

УДК 537.226

## ДИНАМИКА ФОТОСТИМУЛИРОВАННОГО СОПРОТИВЛЕНИЯ НА ГРАНИЦЕ РАЗДЕЛА ГЕТЕРОСТРУКТУРЫ $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3/\text{LaMnO}_3$

© 2022 г. А. В. Леонтьев<sup>а</sup>, Р. Р. Загидуллин<sup>а</sup>, Д. К. Жарков<sup>а</sup>,  
Д. П. Павлов<sup>а</sup>, Р. Ф. Мамин<sup>а</sup>, \*

<sup>а</sup>Казанский физико-технический институт им. Е.К. Завойского,  
Казань, 420029 Россия

\*e-mail: mamin@kfti.knc.ru

Поступила в редакцию 30.01.2021 г.

После доработки 25.02.2021 г.

Принята к публикации 28.02.2021 г.

Исследовано влияние импульсного лазерного излучения зеленого (514 нм) и инфракрасного (1028 нм) света на электрическое сопротивление границы раздела гетероструктуры  $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3/\text{LaMnO}_3$ . Показано, что освещение вызывает увеличение сопротивления вдоль границы на 2–15% в области низких температур 80–200 К. Характерное время изменения сопротивления составляет 4–12 с. Эффект фотоиндуцированного сопротивления обнаруживается как при зеленом, так и при инфракрасном освещении, причем эффект при освещении зеленым светом значительно больше. Освещение осуществляется расфокусированным лазерным лучом, поэтому эффект не может быть связан с нагревом области границы раздела. Показано, что при одновременном освещении зеленым и инфракрасным светом эффекты складываются, т.е. наблюдается кумулятивный эффект.

**Ключевые слова:** гетероструктуры, фотостимулированные явления, сегнетоэлектрики, пленки, фотопроводимость, границы раздела, манганиты, квазидвумерная проводимость.

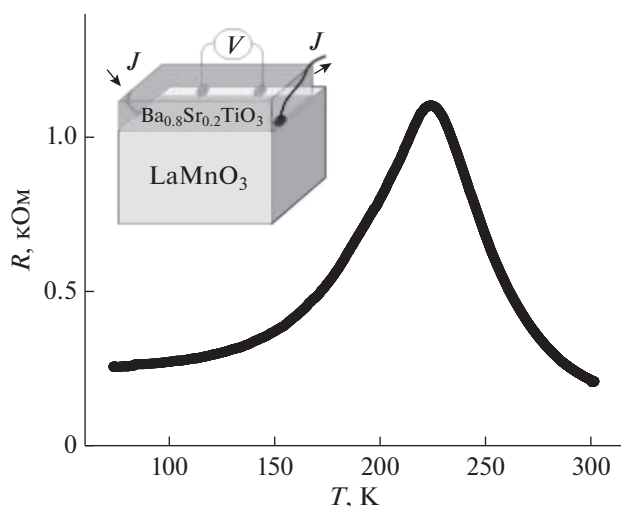
DOI: 10.31857/S1028096022010101

### ВВЕДЕНИЕ

Электронный газ с высокой подвижностью был обнаружен на границе между двумя немагнитными диэлектрическими оксидами  $\text{LaAlO}_3$  (LAO) и  $\text{SrTiO}_3$  (STO) в 2004 г. [1]. Такие гетерограницы (или гетеропереходы), состоящие из двух диэлектрических немагнитных оксидов, были всесторонне изучены [1–12]. В частности, было обнаружено, что металлическая фаза, так называемый квазидвумерный электронный газ (q2DEG), образуется в слоях STO на границе  $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$  (LAO/STO), когда количество слоев LAO больше трех [2, 3]. Было показано, что такая система переходит в сверхпроводящее состояние ниже 300 мК [4]. При исследовании свойств гетероструктуры  $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3/\text{La}_2\text{CuO}_4$  было обнаружено сверхпроводящее состояние на границе раздела с температурой перехода около 30 К [13]. Возникновение сверхпроводящего состояния в гетероструктуре  $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3/\text{La}_2\text{CuO}_4$  было подтверждено диамагнитным откликом в температурной области наблюдения сверхпроводимости. При исследовании гетероструктур  $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$  [2–12] был сделан вывод, что основным механизмом, ответственным за образование q2DEG, является электронная реконструкция зон в области границы

раздела гетероструктуры  $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3/\text{La}_2\text{CuO}_4$ , связанная с исчезновением запрещенной зоны и с переходом к металлической проводимости в области границы раздела. С тех пор q2DEG был найден в других немагнитных диэлектриках. Общим для всех них является то, что создание q2DEG происходит из-за полярной природы одного из компонентов. Также было показано, что q2DEG может образовываться на границе раздела диэлектрических оксидов, один из которых является сегнетоэлектриком [14–16]. Основным преимуществом использования сегнетоэлектриков является возможность переключать направление поляризации с перпендикулярного на параллельное на границе раздела и таким образом управлять свойствами электронной системы.

Наиболее распространенным объяснением образования q2DEG является модель так называемой “поляризационной катастрофы” [1, 12]. Одной из наиболее важных особенностей, связанных с формированием q2DEG, является локальная полярность слоев внутри плиты LAO. Для наших исследований мы выбрали гетероструктуры типа  $\text{BaTiO}_3/\text{LaMnO}_3$  (BTO/LMO), где все слои в простом электронном пределе нейтральны, но есть сегнетоэлектрическая поляризация



**Рис. 1.** Температурная зависимость сопротивления  $R$  ( $T$ ) границы раздела  $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3/\text{LaMnO}_3$  при отсутствии внешнего воздействия. Схема эксперимента представлена на вставке.

из-за смещения атомов Ti из центра октаэдра в пластине ВТО. Направление такой поляризации можно переключать внешним электрическим полем. Основываясь на расчетах зонной структуры из первых принципов, мы продемонстрировали возможность образования  $q2\text{DEG}$  на границе раздела сегнетоэлектрика ВТО и антиферромагнетика LMO [15, 16], и высокопроводящее состояние границы раздела было обнаружено в [15]. Целью настоящей работы было экспериментальное исследование влияния освещения на сопротивление гетероструктуры  $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3/\text{LaMnO}_3$ .

## МЕТОДИКА

Мы исследовали поведение электросопротивления гетероструктур, образованных при нанесении пленки сегнетоэлектрика  $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3$  (BSTO) на монокристаллы  $\text{LaMnO}_3$  (LMO). Эпитаксиальные пленки BSTO получались при реактивном распылении стехиометрических мишеней методом ВЧ-плазмы (ВЧ-распыление или метод магнетронного распыления) [15, 17] при температуре  $650^\circ\text{C}$ . Выбор этих объектов был связан с хорошо отработанными технологиями, используемыми при приготовлении каждого отдельного компонента [15]. Пленка  $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3$  толщиной 300 нм на подложке MgO имеет температуру сегнетоэлектрического перехода около 540 K [17, 18]. Мы используем пленки толщиной 350 нм, поскольку высокопроводящие свойства границ раздела меняются незначительно, начиная с определенной толщины той части гетероструктуры, которая проявляет полярные характеристики. В этом случае температура сегнетоэлектрического перехода

в такой относительно толстой пленке должна быть, по крайней мере, не ниже, чем в массивном недеформированном образце [18, 19]. Следовательно, пленка BSTO на подложке LMO будет находиться в сегнетоэлектрическом состоянии при температуре ниже комнатной.

## ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

В работе исследованы проводящие свойства гетероструктуры на основе сегнетоэлектрика и диэлектрика  $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3/\text{LaMnO}_3$ . Сопротивление границы раздела измерялось четырехзондовым методом (вставка на рис. 1) без и при освещении зеленым и инфракрасным (ИК) светом со стороны сегнетоэлектрической пленки. Расстояние между потенциальными электродами в разных экспериментах было различным. Образец помещали в криостат, продуваемый сухим газообразным азотом. Температуру образцов измеряли медь-константановой термопарой и во время измерений поддерживали с точностью  $\pm 0.3$  K. Температуру образца стабилизировали медным пальцем, с которым контактировала термопара. Облучение проводили зеленым (514 нм) и инфракрасным (1028 нм) лазерным светом при комнатной температуре.

Экспериментальные исследования в настоящей работе по наведенному фотосопротивлению основаны на системе усиленного волоконного лазера, легированного Yb, генерирующего импульсы на частоте 3 кГц с длительностью  $\sim 200$  фс и энергией  $\sim 20$  мкДж на длине волны 514 нм (2.4 эВ), а также на длине волны 1028 нм (1.2 эВ). Гауссов световой пучок диаметром 4 мм освещает всю поверхность образца между электродами. Освещение происходит расфокусированным пучком, при этом интенсивность освещения достаточно мала, следовательно, плотность энергии незначительна, и поэтому какой-либо существенный нагрев образца не может происходить [20]. Зеленый свет поглощается как пленкой, так и подложкой, инфракрасный свет также поглощается пленкой и подложкой, но он проникает в подложку LMO глубже [20]. Во всех случаях генерируются фотостимулированные носители, прежде всего в сегнетоэлектрической пленке BSTO. И во всех случаях ожидалось, что эти избыточные заряды будут вносить вклад в проводимость образца.

## РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Температурная зависимость электрического сопротивления гетероструктуры  $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3/\text{LaMnO}_3$  в темном состоянии (состояние без подсветки) показана на рис. 1. Сопротивление гетероструктуры падает с понижением температуры ниже  $\sim 230$  K, показывая высокую проводимость. Температурная зависимость сопротивления моно-

кристалла  $\text{LaMnO}_3$ , имеющего намного бóльшие значения при этих температурах, демонстрирует полупроводниковый характер. Возникновение области высокой проводимости нельзя объяснить влиянием положительного температурного коэффициента удельного сопротивления в сегнетоэлектрической пленке [21, 22]. Этот эффект может изменить температурную зависимость удельного сопротивления пленки BSTO за счет обедненных слоев, образующихся на границах раздела сегнетоэлектриков. Но сопротивление пленки BSTO настолько велико, что она шунтируется подложкой LMO, потому что площадь протекания тока в подложке намного больше, а также удельное сопротивление LMO меньше, чем удельное сопротивление BSTO. Таким образом, мы не можем наблюдать никакого изменения сопротивления пленки BSTO в наших экспериментах.

При низких температурах ( $T < 200$  К), когда начинается освещение, электрическое сопротивление начинает расти с временным шагом  $\sim 4\text{--}12$  с, вместо того чтобы падать, как можно было бы ожидать, а затем оно достигает постоянного значения, пока образец непрерывно освещается. Изменение во времени сопротивления на границе раздела гетероструктуры  $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3/\text{LaMnO}_3$  при температуре около 150 К показано на рис. 2 для зеленого и ультрафиолетового циклов включения–выключения. Выключение света переводит систему в темное состояние. Стабильность температуры при измерениях вблизи температуры 150 К составляла порядка 0.05 К. При включении освещения никакого изменения температуры зафиксировано не было. Такой отрицательный эффект фотопроводимости (или эффект фотосопротивления) наблюдается для зеленого и ультрафиолетового освещения, но, как видно из рис. 2, для зеленого света эффект существенно выше. Наблюдается повторяемость эффекта фотосопротивления при многократном последовательном включении и выключении освещения.

Кроме того, наблюдается кумулятивный эффект при освещении светом с различными длинами волн. Сопротивление в зависимости от времени в нескольких циклах включения–выключения зеленого света и инфракрасного света при температуре 160 К показано на рис. 3. Сначала измерялось электросопротивление без света, потом включалось освещение зеленым светом. Через некоторое время включалось инфракрасное освещение без выключения зеленого света. Еще через некоторое время, бóльшее, чем характерное время переключения, инфракрасное освещение отключалось и оставалось только зеленое освещение. И спустя некоторое время отключалось и зеленое освещение. Такая последовательность включения и выключения зеленого и инфракрасного освещения повторялась несколько раз. Картина

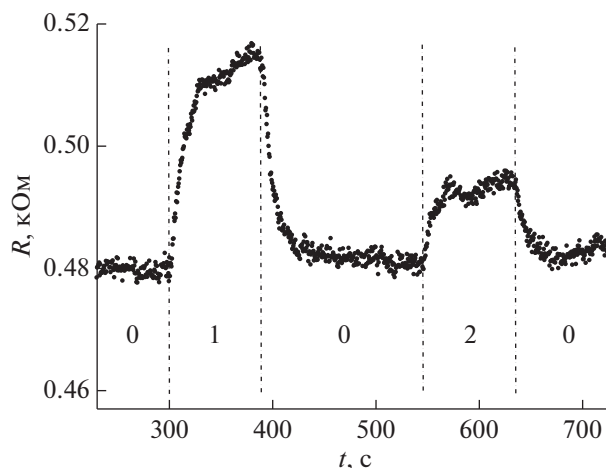


Рис. 2. Зависимость электрического сопротивления гетероструктуры  $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3/\text{LaMnO}_3$  от времени при температуре 150 К без освещения (0), при зеленом (1) и инфракрасном (2) освещении.

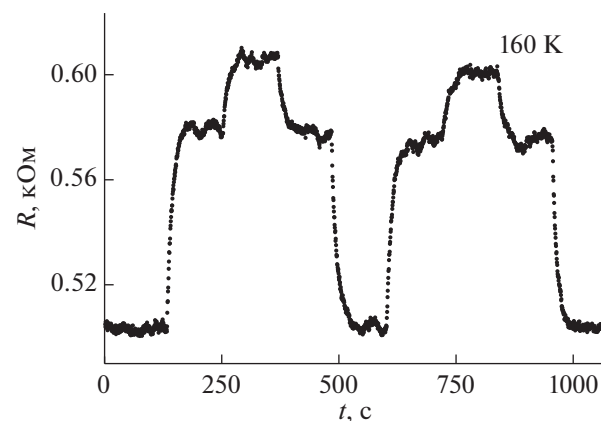


Рис. 3. Зависимость электрического сопротивления гетероструктуры  $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3/\text{LaMnO}_3$  от времени при температуре 160 К при последовательном освещении зеленым и ИК-светом. Сначала измеряли электросопротивление без света, потом включали зеленый свет, после подключали ИК-освещение без выключения зеленого, далее отключалось ИК-освещение и позже отключалось зеленое освещение.

изменения сопротивления практически не менялась при повторных циклах. В части цикла при совместном воздействии зеленого и инфракрасного света эффекты от воздействия складывались, и наблюдался кумулятивный эффект без уменьшения эффекта воздействия каждого из пучков.

Оценим возможный нагрев образца [23–27]. Установившаяся температура приповерхностного объема увеличивается за счет возбуждения лазером накачки, при этом характерная глубина проникновения  $\sim 80$  нм. В эксперименте мы используем расфокусированный лазерный пучок ( $d \sim 4$  мм). По нашим оценкам, изменение темпе-

ратуры на поверхности  $\Delta T$  составляет около 0.1 К. Наша оценка коррелирует с оценками для сфокусированного лазерного пучка ( $d \sim 0.1$  мм), когда  $\Delta T$  составляет около 12 или 2.7 К [26, 27]. Таким образом, в рассматриваемом случае эффект нагрева на границе раздела практически отсутствует ( $\Delta T \sim 0.1$  К на поверхности сегнетоэлектрической пленки), потому что используется расфокусированный лазерный пучок, и средняя плотность мощности очень мала. Кроме того, в случае нагрева области границы раздела эффект от инфракрасного света должен быть больше, чем от зеленого.

Мы предлагаем следующее объяснение отмеченных явлений. Поскольку мы наблюдаем довольно медленные релаксационные процессы, следует предположить, что эта зарядовая динамика связана с релаксацией в области сегнетоэлектрической пленки, так как релаксационные процессы в области с металлической проводимостью должны быть очень быстрыми. Можно предположить, что при освещении носители в сегнетоэлектрической пленке будут двигаться во внутреннем электрическом поле и будут приводить к частичному экранированию сегнетоэлектрической поляризации внутри пленки, что приведет к уменьшению концентрации носителей в области границы раздела. Чтобы прояснить все эти вопросы, необходимы дальнейшие эксперименты по переключению поляризации пленки в сильных электрических полях.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, обнаружено влияние освещения на гетероструктуру  $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3/\text{LaMnO}_3$ . Этот результат позволяет надеяться на получение структур с контролируемой при помощи света проводимостью на границе раздела. Обнаружен эффект фотосопротивления для зеленого и инфракрасного освещения. Наблюдаемый эффект нельзя объяснить прямым нагревом образца лазерными импульсами, так как частота следования импульсов мала и, следовательно, кумулятивными тепловыми эффектами следует пренебречь. Этот пример также показывает, что высокая проводимость (с возможностями управления светом различного спектрального состава) может быть получена в гетероструктуре сегнетоэлектрик/диэлектрик относительно простым способом.

## БЛАГОДАРНОСТИ

Авторы благодарны Д.А. Шуляеву за предоставление образцов монокристаллов  $\text{LaMnO}_3$ , которые использовали в качестве подложек для нанесения пленок, и В.М. Мухортову за нанесение сегнетоэлектрических пленок  $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3$ .

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Ohtomo A., Hwang H.Y.* // Nature. 2004. V. 427. P. 423. <https://doi.org/10.1038/nature02308>
2. *Niranjan M.K., Wang Y., Jaswal S.S., Tsymbal E.Y.* // Phys. Rev. Lett. 2009. V. 103. P. 016804. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.103.016804>
3. *Thiel S., Hammerl G., Schmehl A., Schneider C.W., Mannhart J.* // Science. 2006. V. 313. P. 1942. <https://doi.org/10.1126/science.1131091>
4. *Reyren N., Thiel S., Caviglia A.D., Fitting Kourkoutis L., Hammerl G., Richter C., Schneider C.W., Kopp T., Ruet-schi A.-S., Jaccard D., Gabay M., Muller D.A., Triscone J.-M., Mannhart J.* // Science. 2007. V. 317. P. 1196. <https://doi.org/10.1126/science.1146006>
5. *Brinkman A., Huijben M., Van Zalk M., Huijben J., Zeitler U., Maan J.C., van der Wiel W.G., Rijnders G., Blank D.H.A., Hilgenkamp H.* // Nature Materials. 2007. V. 6. P. 493. <https://doi.org/10.1038/nmat1931>
6. *Kalabukhov A., Gunnarsson R., Borjesson J., Olsson E., Claeson T., Winkler D.* // Phys. Rev. B. 2007. V. 75. P. 121404. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.75.121404>
7. *Moetakef P., Cain T.A., Ouellette D.G., Zhang J.Y., Klenov D.O., Janotti A., Van de Walle Ch.G., Rajan S., Allen S.J., Stemmer S.* // Appl. Phys. Lett. 2011. V. 99. P. 232116. <https://doi.org/10.1063/1.3669402>
8. *Jackson C.A., Stemmer S.* // Phys. Rev. B. 2013. V. 88. P. 180403(R). <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.88.180403>
9. *Biscaras J., Bergea N.I., Kushwaha A., Wolf T., Rastogi A., Budhani R.C., Lesueur J.* // Nature Communications. 2010. V. 1. P. 89. <https://doi.org/10.1038/ncomms1084>
10. *Nakagawa N., Hwang H.Y., Muller D.A.* // Nature Materials. 2006. V. 5. P. 204. <https://doi.org/10.1038/nmat1569>
11. *Fredrickson K.D., Demkov A.A.* // Phys. Rev. B. 2015. V. 91. P. 115126. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.91.115126>
12. *Hohenberg P., Kohn W.* // Phys. Rev. 1964. V. 136. P. B864. <https://doi.org/10.1103/PhysRev.136.B864>
13. *Pavlov D. P., Zagidullin R. R., Mukhortov V.M., Kabanov V.V., Adachi T., Kawamata T., Koike Y., Mamin R.F.* // Phys. Rev. Lett. 2019. V. 122. P. 237001. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.122.237001>
14. *Pavlov D.P., Piyanzina I.I., Muhortov V.M., Balbashov A.I., Tauyrskii D.A., Garifullin I.A., Mamin R.F.* // JETP Letters. 2017. V. 106. P. 460. <https://doi.org/10.7868/S0370274X17190080>
15. *Kabanov V.V., Piyanzina I.I., Lysogorskiy Yu.V., Tayurskii D.A., Mamin R.F.* // Mater. Res. Express. 2020. V. 7. P. 055020. <https://doi.org/10.1088/2053-1591/ab940e>
16. *Mukhortov V.M., Golovko Y.I., Tolmachev G.N., Klevtzov A.N.* // Ferroelectrics. 2000. V. 247. P. 75. <https://doi.org/10.1080/00150190008214943>

17. Golovko Yu.I., Mukhortov V.M., Yuzyuk Yu.I., Janolin P.E., Dkhil B. // Phys. Solid State. 2008. V. 50. P. 485. <https://doi.org/10.1134/S1063783408030153>
18. Gagou Y., Belhadi J., Asbani B., El Marssi M., Dellis J.-L., Yuzyuk Yu.I., Raevski I.P., Scott J.F. // Materials and Design. 2017. V. 122. P. 157. <https://doi.org/10.1016/j.matdes.2017.03.001>
19. Mamin R.F., Zharkov D.K., Pavlov D.P., Kabanov V.V. // Ferroelectrics. 2019. V. 541. P. 93. <https://doi.org/10.1080/00150193.2019.1574648>
20. Raevskii I.P., Pavlov A.N., Prokopalo O.I., Bondarenko E.I. // Ferroelectrics. 1988. V. 83. P. 171. <https://doi.org/10.1080/00150198808235468>
21. Yang H., Chen B., Miao J., Zhao L., Xu B., Dong X., Cao L., Qiu X., Zhao B. // Appl. Phys. Lett. 2004. V. 85. P. 5019. <https://doi.org/10.1063/1.1827928>
22. Bechtel J.H. // J. Appl. Phys. 1975. V. 46. P. 1585. <https://doi.org/10.1063/1.321760>
23. Thomas T.N., Stevens C.J., Choudary A.J.S., Ryan J.F., Mihailovic D., Mertelj T., Forro L., Wagner G., Evetts J.E. // Phys. Rev. B. 1996. V. 53. P. 12436. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.53.12436>
24. Carlslaw H.S., Jaeger J.S. Conduction of heat in Solids, 2nd Ed. Oxford University Press, 1985.
25. Mihailovic D., Demsar J. Time-Resolved Optical Studies of Quasiparticle Dynamics in High-Temperature Superconductors Experiments and Theory, Chapter 16 // Spectroscopy of Superconducting Materials / ACS Symposium Series. 1999. V. 730. P. 230. <https://doi.org/10.1021/bk-1999-0730.ch016>
26. Hagen S.J., Wang Z.Z., Ong N.P. // Phys. Rev. B. 1989. V. 40. P. 9389. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.40.9389>

## Dynamics of Photoinduced Resistance of the $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3/\text{LaMnO}_3$ Heterostructure

A. V. Leontyev<sup>1</sup>, R. R. Zagidullin<sup>1</sup>, D. K. Zharkov<sup>1</sup>, D. P. Pavlov<sup>1</sup>, R. F. Mamin<sup>1</sup>, \*

<sup>1</sup>Zavoisky Physical-Technical Institute, Kazan, 420029 Russia

\*e-mail: mamin@kfti.knc.ru

The effect of green (514 nm) and infrared (1028 nm) pulsed laser light on  $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3/\text{LaMnO}_3$  heterostructure electrical resistance was studied. In 80–200 K range illumination induces transient resistance component at ~2–15% of the steady-state value, the time constant associated with the transient component is ~4–12 s. The negative photoresistance effect has been found both under green and ultraviolet illumination, being much more prominent under green one. Illumination is provided by a defocused laser beam, so the effect cannot be associated with heating of the interface area. It is shown, that, when illuminated simultaneously with green and infrared light, the effects add up.

**Keywords:** heterostructures, photostimulated phenomena, ferroelectrics, films photoconductivity, interfaces, manganites, quasi-two-dimensional conductivity.