM 结果显示薄膜中存在非晶区域, 正是由于这些非晶区域, 使得薄膜具有类似金属颗粒膜的结构. 上述研究结果全面验证了金属颗粒系统中颗粒间电子的库仑相互作用对电导率和霍尔系数的修正理论.

## 参考文献

- [1] Luo X, Oh Y S, Sirenko A, Gao P, Tyson T A, Char K, Cheong S W 2012 *Appl. Phys. Lett.* **100** 172112
- [2] Kim H J, Kim U, Kim T H, Mun H S, Jeon B G, Hong K T, Lee W J, Ju C, Kim K H, Char K 2012 *Appl. Phys. Express* **5** 061102
- [3] Kim H J, Kim U, Kim T H, Kim J, Kim H M, Jeon B G, Lee W J, Mun H S, Hong K T, Yu J, Char K, Kim K H 2012 *Phys. Rev. B* **86** 165205
- [4] Kim K H, Kim J, Kim T H, Lee W J, Jeon B G, Park J Y, Choi W S, Jeong D W, Lee S H, Yu J, Noh T W, Kim H J 2013 *Phys. Rev. B* **88** 125204
- [5] Mizoguchi H, Eng H W, Woodward P M 2004 *Inorg. Chem.* **43** 1667
- [6] Zhang W, Tang J, Ye J 2007 *J. Mater. Res.* **22** 1859
- [7] Lee W J, Kim H J, Kang J, Jang D H, Kim T H, Lee J H, Kim K H 2017 *Ann. Rev. Mater. Res.* **47** 391
- [8] Cui J M, Zhang Y Y, Wang J L, Zhao Z B, Huang H L, Zou W, Yang M M, Peng R R, Yan W S, Huang Q P, Fu Z P, Lu Y L 2019 *Phys. Rev. B* **100** 165312
- [9] Feng Z X, Qin P X, Yang Y L, Yan H, Guo H X, Wang X N, Zhou X R, Han Y Y, Yi J B, Qi D C, Yu X J, Breese M B H, Zhang X, Wu H J, Chen H Y, Xiang H J, Jiang C B, Liu Z Q 2021 *Acta Mater.* **204** 116516
- [10] Eom K, Paik H, Seo J, Campbell N, Tsymbal E Y, Oh S H, Rzechowski M S, Schlom D G, Eom C B 2022 *Adv. Sci.* **9** 2105652
- [11] Lee W J, Kim H J, Sohn E, Kim T H, Park J Y, Park W, Jeong H, Lee T, Kim J H, Choi K Y, Kim K H 2016 *Appl. Phys. Lett.* **108** 82105
- [12] Park C, Kim U, Ju C J, Park J S, Kim Y M, Char K 2014 *Appl. Phys. Lett.* **105** 203503
- [13] Sanchela A V, Wei M, Zensyo H, Feng B, Lee J, Kim G, Jeon H, Ikuhara Y, Ohta H 2018 *Appl. Phys. Lett.* **112** 232102
- [14] Prakash A, Dewey J, Yun H, Jeong J S, Mkhoyan K A, Jalan B 2015 *J. Vac. Sci. Technol. A* **33** 60608
- [15] Lebens-Higgins Z, Scanlon D O, Paik H, Sallis S, Nie Y, Uchida M, Quackenbush N F, Wahila M J, Sterbinsky G E, Arena D A, Woicik J C, Schlom D G, Piper L F J 2016 *Phys. Rev. Lett.* **116** 027602
- [16] Raghavan S, Schumann T, Kim H, Zhang J Y, Cain T A, Stemmer S 2016 *APL Mater.* **4** 016106
- [17] Prakash A, Xu P, Faghaninia A, Shukla S, Ager J W, Lo C S, Jalan B 2017 *Nat. Commun.* **8** 15167
- [18] Prakash A, Xu P, Wu X, Haugstad G, Wang X J, Jalan B 2017 *J. Mater. Chem. C* **5** 5730
- [19] Ganguly K, Prakash A, Jalan B, Leighton C 2017 *APL Mater.* **5** 056102
- [20] Mountstevens E H, Attfield J P, Redfern S A T 2003 *J. Phys. Condensed Matter* **15** 8315
- [21] Shannon R D 1976 *Acta Cryst. A* **32** 751
- [22] Liu Q Z, Liu J J, Li B, Li H, Zhu G P, Dai K, Liu Z L, Zhang P, Dai J M 2012 *Appl. Phys. Lett.* **101** 241901
- [23] Hadjarab B, Bouguelia A, Trari M 2007 *J. Phys. D Appl. Phys.* **40** 5833
- [24] Hadjarab B, Bouguelia A, Benchettara A, Trari M 2008 *J. Alloys Compd.* **461** 360
- [25] Yasukawa M, Kono T, Ueda K, Yanagi H, Hosono H 2010 *Mater. Sci. Eng. B* **173** 29
- [26] Echternach P M, Gershenson M E, Bozler H M 1993 *Phys. Rev. B* **47** 13659
- [27] Yeh S S, Lin J J, Jing X, Zhang D 2005 *Phys. Rev. B* **72** 024204
- [28] Il'in K S, Ptitsina N G, Sergeev A V, Gol Tsman G N, Gershenson M E, Karasik B S, Pechen E V, Krasnosvobodtsev S I 1998 *Phys. Rev. B* **57** 15623
- [29] Gao Z H, Wang Z X, Hou D Y, Liu X D, Li Z Q 2022 *J. Appl. Phys.* **131** 065109
- [30] Altshuler B L, Khmel'Nitzkii D, Larkin A I, Lee P A 1980 *Phys. Rev. B* **22** 5142
- [31] Altshuler B L, Aronov A G, Lee P A 1980 *Phys. Rev. Lett.* **44** 1288
- [32] Abrahams E, Anderson P W, Licciardello D C, Ramakrishnan T V 1979 *Phys. Rev. Lett.* **42** 673
- [33] Lee P A, Ramakrishnan T V 1985 *Rev. Mod. Phys.* **57** 287
- [34] Fukuyama H, Hoshino K 1981 *J. Phys. Soc. Jpn.* **50** 2131
- [35] Kawabata A 1980 *Solid State Commun.* **34** 431
- [36] Kawabata A 1980 *J. Phys. Soc. Jpn.* **49** 628
- [37] Wu C Y, Lin J J 1994 *Phys. Rev. B* **50** 385
- [38] Lin J J 2000 *Physica B* **279** 191
- [39] Lin J J, Bird J P 2002 *J. Phys. Condensed Matter* **14** R501
- [40] Kondo J 1964 *Prog. Theor. Phys.* **32** 37

- [41] Hewson A C 1997 *The Kondo Problem to Heavy Fermions* (Cambridge: Cambridge University Press) pp38–47
- [42] Xue H X, Hong Y P, Li C J, Meng J C, Li Y C, Liu K J, Liu M R, Jiang W M, Zhang Z, He L, Dou R F, Xiong C M, Nie J C 2018 *Phys. Rev. B* **98** 085305
- [43] Das S, Rastogi A, Wu L J, Zheng J C, Hossain Z, Zhu Y M, Budhani R C 2014 *Phys. Rev. B* **90** 081107
- [44] Lee M, Williams J R, Zhang S P, Frisbie C D, Goldhaber-Gordon D 2011 *Phys. Rev. Lett.* **107** 256601
- [45] Beloborodov I S, Efetov K B, Lopatin A V, Vinokur V M 2003 *Phys. Rev. Lett.* **91** 246801
- [46] Efetov K B, Tschersich A 2003 *Phys. Rev. B* **67** 174205
- [47] Beloborodov I S, Lopatin A V, Vinokur V M, Efetov K B 2007 *Rev. Mod. Phys.* **79** 469
- [48] Kharitonov M Y, Efetov K B 2007 *Phys. Rev. Lett.* **99** 056803
- [49] Kharitonov M Y, Efetov K B 2008 *Phys. Rev. B* **77** 045116
- [50] Zhang Y J, Li Z Q, Lin J J 2011 *Phys. Rev. B* **84** 052202
- [51] Wu Y N, Wei Y F, Li Z Q, Lin J J 2015 *Phys. Rev. B* **91** 104201
- [52] Rotkina L, Oh S, Eckstein J N, Rotkin S V 2005 *Phys. Rev. B* **72** 233407
- [53] Achatz P, Gajewski W, Bustarret E, Marcenat C, Piqueret R, Chapelier C, Dubouchet T, Williams O A, Haenen K, Garrido J A, Stutzmann M 2009 *Phys. Rev. B* **79** 201203
- [54] Sun Y C, Yeh S S, Lin J J 2010 *Phys. Rev. B* **82** 054203
- [55] Sachser R, Porrati F, Schwalb C H, Huth M 2011 *Phys. Rev. Lett.* **107** 206803
- [56] Yang Y, Zhang Y J, Liu X D, Li Z Q 2012 *Appl. Phys. Lett.* **100** 262101
- [57] Zheng B, He Z H, Li Z Q 2019 *Phys. Status Solidi Rapid Res. Lett.* **13** 1900123

# Low-temperature electrical transport properties of La doped BaSnO<sub>3</sub> films<sup>\*</sup>

Yang Jian      Gao Kuang-Hong      Li Zhi-Qing<sup>†</sup>

(Tianjin Key Laboratory of Low Dimensional Materials Physics and Preparing Technology, School of Science, Tianjin University, Tianjin 300350, China)

( Received 2 July 2023; revised manuscript received 2 August 2023 )

## Abstract

A series of Ba<sub>0.94</sub>La<sub>0.06</sub>SnO<sub>3</sub> thin films are deposited on MgO(001) single crystal substrates by RF magnetron sputtering method, and their structure and electrical transport properties are systematically investigated. All films reveal degenerate semiconductor (metal) characteristics in electrical transport properties. In the high-temperature region ( $T > T_{\min}$ , where  $T_{\min}$  is the temperature at which the resistivity reaches a minimum value), the resistivity of each film increases with temperature, and exhibits a linear relationship with the square of the temperature. In the low-temperature region ( $T < T_{\min}$ ), the resistivity increases with decreasing temperature and varies linearly with  $\ln T$ . This temperature dependent behavior of resistivity cannot be explained by the general electron-electron interaction or weak localization effects in homogeneous disordered conductors and nor by Kondo effect. After quantitative analysis, it is found that the  $\ln T$  behavior of resistivity at low temperatures can be explained by the electron-electron Coulomb interaction effect in the presence of granularity. In addition, it is found that the Hall coefficient  $R_H$  also varies linearly with  $\ln T$  for the Ba<sub>0.94</sub>La<sub>0.06</sub>SnO<sub>3</sub> film, which also quantitatively accords with the theoretical prediction of the electron-electron Coulomb interaction effects in the granular metals. The results of cross-section high-resolution transmission electron microscope indicate that although the films have epitaxial structures as a whole, there are many strip-shaped amorphous regions in films, which makes the films have electrical transport properties similar to those of metal granular films. Our results provide strong support for the validity of the theory concerning the effects of Coulomb interaction on the conductivity and Hall coefficient in granular metals.

**Keywords:** transparent conductive oxide, granular metals, electron-electron interaction effect, electrical transport properties

**PACS:** 73.50.-h, 72.15.Qm, 73.20.Fz, 72.10.-d

**DOI:** 10.7498/aps.72.20231082

<sup>\*</sup> Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 12174282).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: zhiqingli@tju.edu.cn

## La掺杂BaSnO<sub>3</sub>薄膜的低温电输运性质

杨健 高矿红 李志青

## Low-temperature electrical transport properties of La doped BaSnO<sub>3</sub> films

Yang Jian Gao Kuang-Hong Li Zhi-Qing

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 72, 227301 (2023) DOI: 10.7498/aps.72.20231082

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.72.20231082>

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

## 您可能感兴趣的其他文章

### Articles you may be interested in

一种具有减反射性能的Cu<sub>2</sub>ZnSnS<sub>4</sub>太阳能电池透明导电氧化物薄膜

Transparent conductive oxide film with antireflective properties for Cu<sub>2</sub>ZnSnS<sub>4</sub> solar cells

物理学报. 2020, 69(23): 237801 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200897>

MnTe单晶薄膜的外延制备、本征点缺陷结构及电输运优化

epitaxial growth, intrinsic point defects and electronic transport optimization of MnTe films

物理学报. 2022, 71(13): 137102 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20212350>

石墨烯/Bi<sub>0.5</sub>Sb<sub>1.5</sub>Te<sub>3</sub>柔性热电薄膜及其面内散热器件的设计制备与性能评价

Design, fabrication and performance evaluation of graphene/Bi<sub>0.5</sub>Sb<sub>1.5</sub>Te<sub>3</sub> flexible thermoelectric films and in-plane heat dissipation devices

物理学报. 2022, 71(15): 157301 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220358>

PbBi<sub>3</sub>低温合金薄膜的制备和超导性质

Structural and superconducting properties of low-temperature ultrathin PbBi<sub>3</sub> films

物理学报. 2022, 71(12): 127401 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220050>

低能氨离子/基团扩散对铟锡氧化物薄膜电学性质的影响规律

Influence of low-energy ammonia ion/group diffusion on electrical properties of indium tin oxide film

物理学报. 2020, 69(23): 236801 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200860>

径向压缩碳纳米管的电子输运性质

Electron transport properties of carbon nanotubes with radial compression deformation

物理学报. 2022, 71(2): 027301 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211370>