



Universiteit  
Leiden  
The Netherlands

## Growth and Transport Properties of [Rare Earth]TiO<sub>3</sub>/SrTiO<sub>3</sub> Interfaces

Lebedev, N.

### Citation

Lebedev, N. (2020, December 1). *Growth and Transport Properties of [Rare Earth]TiO<sub>3</sub>/SrTiO<sub>3</sub> Interfaces*. *Casimir PhD Series*. Retrieved from <https://hdl.handle.net/1887/138477>

Version: Publisher's Version

License: [Licence agreement concerning inclusion of doctoral thesis in the Institutional Repository of the University of Leiden](#)

Downloaded from: <https://hdl.handle.net/1887/138477>

**Note:** To cite this publication please use the final published version (if applicable).

Cover Page



Universiteit Leiden



The handle <http://hdl.handle.net/1887/138477> holds various files of this Leiden University dissertation.

**Author:** Lebedev, N.

**Title:** Growth and Transport Properties of [Rare Earth]TiO<sub>3</sub>/SrTiO<sub>3</sub> Interfaces

**Issue Date:** 2020-12-01

# Samenvatting

Onder bepaalde omstandigheden kan het grensvlak tussen twee isolerende oxides zelf metallisch worden. Het electronensysteem is dan tweedimensionaal, en vormt een intrigerende onderzoeksobject. De studie in dit proefschrift richt zich op de magnetotransport eigenschappen van grensvlakken gevormd tussen een één-kristallijn, isolerend, en niet-magnetisch substraat, SrTiO<sub>3</sub> (STO), en een ander isolerend oxide, met een soortgelijke kristalstructuur, dat in de vorm van een dunne film op het substraat gedeponereerd wordt. Dat tweede materiaal bevat bijna steeds magnetische ionen. Een bijzondere eigenschap van STO is dat de grote diëlectrische constante het materiaal zeer geschikt maakt om als 'backgate' te dienen, waardoor met een elektrische spanning het aantal ladingsdragers aan het grensvlak gecontroleerd veranderd kan worden.

De dunne films die als bouwblok voor het grensvlak dienen waren perovskiet materialen, gelijkend op STO, namelijk het kanonieke materiaal LaAlO<sub>3</sub> (LAO) (isolierend en niet magnetisch), en de zeldzame-aard titanaten GdTiO<sub>3</sub> (GTO), Eu<sub>1-x</sub>La<sub>x</sub>TiO<sub>3</sub> (x = 0 en 0.1), en LaTiO<sub>3</sub>, die allemaal magnetisch zijn. De belangrijkste vraag die dit proefschrift wilde beantwoorden is of de geleidingselectronen aan het grensvlak magnetisch kunnen worden, dat wil zeggen spin-gepolariseerd, door het gebruik van magnetische ionen in de dunne films. Bovendien treedt in verschillende van de bestudeerde grensvlakken bij lage temperaturen supergeleiding op, en ook dat fenomeen kon bestudeerd worden.

De depositie van de dunne films werd gedaan met 'pulsed laser depositie' (PLD). Niet alle materialen zijn hiermee gemakkelijk reproduceerbaar te groeien, maar desondanks, kon een reeks van verschijnselen succesvol bestudeerd worden. Daaronder waren het anomale Hall effect (AHE), dat iets zegt over de aanwezigheid van magnetisme, anomaal gedrag van de magnetowerstand, niet-uniforme supergeleiding, magnetische hysteresis, en aanwijzingen voor het Kondo effect, gekenmerkt door een weerstandsminimum bij lage temperaturen). Hieronder worden de nieuw verkregen inzichten op een rijtje gezet, Het generieke referentiekader voor alle waarnemingen is dat de grensvlakgeleiding door één dan wel door twee electronenbanden tot stand komt. De gate-spanning bepaalt de positie van de Fermi energie in de banden, en kan in het bijzonder het systeem van

het één-band naar het twee-band regime brengen, door extra ladingsdragers naar het grensvlak te trekken. De spanning waarbij de tweede band aangeschakeld wordt heet het Lifshitz-punt.

### Het Anomale Hall Effect in magnetisch gedoopte oxide grensvlakken

Het optreden van het AHE is in verschillende perovskiet-oxide gebaseerde grensvlakken waargenomen. Het belang van het effect is dat het over het algemeen gezien wordt als de handtekening van de aanwezigheid van ferromagnetisme (lange-afstand magnetische ordening). Er zijn verschillende mechanismes voorgesteld die tot een AHE kunnen leiden, en de neiging bestaat om een bepaalde waarneming aan één mechanisme in het bijzonder te verbinden, ondanks het feit dat het effect onder alle omstandigheden een complex samenspel van factoren is.

Om het AHE te bestuderen kozen we voor een 'delta-doping' systeem van de vorm LAO/X/STO waarbij X een magnetisch oxide is van maar een paar atoomlagen dik, hetzij GTO of  $\text{Eu}_{1-x}\text{La}_x\text{TiO}_3$  met  $x = 0$  of  $0.1$ . Het bleek moeilijk te zijn de GTO lagen te groeien. We vonden sterke vermenging in LAO/GTO/STO, waardoor het eerder  $\text{La}_{1-x}\text{Gd}_x\text{AlO}_3/\text{Gd}_{1-y}\text{La}_y\text{Ti}_{1-z}\text{Al}_z\text{O}_3/\text{STO}$  werd (LGAO/GLTAO/STO), hoewel de laag nog steeds kristallijn was. Zoals besproken in hoofdstuk 3, vertonen deze preparaten een AHE, afhankelijk van de aangelegde gate spanning, en wel alleen in het twee-band regime net voorbij het Lifshitz punt, en bij lage temperaturen. Er werden twee methodes gebruikt voor de data analyse. De eerste was al in eerdere studies van oxide grensvlakken gebruikt, de tweede was een aanpassing aan AHE analyse in standaard situaties. Ze geven vergelijkbare resultaten, en laten zien dat de nabijheid van het Lifshitz punt belangrijk is, waarschijnlijk doordat de spin baan koppeling daar sterk is. Een belangrijk en onverwacht resultaat is dat we geen indicaties van ferromagnetisme vonden. Het impliceert dat het systeem eerder superparamagnetisch of para-magnetisch is.

Een vervolgstudie van het AHE in LAO/ $\text{EuTiO}_3$ /STO (LAO/ETO/STO), LAO/ $\text{Eu}_{0.9}\text{La}_{0.1}\text{TiO}_3$ /STO (LAO/ELTO/STO), en LAO/STO structuren wordt beschreven in hoofdstuk 6. We vonden geen AHE in samples waar delta-doping afwezig was, en een sterker AHE met toenemende Eu concentratie. Hoewel sommige studies argumenteren dat externe magnetische doping geen onderdeel van het mechanisme voor het AHE is, vinden wij die doping wel van belang in LAO/ETO/STO. Een intrigerende observatie is dat schalingsanalyse van de geleiding en de Hall geleiding niet wijst in de richting van zogenaamde skew-scattering, wat juist vaak aangenomen wordt het belangrijkste mechanisme te zijn in de meeste structuren.

Een percolatie-gedomineerde supergeleidende overgang op het grensvlak tussen een amorfe LTO film en een STO substraat

De belangrijkste grensvlakken in dit proefschrift zijn die van diverse perovskiet titanaten, gedeponereerd op STO.  $\text{LaTiO}_3$  is de verbinding die geen magnetische xeldzame aard ionen bevat, en dient daarom als niet-magnetisch referentiesysteem. De LTO lagen die we groeiden bleken amorf te zijn, niet kristallijn, en dat levert ook interessante grensvlak systemen voor onderzoek, ondanks het ietwat ongecontroleerde amorfisatie proces. Het systeem vertoont de gebruikelijke en typerende eigenschappen van deze oxide grensvlakken, namelijk tweebanden gedrag en de aanwezigheid van een Lifshitz punt. Wat dat betreft lijkt het amorfe systeem niet verschillend te zijn van een kristallijn systeem. Het vertoont echter een sterk lineaire magnetoweerstand en een percolatie-gedomineerde supergeleidende overgang, die op een sterk inhomogeen grensvlak wijzen. Om dat te beschrijven wordt een weerstandsmodel gebruikt, waarmee de waarnemingen goed beschreven kunnen worden. Het vermoeden is dat variaties in de zuurstof stoichiometrie de reden zijn voor de gevonden inhomogeniteiten.

De co-existentie van supergeleiding en magnetisme op oxide grensvlakken

De mogelijke co-existentie van supergeleiding en magnetisme in geleidende oxide grensvlakken is nog steeds onderwerp van heftige discussie. De eerste waarnemingen van de aanwezigheid van magnetisme in de supergeleidende toestand wekten grote interesse. In de magnetoweerstand werd hysteresis gezien bij temperaturen beneden die van de supergeleidende overgang, wat besproken werd in termen van magnetisme. Het niet-triviale gedrag, wat niet eenvoudigweg kon worden toegeschreven aan magnetisatie-dynamica van de ferromagneet, werd verklaard met een ingewikkeld model van een supergeleider in aanraking met complexe magnetische textuur. Latere studies beargumenteerden dat het feit dat de magnetoweerstand afhankelijk is van de snelheid waarmee het magneetveld verandert (de 'sweep rate'), eerder op magnetocalorische dan op magnetische effecten wijst. Hoewel zo'n effect zeker een rol kan spelen, vinden we in deze studie dat de magnetische hysteresis ook een teken van een inhomogene supergeleidende toestand kan zijn. In hoofdstuk 5 worden twee grensvlak systemen met verschillende types wanorde bestudeerd. Het ene is het grensvlak tussen amorf LTO en kristallijn STO, bekend uit hoofdstuk 4. Het andere is het kristallijne maar sterk gemengde systeem LGAO/GLTAO/STO uit hoofdstuk 3. Het eerste systeem vertoont wanorde vanwege niet-uniforme zuurstofinhoud; in het tweede wordt wanorde veroorzaakt door magnetische atomen die supergeleiding onderdrukken en daarmee zwakke schakels creëren tussen supergeleidende gebieden. Het amorfe systeem vertoont inhomogeniteiten over grote lengteschalen; LGAO/GLTAO/STO kan beschreven

worden als een twee-niveau systeem. Er zijn verschillen, maar beide systemen vertonen magnetoweerstands hysteresis bij lage temperaturen, die begrepen kan worden met modellen voor inhomogene supergeleiders zonder gebruik te maken van ferromagnetisme.

#### Een mogelijk Kondo effect in oxide grensvlakken

Vaak wordt in de temperatuurafhankelijkheid van de vierkantsweerstand van oxide grensvlakken een minimum waargenomen. Gedurende lange tijd werd dit opgevat als een sterke aanwijzing voor een Kondo effect, waarbij magnetische momenten die aanwezig zijn aan of in het grensvlak, afgeschermd worden door geleidingselectronen. Het kunnen veranderen van een regime met het AHE (en dus ferromagnetisme) naar dit regime werd beschouwd als een verdere aanwijzing voor een Kondo effect. Studies van de drukafhankelijkheid van het weerstands-gedrag leverden een andere interpretatie, maar werden over het hoofd gezien in later werk. Toch tonen gedetailleerde experimentele en theoretische studies van de temperatuur- en gate-afhankelijkheid van de magnetoweerstand dat het Kondo beeld niet overeen stemt met de experimenten

De hier gepresenteerde studie gaat ook op die vraag in, en concentreert zich op de temperatuurafhankelijke vierkantsweerstand van het grensvlak. In hoofdstuk 6 laten we zien dat de verschillende grensvlak systemen een minimum laten zien dat afhangt van de aangelegde gate spanning. Uit een gedetailleerd onderzoek van de magnetotransport eigenschappen blijkt dat het weerstandsminimum ongevoelig is voor magnetische doping, wat niet verwacht wordt in het Kondo beeld. Wel wordt het AHE waargenomen, zoals eerder beschreven. Het blijkt dat andere mechanismes zoals de afhankelijkheid van de permittiviteit van STO van temperatuur en elektrisch veld, ladingsvangst aan het grensvlak, het gedrag van de ladingsdichtheden en mobiliteiten, en spin-onafhankelijke verstrooiingsmechanismes voldoende zijn om de waargenomen minima te verklaren. Het optreden van het Kondo effect is niet uitgesloten, maar dan wordt het gemaskeerd door deze andere effecten. Deze beschrijving werpt mogelijk nieuw licht op het soms verwarrende gedrag van de magneto-electrische transporteigenschappen van oxide grensvlakken.



