

06,13

## Электро- и магнетотранспорт в области межфазной границы $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$

© Ю.А. Бойков, В.А. Данилов, И.Т. Серенков, В.И. Сахаров, М.П. Волков

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН,  
Санкт-Петербург, Россия

E-mail: yu.boikov@mail.ioffe.ru

(Поступила в Редакцию 12 декабря 2017 г.)

Сопоставление каналов спектров рассеяния ионов средних энергий, визуализированных для гетероструктур  $\text{LaAlO}_3/(001)\text{SrTiO}_3$  с толщиной слоя алюмината лантана от одной до шести элементарных ячеек, свидетельствует о том, что слой алюмината лантана растет когерентно на поверхности  $\text{TiO}_2$  терминированной подложки из титаната стронция. Сопротивление межфазной границы в гетероструктуре с толщиной слоя  $\text{LaAlO}_3$  в 6 элементарных ячеек уменьшалось с температурой. При  $T < 100$  К положительное магнетосопротивление и холловская подвижность электронов резко возрастали с понижением температуры.

Финансовая поддержка данного исследования была частично получена от проектов РФФИ № 15-02-03996а и № 15-02-99476а и из Программы Президиума РАН „Наноструктуры“, подпрограмма № 1.

DOI: 10.21883/FTT.2018.06.46004.346

### 1. Введение

Появление наноразмерной прослойки квазидвумерного электронного газа на межфазной границе между  $\text{TiO}_2$  терминированной подложкой из титаната стронция и выращенной на ее поверхности пленкой алюмината лантана индуцировало проведение активных исследований состава, структуры и электронных параметров гетероструктур  $\text{LaAlO}_3/(001)\text{SrTiO}_3$  (LAO/STO) [1–3].

Было показано [1], что проводимость межфазной границы между двух указанных выше широкозонных диэлектриков зависит от давления кислорода ( $P_{\text{O}_2}$ ) в ростовой камере в процессе формирования гетероструктуры. Высокой проводимостью обладают межфазные границы в гетероструктурах с толщиной ( $d$ ) слоя LAO в четыре и более элементарных ячеек (у. с.), сформированных при низком ( $P_{\text{O}_2} \leq 10^{-4}$  mbar) давлении кислорода. Проводимость таких гетероструктур не исчезает [4] после их термообработки ( $T \approx 600^\circ\text{C}$ ) при относительно высоком ( $\sim 300$  mbar) давлении кислорода.

Катастрофа полярности [1], высокая концентрация кислородных вакансий [3] и катионные замещения ( $\text{La} \leftrightarrow \text{Sr}$ ) [4] в области межфазной границы отмечались в качестве возможных механизмов, влияющих на проводимость последней. Механические напряжения, возникающие вследствие рассогласования в параметрах кристаллических решеток алюмината лантана и титаната стронция, могут также оказывать существенное влияние на зарядовое состояние межфазной границы в гетероструктуре LAO/STO [5].

### 2. Эксперимент

Пленки LAO с толщиной до шести элементарных ячеек были сформированы методом лазерного испарения.

Технологические условия формирования пленок LAO на поверхности  $\text{TiO}_2$  терминированных подложек (100)STO детализированы в [4].

Данные о стехиометрии и структуре межфазных границ также, как и оценки степени покрытия поверхности подложки слоем алюмината лантана в сформированных гетероструктурах, были получены с использованием спектроскопии рассеяния ионов средних энергий (MEIS,  $\text{He}^+$ ,  $E = 96$  keV), каналовой и рэндом (квазислучайный) спектры. При измерении каналов спектров пучок ионов гелия был направлен вдоль нормали к плоскости подложки, т.е. параллельно [001]STO, а при визуализации рэндом спектров пучок ионов гелия был отклонен от нормали к плоскости подложки на 8 градусов. Важной отличительной особенностью спектроскопии MEIS является аномально высокое разрешение состава по толщине.

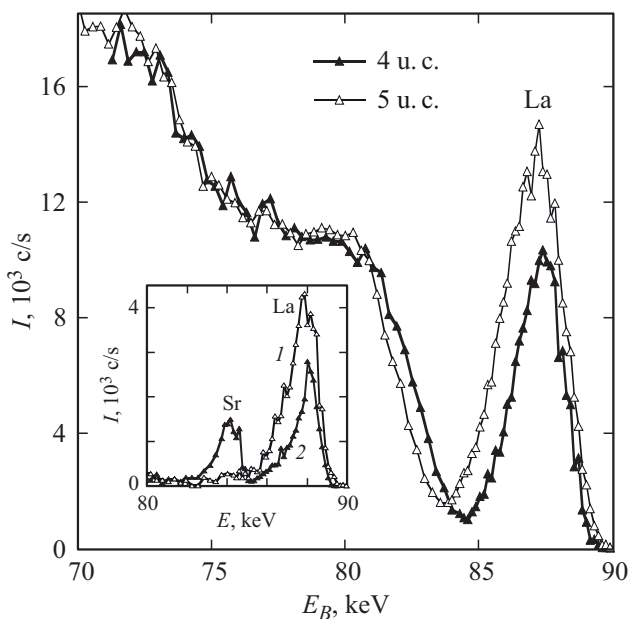
Температурные зависимости сопротивления ( $R$ ) выращенных гетероструктур были измерены в конфигурации van der Pauw в магнитном поле  $H$  и без него ( $\mu_0 H$  до 14 Т). Магнитное поле было направлено перпендикулярно плоскости подложки.

### 3. Результаты и их обсуждение

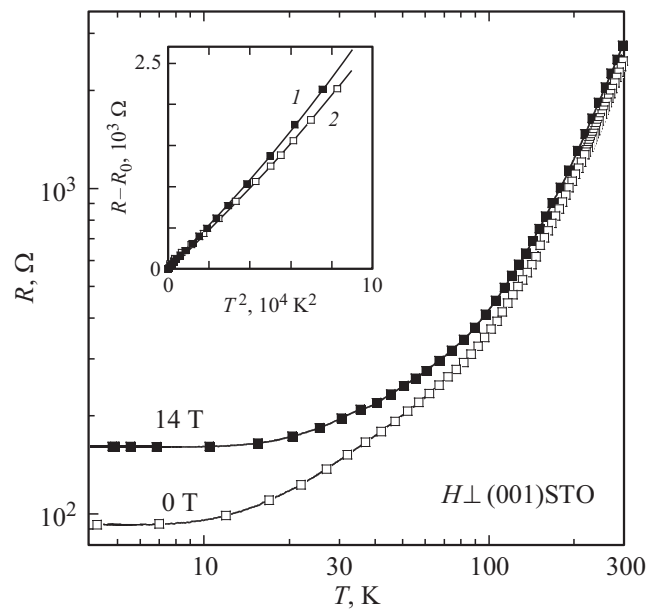
Спектры MEIS, измеренные в режиме рэндом для гетероструктур LAO/STO с толщиной ( $d$ ) слоя LAO в 4 у.с. и в 5 у.с., показаны на рис. 1. При рассеянии на тяжелых атомах лантана ионы  $\text{He}^+$  теряют меньше энергии, чем при рассеянии на легких атомах (Sr, Ti, Al и т.д.), поэтому пик лантана на визуализированных спектрах четко разрешается. Интеграл под пиком лантана пропорционален количеству атомов La в гетероструктуре, а полуширина пика зависит от их распределения по ее толщине.

Каналовые спектры MEIS, визуализированные для гетероструктур LAO/STO с толщиной слоя алюмината лантана в одну и в четыре элементарные ячейки, показаны на вставке на рис. 1. На спектре, полученном для гетероструктуры LAO/STO с толщиной слоя LAO в одну элементарную ячейку четко видны пики лантана и стронция. С увеличением толщины слоя LAO до четырех элементарных ячеек интенсивность пика лантана возрастала, а интенсивность пика стронция резко деградировала. Уменьшение интенсивности пика стронция на каналовом спектре с увеличением  $d$  свидетельствует о том, что слой LAO растет когерентно на поверхности STO, причем атомы лантана находятся в тех же кристаллографических рядах, что и атомы Sr, и эффективно их экранируют от участия в рассеянии ионов  $He^+$ .

Проведенный в [4] сравнительный анализ экспериментальных спектров MEIS, визуализированных в режиме рэндом, с результатами моделирования [6] свидетельствует о катионных замещениях ( $La \leftrightarrow Sr$ ), происходящих в процессе формирования гетероструктуры, причем атомы лантана неоднородно распределяются в плоскости подложки. Покрытие свободной поверхности гетероструктуры слоем LAO возрастает с увеличением толщины осажденного слоя LAO, однако, даже при  $d = 6$  у.с. слой алюмината лантана в LAO/STO не полностью покрывает свободную поверхность гетероструктуры. Следует отметить, что в результате катионных замещений в прослойке подложки STO, прилегающей к границе с осажденной пленкой LAO, присутствовало значительное количество атомов лантана.



**Рис. 1.** Спектры MEIS, визуализированные в режиме рэндом для гетероструктур LAO/STO с толщиной слоя алюмината лантана в 4 у.с. и 5 у.с. На вставке показаны каналовые спектры MEIS, измеренные для гетероструктур LAO/STO с толщиной слоя LAO в одну (2) и в четыре (1) элементарные ячейки.



**Рис. 2.** Температурные зависимости сопротивления межфазной границы в гетероструктуре LAO/STO ( $d = 6$  у.с.), измеренные при  $\mu_0 H = 0$  и  $\mu_0 H = 14$  Т. Зависимости  $(R - R_0) vs T^2$ , для той же гетероструктуры в магнитном поле (1) и без него (2) показаны на вставке.

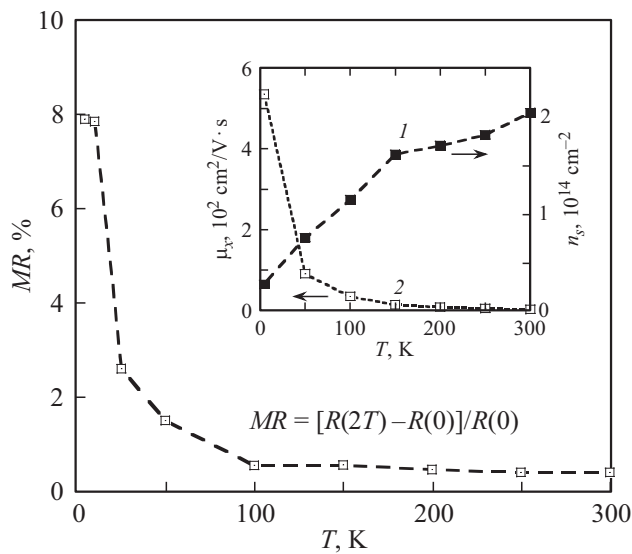
На интенсивность катионных замещений в гетероструктуре существенное влияние могут оказывать неоднородные механические напряжения в подложке и ступени на ее поверхности с высотой в одну элементарную ячейку, включения  $SrCO_3$  [7] и двухслойные пакеты из окиси титана [8].

Замещение атомов стронция в STO на атомы лантана из формируемой пленки LAO приводит к увеличению концентрации электронов в приповерхностном слое гетероструктуры. Вклад электронов, появившихся в результате катионных замещений, в латеральную проводимость межфазной границы в гетероструктуре LAO/STO зависит как от количества атомов лантана, диффундировавших в подложку, так и от их распределения в плоскости подложки.

На рис. 2 приведены измеренные в магнитном поле и без него температурные зависимости сопротивления гетероструктуры LAO/STO с толщиной слоя алюмината лантана в 6 у.с., а на рис. 3 — температурная зависимость магнетосопротивления межфазной границы той же гетероструктуры при  $\mu_0 H = 3$  Т. С понижением температуры латеральное сопротивление межфазной границы в гетероструктуре LAO/STO уменьшалось, причем наиболее резкое падение  $R$  наблюдалось в интервале 100–300 К. Визуализированные температурные зависимости  $R$  хорошо экстраполировались соотношением

$$R = R_0 + R_1 T^2, \tag{1}$$

где  $R_0$  и  $R_1$  независимые от температуры параметры.  $R_0$  зависело от качества структуры межфазной границы,



**Рис. 3.** Температурные зависимости магнетосопротивления межфазной границы в гетероструктуре LAO/STO ( $d = 6$  н.с.,  $\mu_0 H = 3$  Т). Температурные зависимости концентрации электронов  $n_s$  и их подвижности  $\mu_x$  показаны на вставке (кривые 1 и 2 соответственно).

а появление квадратично зависящего от температуры второго слагаемого в правой части соотношения (1) может быть обусловлено электрон-электронным взаимодействием [9]. Визуализированные при  $\mu_0 H = 0$  и  $\mu_0 H = 14T$  зависимости  $(R - R_0)_{vs} \cdot T^2$  приведены на вставке на рис. 2. Отношение  $R_1/R_0$  имело величину  $2.7 \cdot 10^{-4} K^{-2}$  и по порядку величины соответствовало аналогичным данным для проводящих манганитов [10].

При комнатной температуре магнитное поле индуцировало незначительное увеличение сопротивления межфазной границы (рис. 2). С понижением температуры отклик сопротивления гетероструктуры на магнитное поле усиливался, а при  $T < 100$  К наблюдалось резкое увеличение ее положительного магнетосопротивления ( $MR$ ) (рис. 3). В интервале температуры 4.2–300 К концентрация электронов  $n_s$  в области межфазной границы находилась в пределах  $(0.15-2) \cdot 10^{14} cm^{-2}$  (оценка получена с использованием холловских данных). Холловская подвижность ( $\mu_x$ ) электронов резко возрастала при температурах ниже 100 К (вставка на рис. 3). Следует отметить, что концентрационные неоднородности в области межфазной границы в гетероструктуре LAO/STO могут существенно влиять на величину  $MR$  и на оценки  $n_s$  и  $\mu_x$  [11,12].

Титанат стронция является „начинающим“ сегнетоэлектриком, спонтанная поляризация ( $P_S$ ) в котором не наблюдается вплоть до сверхнизких температур [13].  $P_S$  в кристаллах STO может быть, однако, индуцирована электрическим полем и/или механическими напряжениями [13,14]. Появление спонтанной поляризации в на-

норазмерных, механически напряженных образцах STO наблюдалось вплоть до комнатной температуры [15].

Сжимающие механические напряжения в прослойке подложки, прилегающей к межфазной границе в гетероструктуре LAO/STO, возникают вследствие существенной ( $\sim 2.9\%$ ) разницы в параметрах кристаллических решеток LAO и STO. Увеличение толщины слоя LAO, когерентно выращенного на поверхности титаната стронция, индуцирует возрастание уровня механических напряжений в приповерхностном слое STO, что при толщине слоя LAO, превышающей „критическую“, должно приводить к появлению блоков с отличной от нуля спонтанной поляризации в приповерхностном слое подложки. Присутствие положительно заряженных вакансий кислорода в термообработанной в вакууме подложке STO [3], так же как и наличие электронов в прослойке гетероструктуры со стороны свободной поверхности, способствуют четкой преимущественной ориентации  $P_S$  в сегнетоэлектрических блоках (перпендикулярно плоскости межфазной границы). Резкое увеличение положительного магнетосопротивления и холловской подвижности электронов наблюдалось при  $T \sim T_S$  ( $T_S$  — температура спонтанного искажения кристаллической решетки титаната стронция [16]). С понижением температуры объемная доля сегнетоэлектрической фазы в области межфазной границы в гетероструктуре LAO/STO увеличивалась, что при  $T < 100$  К сопровождалось увеличением  $MR$  и  $\mu_x$ .

#### 4. Заключение

Проводимость межфазных границ в гетероструктурах LAO/STO зависит от индуцированной механическими напряжениями спонтанной поляризации в приповерхностном слое подложки. Наличие положительно заряженных вакансий кислорода в STO и появившихся в результате катионных замещений ( $La \leftrightarrow Sr$ ) электронов в приповерхностном слое гетероструктуры способствуют высокой проводимости межфазной границы в гетероструктурах LAO/STO. Наблюдавшееся резкое увеличение сопротивления указанных границ в магнитном поле обусловлено в значительной степени неоднородностью их латеральной проводимости.

#### Список литературы

- [1] A. Ohtomo, H.Y. Hwang. Nature (London) **427**, 423 (2004).
- [2] S. Thiel, G. Hammerl, A. Schmehl, C.W. Schneider, J. Mannhart. Science **313**, 1942 (2006).
- [3] W. Siemons, G. Koster, H. Yamamoto, W.A. Harrison, G. Lucovsky, T.H. Geballe, D.H.A. Blank, M.R. Beasley. Phys. Rev. Lett. **98**, 196802 (2007).
- [4] A.S. Kalabukhov, Yu.A. Boikov, I.T. Serenkov, V.I. Sakharov, V.N. Popok, R. Gunnarsson, J. Börjesson, N. Ljustina, E. Olsson, D. Winkler, T. Claeson. Phys. Rev. Lett. **103**, 146101 (2009).

- [5] Ю.А. Бойков, И.Т. Серенков, В.И. Сахаров, В.А. Данилов. ФТТ **60**, 171 (2018).
- [6] V.V. Afrosimov, R.N. Ilin, S.F. Karmanenko, A.A. Melkov, V.I. Sakharov, I.T. Serenkov. Thin Solid Films **146**, 492 (2005).
- [7] F. Voigts, Chr. Argirusis, W. Maus-Friedrichs. Surf. Interface Anal. **44**, 301 (2012).
- [8] Yu.A. Boikov, I.T. Serenkov, V.I. Sakharov, A.S. Kalabukhov, P.P. Aurino, D. Winkler, T. Claeson. EPL **102**, 56003 (2013).
- [9] P. Schiffer, A.P. Ramirez, W. Bao, S-W. Cheong. Phys. Rev. Lett. **75**, 3336 (1995).
- [10] G.J. Snyder, R. Hiskes, S. DiCarolis, M.R. Beasley, T.H. Geballe. Phys. Rev. B **53**, 14434 (1996).
- [11] S.A. Solin, T. Thio, D.R. Hines, J.J. Heremans. Science **289**, 1530 (2000).
- [12] A. Kalabukhov, T. Claeson, P.P. Aurino, R. Gunnarsson, D. Winkler, E. Olsson, N. Tuzla, J. Borjesson, Y. Cao, L. Nyborg, Yu.A. Boikov, I.T. Serenkov, V.I. Sakharov, M.P. Volkov. Jpn. J. Appl. Phys. **51**, 11PG10 (2012).
- [13] K.A. Müller, H. Burkard. Phys. Rev. B **19**, 3593 (1979).
- [14] J.H. Haeni, P. Irvin, W. Chang, R. Uecker, P. Reiche, Y.L. Li, S. Choudhury, W. Tian, M.E. Hawley, B. Craigo, A.K. Tagantsev, X.Q. Pan, S.K. Streiffer, L.Q. Chen, S.W. Kirchoefer, J. Levy, D.G. Schlom. Nature London **430**, 758 (2004).
- [15] D. Lee, H. Lu, Y. Gu, S.-Y. Choi, S.-D. Li, S. Ryu, T.R. Paudel, K. Song, E. Mikheev, S. Lee, S. Stemmer, D.A. Tenne, S.H. Oh, E.Y. Tsybal, X. Wu. Science **349**, 6254 (2015).
- [16] F.W. Lytle. J. Appl. Phys. **35**, 2212 (1964).