

# 박막형 차세대 메모리 및 소자 개발을 위한 신물질 개발

- 주저자 : 김영민(전자현미경)
- 교신저자 : Rohan Mishra(Vanderbilt University)박사, Albina Y. Borisevich(Oak Ridge National Laboratory)교수

• Nano Letters / 2014, 4

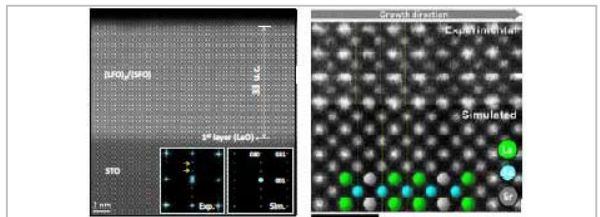
## 연구내용

인공 초격자(超格子, Superlattice) 산화물 내 산소 원자 결함(Oxygen Vacancy ;물질 구조 내 산소 원자의 빈자리)의 분포에 따라 유전분극(誘電分極)이 조절되는 메커니즘을 '수차보정 전자현미경'을 활용하여 원자단위에서 처음 규명함. 이번 연구는 먼저 자연상태에서 유전특성을 나타내지 않는 산화물 두 가지를 결합해 인공 초격자 재료를 만들고, 이 초격자 재료의 결정 구조 내 산소원자 결함을 조절하게 되면 전기장을 가하지 않아도 스스로 전기분극을 만들어 내는 강유전체(強誘電體) 물질로 변화된다는 사실을 전자현미경으로 처음 발견함.

연구에 사용된 인공 초격자 산화물은 자연상태에서 자성을 나타내지만 유전(誘電) 특성은 없는 물질인 란타눔페라이트(LaFeO3)/스트론튬페라이트(SrFeO3)의 두가지 물질들을 인위적으로 조합하여 만들었으며, 이 물질 안에 산소원자 결함이 존재하면 자성은 유지되면서 유전(誘電)성질이 새롭게 나타나는 현상을 최초로 밝힘. 또한 물질 안에 산소원자 결함을 형성하는 것은 실제 제조 공정상에서 산소 분압을 제어함으로 손쉽게 조절가능하기 때문에, 차세대 메모리 및 저장센서 소재로 각광 받고 있음에도 불구하고, 후보물질 발굴이 어려웠던 박막형 다중강성체(多重強性體) 개발에 새로운 전기를 마련함.

## 기대효과

전자현미경으로 규명된 새로운 물리 현상은 박막형 산화물 전자소자의 원천 연구에 중요한 정보를 제공할 것으로 전망됨. 박막형태로 전자소자에 사용되는 강유전 산화물의 유전특성을 간단한 산소원자 결함 조절만으로 구현할 수 있다는 것을 입증함에 따라 박막형 차세대 메모리 및 전자소자 개발에 새로운 가능성을 열게 됨.



[그림 1] (좌) 투과전자현미경으로 촬영된 란타눔페라이트/스트론튬페라이트((LFO)2/(SFO))의 인공초격자 원자 구조(우) 구조 내 철(Fe) 원자의 위치가 약 20피코미터(pm;1조분의 1미터=10-12m)변위하여 이온분극을 형성한 모습을 하단의 전산모사영상과 비교한 모습. 철 이온의 분극은 두 재료가 각기 따로 존재할 때는 일어나지 않는 현상인데 전자현미경 관찰에 의해 철 원자 주위에 산소 빈자리가 존재한다는 사실을 발견하였고, 이 산소 빈자리의 존재로 인해 유전특성이 나타나는 것으로 규명됨. 하단의 스케일 바는 1나노미터(nm; 10억분의 1미터=10-9m)임.

**NANO LETTERS**

**Oxygen-Vacancy-Induced Polar Behavior in (LaFeO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>(SrFeO<sub>3</sub>) Superlattices**

Rohan Mishra,<sup>1,2,3\*</sup> Young Min Kim,<sup>1,4,5\*</sup> Juan Salazar,<sup>6,7</sup> Seung Keun Kim,<sup>1,4</sup> See-Hoeng Chung,<sup>8</sup> Anand Bhattacharya,<sup>9,10</sup> Etkin D. Fong,<sup>9</sup> Stephen J. Poonoody,<sup>9</sup> Isabella T. Kozlikina,<sup>11</sup> and Albina Y. Borisevich<sup>12</sup>

<sup>1</sup>Department of Physics and Astronomy, Vanderbilt University, Nashville, Tennessee 37235, United States  
<sup>2</sup>Materials Science and Technology Division, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee 37831, United States  
<sup>3</sup>Center of Electron Microscopy (CEM), Center for Nanoscale Science, Division 5050B, Republic of Korea  
<sup>4</sup>Materials Science Division and <sup>5</sup>State Science and Technology Division, Argentine National Laboratory, Argentin, Buenos Aires 1600E, United States  
<sup>6</sup>Materials Materials Research Center, Korea Institute of Science and Technology, Seoul 13070, Republic of Korea  
<sup>7</sup>Department of Material Science and Engineering, University of Tennessee, Knoxville, Tennessee 37996, United States  
<sup>8</sup>Centro de Física de Materiales (CONMAT), Universidad Complutense, 28040 Madrid, Spain

**Supporting Information**

**ABSTRACT:** Complex oxides, including ferroelectrics and/or multiferroics, exhibit a rich interplay of structural, electronic, and magnetic properties. In this work, we show that it is possible to induce polar order in a complex oxide by a simple method of oxygen vacancy ordering. Using scanning transmission electron microscopy, we show the polar displacement of oxygen in a superlattice of (LaFeO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>(SrFeO<sub>3</sub>) (LFO/SFO) grown as a S<sub>2</sub>FeO<sub>3</sub> substrate. Using density functional theory calculations, we consistently model the effect of oxygen vacancy ordering on the lattice distortions and the superlattice and find that there is a negligible effect on the oxygen displacement of the two layers between LFO and SFO layers of the superlattice (i.e., within La<sub>2</sub>Fe<sub>2</sub>O<sub>7</sub> unit cells). The introduction of oxygen vacancies in the LFO layer induces a polar displacement of the Fe ions. We discuss the implications of this discovery on the design of complex oxides with tunable partial oxygen vacancy ordering in the regions where polar displacements are observed and an absence of oxygen ordering outside of these sites.

**KEYWORDS:** Transmission electron microscopy; polar order; DFT calculations; scanning transmission electron microscopy; superlattices

**INTRODUCTION:** Complex oxides, including ferroelectrics and/or multiferroics, exhibit a rich interplay of structural, electronic, and magnetic properties. In this work, we show that it is possible to induce polar order in a complex oxide by a simple method of oxygen vacancy ordering. Using scanning transmission electron microscopy, we show the polar displacement of oxygen in a superlattice of (LaFeO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>(SrFeO<sub>3</sub>) (LFO/SFO) grown as a S<sub>2</sub>FeO<sub>3</sub> substrate. Using density functional theory calculations, we consistently model the effect of oxygen vacancy ordering on the lattice distortions and the superlattice and find that there is a negligible effect on the oxygen displacement of the two layers between LFO and SFO layers of the superlattice (i.e., within La<sub>2</sub>Fe<sub>2</sub>O<sub>7</sub> unit cells). The introduction of oxygen vacancies in the LFO layer induces a polar displacement of the Fe ions. We discuss the implications of this discovery on the design of complex oxides with tunable partial oxygen vacancy ordering in the regions where polar displacements are observed and an absence of oxygen ordering outside of these sites.

**KEYWORDS:** Transmission electron microscopy; polar order; DFT calculations; scanning transmission electron microscopy; superlattices

Complex oxides, however, typically have large concentrations of vacancies,<sup>1-7</sup> which together with the low tolerance between the spin, charge, orbital, and lattice degrees of freedom, control many properties.<sup>8-10</sup> The question arises then whether it is possible to achieve multiferroic behavior by tuning the concentration and ordering of oxygen vacancies in a simple, well-defined oxide. A number of studies have indeed shown a strong correlation between the concentration and ordering of oxygen vacancies in the structure, magnetic, and electrical behavior of complex oxides.<sup>11-17</sup> Oxygen vacancies have also been reported to assist in the switching behavior of ferroelectrics. One idea for compensating the polarization method involves an oxygen change.<sup>18,19</sup> However, ordering

February 18, 2014  
 Received: April 16, 2014  
 Published: February 18, 2014

DOI: 10.1021/nl401000a001

[그림 2] 논문