

# [(SrTiO<sub>3</sub>)<sub>n</sub>(SrTi<sub>0.8</sub>Nb<sub>0.2</sub>O<sub>3</sub>)<sub>m</sub>]<sub>20</sub>/LaAlO<sub>3</sub> 超晶格的制备及其激光感生热电电压效应

秦毅 张辉 谈松林 刘婷 张鹏翔†

(昆明理工大学光电子新材料研究所, 昆明 650051)

(2008 年 9 月 17 日收到, 2008 年 11 月 2 日收到修改稿)

采用脉冲激光沉积(PLD)镀膜技术在倾斜 10° 的 LaAlO<sub>3</sub>(100) 单晶衬底上制备了 (SrTiO<sub>3</sub>)<sub>n</sub>(SrTi<sub>0.8</sub>Nb<sub>0.2</sub>O<sub>3</sub>)<sub>m</sub> 系列超晶格. 在超晶格薄膜的 XRD 图谱中清楚地观察到周期调制的卫星峰结构. 从卫星峰的分布计算了超周期, 进而得到了在生长 SrTiO<sub>3</sub> 和 SrTi<sub>0.8</sub>Nb<sub>0.2</sub>O<sub>3</sub> 时的沉积速率, 分别为 0.78 Å/pulse 和 0.57 Å/pulse. 在超晶格薄膜中发现了激光感生热电电压(LITV)效应, 说明这种人造原子层热电堆结构具有 Seebeck 系数各向异性. 研究发现, 在 SrTiO<sub>3</sub> 介电层厚度  $n = 46.8$  nm, SrTi<sub>0.8</sub>Nb<sub>0.2</sub>O<sub>3</sub> 导电层厚度  $m = 19.0$  nm 时 LITV 信号的平均峰值电压最大  $\bar{U}_p = 0.7$  V/mJ·mm,  $n = 46.8$  nm,  $m = 11.4$  nm 时 LITV 信号的平均响应时间最小  $\bar{\tau} = 124$  ns.

关键词: [(SrTiO<sub>3</sub>)<sub>n</sub>(SrTi<sub>0.8</sub>Nb<sub>0.2</sub>O<sub>3</sub>)<sub>m</sub>]<sub>20</sub>/LaO(100) 超晶格, 激光感生热电电压, 各项异性 Seebeck 系数, 原子层热电堆

PACC: 7550R, 7215J, 8115I

## 1. 引 言

热电材料在清洁能源以及光电子探测方面有巨大的应用前景而备受广泛关注. 而将超晶格结构的热电薄膜材料用于新型光、热辐射探测器方面的研究也是目前的一个热点. 最近有文献<sup>[1]</sup>报道, 由 SrTiO<sub>3</sub> 和掺 Nb20% 的 SrTiO<sub>3</sub> 组成的二维电子气结构的超晶格作为传统的热电材料, 可以获得巨大的热电 Seebeck 系数, 几乎是 SrTiO<sub>3</sub> 体材料的 5 倍. 从原子层热电堆模型角度研究超晶格结构中的热电各向异性是一项刚刚起步的有意义的工作. 这种模型中的激光感生热电电压(LITV)的产生与传统热电材料一样也是基于热电 Seebeck 效应<sup>[2]</sup>, 但是晶体中 Seebeck 张量的各向异性起主导作用. Lengflüner 首先导出的激光感生热电电压表达式<sup>[3]</sup>

$$U_{(x)} = \frac{l \sin(2\alpha)}{2} (S_{ab} - S_c) \nabla_z T_z, \quad (1)$$

此后, 根据平面热源模型, Zhang 等<sup>[4]</sup>推导出激光感生热电电压时变公式为

$$U_{(t)} = \frac{\alpha_0 E l \sin(2\alpha)}{4 \rho c_0 \sqrt{\pi D t}} (S_{ab} - S_c) \times \left[ \exp\left(-\frac{\delta^2}{4Dt}\right) - \exp\left(-\frac{d^2}{4Dt}\right) \right], \quad (2)$$

上两式中  $l$  为薄膜曝光长度,  $\alpha$  为衬底倾斜角度,  $S_{ab}$  和  $S_c$  分别为薄膜内  $ab$  面和  $c$  轴方向上的 Seebeck 张量分量,  $\nabla_z T_z$  为垂直于薄膜表面方向的温度梯度,  $\alpha_0$  为薄膜的光吸收率,  $E$  为激光能量,  $\rho$  为材料比重,  $c_0$  为材料单位体积热容,  $D$  为材料的热扩散系数,  $\delta$  为光穿透深度,  $d$  为薄膜厚度,  $t$  为时间. (1)(2) 式表明, 激光感生热电电压信号主要与薄膜材料的各向异性 Seebeck 系数  $(S_{ab} - S_c)$  成正比. 与传统的光生伏特等效效应不同, LITV 效应与薄膜生长时衬底的倾斜角  $\alpha$  有关, 我们据此判断和区分所得信号是否是为热电效应. 各向异性 Seebeck 系数  $(S_{ab} - S_c)$  与材料结构的各向异性及输运性质的各向异性是紧密相关的. SrTiO<sub>3</sub> 作为重要的热电和介电材料, 它的晶体结构为准立方, 但是它的电输运性质可以通过元素替代掺杂来调节, 如 Nb 替代 Ti<sup>[5,6]</sup>. 此外, 超晶格及二维电子气结构也能有效地增强薄膜在

† 通讯联系人. E-mail: pxzhang@FKF.MOG.de

$ab$  面内与  $c$  轴方向输运性质的各向异性.

在本文中我们报道了在倾斜  $10^\circ$  的  $\text{LaAlO}_3(001)$  单晶衬底上,生长  $(\text{SrTiO}_3)_n(\text{SrTi}_{0.8}\text{Nb}_{0.2}\text{O}_3)_m$  超晶格的工艺,并在  $(\text{SrTiO}_3)_n(\text{SrTi}_{0.8}\text{Nb}_{0.2}\text{O}_3)_m$  /LAO(100)超晶格薄膜中发现 LITV. 结果说明这种人造原子层热电堆结构有各向异性的 Seebeck 系数. 还研究了在  $\text{SrTiO}_3$  介电层厚度不变的情况下,  $\text{SrTi}_{0.8}\text{Nb}_{0.2}\text{O}_3$  导电层厚度变化时,对激光感生热电电压信号的影响.

## 2. 实 验

我们用固相法,在  $1250^\circ\text{C}$  保温 24 h 的条件下,制备了  $\text{SrTiO}_3$  和掺 Nb 20% 的  $\text{SrTiO}_3(\text{SrTi}_{0.8}\text{Nb}_{0.2}\text{O}_3)$  多晶靶材. 用 X 射线衍射对两种靶材进行了表征,如图 1 所示. 由于  $\text{SrTiO}_3$ ,  $\text{SrTi}_{0.8}\text{Nb}_{0.2}\text{O}_3$  靶材分别用作制备超晶格的介电层和导电层,同一生长条件下实现  $\text{SrTiO}_3$  层绝缘、 $\text{SrTi}_{0.8}\text{Nb}_{0.2}\text{O}_3$  层导电是制备  $(\text{SrTiO}_3)_n(\text{SrTi}_{0.8}\text{Nb}_{0.2}\text{O}_3)_m$  /LAO(100)超晶格的关键. 我们首先在无倾角的  $\text{LaAlO}_3(001)$  单晶衬底上沉积  $\text{SrTiO}_3$ ,  $\text{SrTi}_{0.8}\text{Nb}_{0.2}\text{O}_3$  单层膜,摸索出使  $\text{SrTi}_{0.8}\text{Nb}_{0.2}\text{O}_3$  薄膜导电而  $\text{SrTiO}_3$  薄膜绝缘的生长条件:衬底温度控制在  $\sim 820^\circ\text{C}$ ,流动氧压保持在  $1 \times 10^{-2}$  Pa 退火 30 min. 为了激光感生热电电压信号测量,在上述生长条件下,利用 KrF 准分子脉冲激光镀膜技术(PLD)激光参数  $\lambda = 248$  nm, 20 ns, 能量  $\sim 2$  J· $\text{cm}^{-2}$ ·pulse $^{-1}$ , 频率 5 Hz)在倾斜  $10^\circ$  的  $\text{LaAlO}_3(100)$  单晶衬底上沉积了 5 种  $(\text{SrTiO}_3)_n(\text{SrTi}_{0.8}\text{Nb}_{0.2}\text{O}_3)_m$  超晶格,总周期  $N = 20$  其中  $\text{SrTiO}_3$  介电层厚度固定为  $n = 21.5$  nm,  $\text{SrTi}_{0.8}\text{Nb}_{0.2}\text{O}_3$  导电层厚度分别为  $m = 7.7, 11.4, 19.0, 26.5, 34.2$  nm, 分别记作 1 $^\#$ , 2 $^\#$ , 3 $^\#$ , 4 $^\#$ , 5 $^\#$  样品. 图 2 为采用 PLD 法制备的超晶格薄膜的 XRD 图谱. 在超晶格的 XRD 图谱中,观察到了超晶格的卫星峰,图 3 给出了 1 $^\#$ , 2 $^\#$  超晶格的卫星峰图谱,并用 Schuller 公式<sup>[7]</sup>

$$\Delta = \frac{\lambda}{2(\sin\theta_{n+1} - \sin\theta_n)} \quad (3)$$

对超晶格样品的超周期厚度值  $\Delta$  进行了计算,进而计算出  $\text{SrTiO}_3$  和  $\text{SrTi}_{0.8}\text{Nb}_{0.2}\text{O}_3$  的沉积速率以及各个样品中  $\text{SrTiO}_3$  层和  $\text{SrTi}_{0.8}\text{Nb}_{0.2}\text{O}_3$  层的厚度.

LITV 信号的测量有两种方法,一种是用脉冲光源<sup>[8]</sup>,另一种则用连续光源<sup>[9]</sup>. 本实验采用 LPX300I

型准分子脉冲激光器(脉冲宽度为 20 ns,  $\lambda = 248$  nm)提供光源  $[(\text{SrTiO}_3)_n(\text{SrTi}_{0.8}\text{Nb}_{0.2}\text{O}_3)_m]_{20}$ /LAO(100)超晶格薄膜作为探测元件,产生的 LITV 信号由 Tektronix-TDS210 型示波器(采样频率为 1 GHz)采集. 示波器采集的 LITV 信号输入计算机存储. 单脉冲激光能量从 84—288 mJ,激光光斑面积为  $1 \text{ cm} \times 3 \text{ cm}$ ,超晶格样品的曝光面积为  $1 \text{ mm} \times 1.2 \text{ mm}$ ,因此照射在样品曝光面上的单脉冲激光能量从 0.34—1.15 mJ. 图 4 分别是 1 $^\#$ , 2 $^\#$ , 3 $^\#$  样品的 LITV 信号测量结果.

## 3. 结果与分析

在制备  $[(\text{SrTiO}_3)_n(\text{SrTi}_{0.8}\text{Nb}_{0.2}\text{O}_3)_m]_{20}$ /LAO(100)超晶格时,最重要的是如何保持  $\text{SrTi}_{0.8}\text{Nb}_{0.2}\text{O}_3$  是导电的,而  $\text{SrTiO}_3$  是绝缘的,只有实现这种结构才会使样品有巨大的各向异性. 制备中考虑的因素在于:一是衬底的温度、镀膜腔内氧压控制适当;另外就是衬底与薄膜、薄膜与薄膜之间的晶格常数是否匹配. 根据文献[1]报道,  $\text{SrTiO}_3/\text{SrTi}_{0.8}\text{Nb}_{0.2}\text{O}_3$  超晶格的生长温度为  $900^\circ\text{C}$ ,氧压为  $3 \times 10^{-3}$  Pa,根据我们所做的 STO 和 NSTO 单层膜实验得知,在我们的 PLD 体系中,当衬底温度控制在  $820$ — $830^\circ\text{C}$  时均可得到结晶质量较高的外延膜. 表 1 给出了不同氧压下两种单层薄膜的电阻值,当使用流动氧压  $1 \times 10^{-2}$  Pa 时, NSTO 薄膜的电阻率为  $\sim 4 \times 10^{-1} \Omega \cdot \text{m}$ , STO 薄膜电阻率为  $\sim 1.1 \times 10^6 \Omega \cdot \text{m}$ ,这种氧压下能保证  $(\text{SrTiO}_3)_n(\text{SrTi}_{0.8}\text{Nb}_{0.2}\text{O}_3)_m$  /LAO(100)超晶格的 STO 层有很好的绝缘性, NSTO 薄膜同时有良好的导电性,从而使超晶格在  $ab$  面内和  $c$  轴方向上出现输运性质的各向异性.

表 1 不同氧压下制备的  $\text{SrTiO}_3$ ,  $\text{SrTi}_{0.8}\text{Nb}_{0.2}\text{O}_3$  单层薄膜电阻率测量值

氧压/Pa	名称	电阻率/ $\Omega \cdot \text{m}$
$1 \times 10^{-2}$	STO	$\sim 1.1 \times 10^6$
	NSTO	$\sim 4 \times 10^{-1}$
$2 \times 10^{-3}$	STO	$\sim 1.5 \times 10^2$
	NSTO	$\sim 3 \times 10^{-1}$
$1 \times 10^{-3}$	STO	$\sim 4.5 \times 10^4$
	NSTO	$\sim 1.5 \times 10^{-1}$

图 1 中烧制的  $\text{SrTiO}_3$  与  $\text{SrTi}_{0.8}\text{Nb}_{0.2}\text{O}_3$  多晶陶瓷靶材的 XRD 表明,所制备样品都以单相钙钛矿为主

相,无其他杂相存在,晶体结构为准立方结构.插图是 SrTiO<sub>3</sub> 与 SrTi<sub>0.8</sub>Nb<sub>0.2</sub>O<sub>3</sub> 多晶陶瓷靶材的 XRD 图谱中对应的(110)峰放大图,从图中可以看出 SrTi<sub>0.8</sub>Nb<sub>0.2</sub>O<sub>3</sub> 的(110)峰较 SrTiO<sub>3</sub> 的(110)峰向左偏移了 0.007°,由布拉格公式计算得出相应的 SrTi<sub>0.8</sub>Nb<sub>0.2</sub>O<sub>3</sub> 的晶格常数较 SrTiO<sub>3</sub> 增大了 0.02 Å,这是因为掺入较大的 Nb<sup>5+</sup> 取代的是较小的 Ti<sup>4+</sup> 在 STO 晶格中的位置所致.由 SrTiO<sub>3</sub> 的晶格常数为  $\alpha_{\text{STO}} = 3.905 \text{ \AA}^{[10]}$ ,得到 SrTi<sub>0.8</sub>Nb<sub>0.2</sub>O<sub>3</sub> 的晶格常数为  $\alpha_{\text{NSTO}} = 3.909 \text{ \AA}$ ,另外,LAO 衬底也具有钙钛矿结构其晶格常数为  $\alpha_{\text{LAO}} = 3.788 \text{ \AA}^{[11]}$ .因为在超晶格薄膜中存在 SrTiO<sub>3</sub>, SrTi<sub>0.8</sub>Nb<sub>0.2</sub>O<sub>3</sub>,LaAlO<sub>3</sub> 等多种晶体结构,那么沿界面处必然会产生晶格的错配和未消除的应力.根据晶格失配度的定义式<sup>[12]</sup>  $\delta = 2|\alpha_1 - \alpha_2|/(\alpha_1 + \alpha_2)$  (这里  $\alpha_1, \alpha_2$  分别指两种晶体的晶格常数).经计算在 [( SrTiO<sub>3</sub> )<sub>n</sub>( SrTi<sub>0.8</sub>Nb<sub>0.2</sub>O<sub>3</sub> )<sub>m</sub> ]<sub>0</sub>/LAO(100)超晶格薄膜中沿界面处有  $\delta_{\text{LAO/STO}} = 1.49\%$ ,  $\delta_{\text{STO/NSTO}} = 0.051\%$ ,虽然这种程度的晶格失配在异质外延生长的薄膜中是较小的了,但仍然会引起应力的存在. SrTiO<sub>3</sub> 层和 SrTi<sub>0.8</sub>Nb<sub>0.2</sub>O<sub>3</sub> 层均受到张应力.对于薄膜生长受到压应力时使得 *c* 轴被拉伸变长,这样有利于提高薄膜的各向异性.如图 2 是 1#—5# 超晶格薄膜样品的 XRD 图谱,图中只在 LaAlO<sub>3</sub>(100)单晶衬底上出现了超晶格薄膜的(001)(002)(003)等(00*l*)衍射峰,这说明薄膜是单一 *c* 取向生长的外延膜.

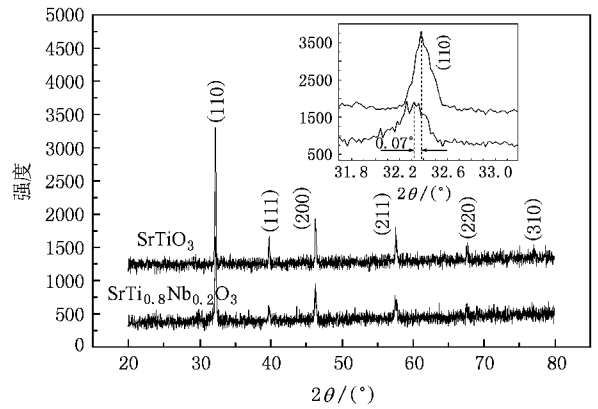


图 1 SrTiO<sub>3</sub> 与 SrTi<sub>0.8</sub>Nb<sub>0.2</sub>O<sub>3</sub> 多晶陶瓷靶材的 XRD 谱(插图为二者(110)峰放大图谱)

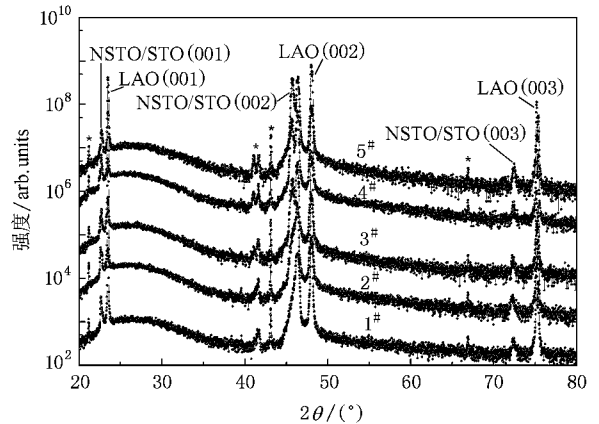


图 2 1#—5# 超晶格样品的 XRD 图谱(星号所标注的是对应峰的 K<sub>β</sub> 峰)

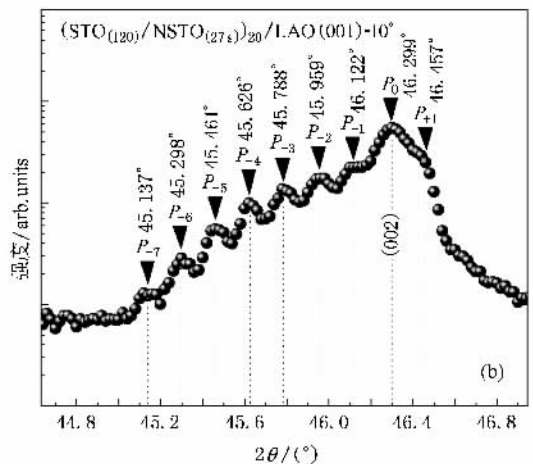
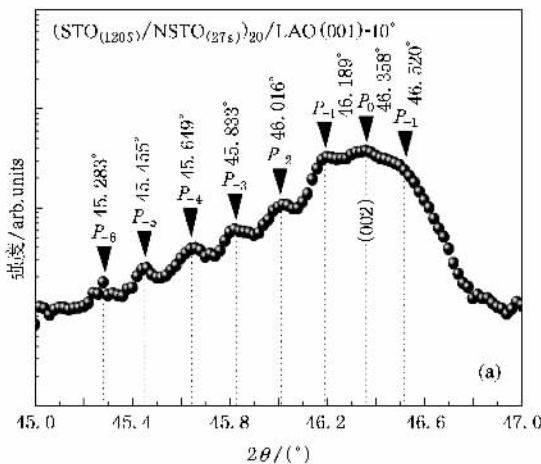


图 3 (a)(b)分别为 1# 2# 样品在(002)峰附近的 XRD 图谱(箭头标出的是卫星峰位置)

图 3 (a)(b) 分别给出了 1#、2# 超晶格样品在 (002) 峰附近出现的卫星峰,并用“▼”标出,其他几个样品的 XRD 表征中也存在同样的卫星峰结构.从图上可以看到卫星峰依次等间距的出现,这说明薄膜为周期调制结构的超晶格,并且每层膜的结晶质量较好,每个超周期的厚度都近乎相等;也说明每个超周期之间的界面的平整度大体上是原子尺度的.图 3 中每个卫星峰的  $2\theta$  衍射角已经标注出来,它们之间的间隔角度几乎是一致的.根据(3)式,经计算得出 1#、2# 样品超周期厚度值分别为  $\Delta_1 \approx 544 \text{ \AA}$ ,  $\Delta_2 \approx 581 \text{ \AA}$  (平均值).我们所用脉冲激光频率为 5 Hz,再结合 1#、2# 样品  $\text{SrTiO}_3$  层和  $\text{SrTi}_{0.8}\text{Nb}_{0.2}\text{O}_3$  层的沉积时间分别为 ( $n = 120 \text{ s}, m = 27 \text{ s}$ ) ( $n = 120 \text{ s}, m = 40 \text{ s}$ ),则得到在我们的 PLD 系统中,  $\text{SrTiO}_3$  和  $\text{SrTi}_{0.8}\text{Nb}_{0.2}\text{O}_3$  沉积速率分别为  $0.78 \text{ \AA/pulse}$  和  $0.57 \text{ \AA/pulse}$ .根据计算得到的沉积速率,1#—5# 超晶格的  $\text{SrTiO}_3$  层和  $\text{SrTi}_{0.8}\text{Nb}_{0.2}\text{O}_3$  层用沉积时间表示的厚度可直接表示为  $n = 46.8 \text{ nm}, m = 7.7, 11.4, 19.0,$

26.5, 34.5 nm.

图 4 给出了 1#、2#、3# 超晶格的 LITV 信号.因为在倾角为  $0^\circ$  既不倾斜的 LAO 衬底上没有测到 LITV 信号,我们判断这是热电信号,这样我们在 ( $\text{SrTiO}_3/\text{SrTi}_{0.8}\text{Nb}_{0.2}\text{O}_3$ )<sub>20</sub>/LAO(100) 超晶格中观察到 LITV 效应.根据(1)(2)式,可知薄膜的 LITV 信号大小与各向异性 Seebeck 系数  $S_{ab} - S_c$  和薄膜上下表面温度差  $\Delta T$  成正比.说明这种人造原子层热电堆结构有各向异性的 Seebeck 系数,即  $S_{ab} - S_c \neq 0$ .对于生长在倾斜衬底上的 [( $\text{SrTiO}_3$ )<sub>n</sub>( $\text{SrTi}_{0.8}\text{Nb}_{0.2}\text{O}_3$ )<sub>m</sub>]<sub>20</sub>/LAO(100) 超晶格,属于原子层热电堆模型,  $\text{SrTi}_{0.8}\text{Nb}_{0.2}\text{O}_3$  作为导电层,其中含有大量自由电子,每对  $\text{SrTiO}_3$  和  $\text{SrTi}_{0.8}\text{Nb}_{0.2}\text{O}_3$  层都是一个原子级别的热电偶,它是温差热电势的来源.  $\text{SrTiO}_3$  作为介电层,能够阻止  $\text{SrTi}_{0.8}\text{Nb}_{0.2}\text{O}_3$  层中的载流子纵向(即  $c$  轴方向)输运,而只能在  $\text{SrTi}_{0.8}\text{Nb}_{0.2}\text{O}_3$  层这个平面(即  $ab$  面)内输运.同时,超晶格结构能够对  $\text{SrTi}_{0.8}$

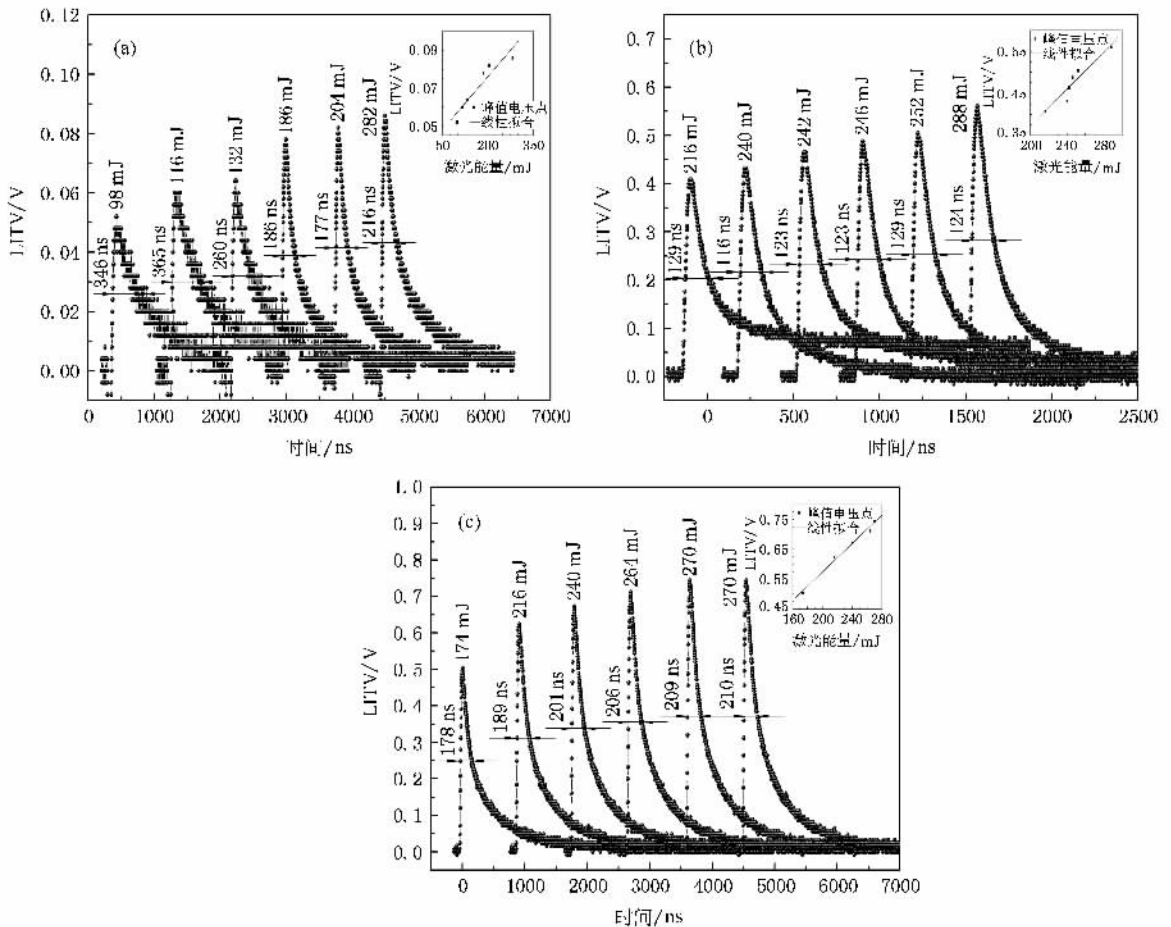


图 4 1#、2#、3# 样品在不同能量的紫外脉冲激光照射下测得的 LITV 信号曲线图 ((a)(b)(c) 分别对应 1#、2#、3# 样品,插图是 LITV 信号与紫外脉冲激光能量关系图)

Nb<sub>0.2</sub>O<sub>3</sub> 导电层的能态密度(DOS)调制提高<sup>[13]</sup>,在超晶格结构中 SrTi<sub>0.8</sub>Nb<sub>0.2</sub>O<sub>3</sub> 的 DOS 提高时,其泽贝克系数将比体材料大大提高.尽管 SrTiO<sub>3</sub>和 SrTi<sub>0.8</sub>Nb<sub>0.2</sub>O<sub>3</sub> 都是立方和准立方结构材料,由它们组成的人造原子层结构中都有很强的各向异性的 Seebeck 系数,也间接说明[( SrTiO<sub>3</sub> )<sub>n</sub>( SrTi<sub>0.8</sub>Nb<sub>0.2</sub>O<sub>3</sub> )<sub>m</sub> ]<sub>0</sub>/LAO(100)超晶格薄膜具有各向异性输运性质.这样就是薄膜上下表面的瞬时温度差  $\Delta T$  得到提高.这就是我们在[( SrTiO<sub>3</sub> /SrTi<sub>0.8</sub>Nb<sub>0.2</sub>O<sub>3</sub> )<sub>0</sub>/LAO(100)超晶格中观察到 LITV 信号原因所在.

图 4 中插入的三个小图是将测量样品的每一激光能量与对应得到的 LITV 信号峰值电压  $U_p$  所组成的坐标点进行了线性拟合.从图可以看出 LITV 信号的  $U_p$  值与入射激光能量呈线性关系(正比),即随激光能量的增加 LITV 信号的  $U_p$  值也随之增加,这和(2)式符合.

从(2)式看出同一样品的 LITV 信号大小不仅与入射光的能量有关,还与入射光在薄膜上的曝光长度有关,所以 LITV 信号需经过归一化处理,表 2 是 1<sup>#</sup>—5<sup>#</sup> 样品经归一化处理后的平均峰值电压  $\bar{U}_p$  及对应的平均响应时间  $\bar{\tau}$ (以 LITV 信号的半高宽作为响应时间).1<sup>#</sup> 样品的  $\bar{U}_p$ ,  $\bar{\tau}$  两个指标是 5 个样品中最差的,2<sup>#</sup> 样品的响应时间最好  $\bar{\tau} = 124$  ns,3<sup>#</sup> 样品的灵敏度最高  $\bar{U}_p = 0.7$  V/mJ·mm,说明 SrTi<sub>0.8</sub>Nb<sub>0.2</sub>O<sub>3</sub> 导电层存在一个使  $U_p$  取得最大值, $\tau$  取得最小值的最佳厚度.对于基于 LITV 效应的新型光、热辐射探测器来说,峰值电压  $U_p$  和响应时间  $\tau$  是两个最重要的指标,它们决定了器件的灵敏度和响应快慢.本实验得到的数据对这类器件的设计提供

了一定的参数和方便.

表 2 1<sup>#</sup>—5<sup>#</sup> 样品的平均峰值电压  $\bar{U}_p$  和平均响应时间  $\bar{\tau}$

样品	平均峰值电压	平均响应时间
	$\bar{U}_p$ (V/J·mm)	$\bar{\tau}$ (ns)
1 <sup>#</sup> ( $n = 46.8$ nm, $m = 7.7$ nm)	0.11	258
2 <sup>#</sup> ( $n = 46.8$ nm, $m = 11.4$ nm)	0.48	124
3 <sup>#</sup> ( $n = 46.8$ nm, $m = 19.0$ nm)	0.7	198
4 <sup>#</sup> ( $n = 46.8$ nm, $m = 26.5$ nm)	0.59	222
5 <sup>#</sup> ( $n = 46.8$ nm, $m = 34.2$ nm)	0.67	158

## 4. 结 论

从薄膜的 XRD 图谱知道,采用激光脉冲沉积(PLD)镀膜技术在倾斜 10° 的 LaAlO<sub>3</sub>(100)单晶衬底上制的[( SrTiO<sub>3</sub> )<sub>n</sub>( SrTi<sub>0.8</sub>Nb<sub>0.2</sub>O<sub>3</sub> )<sub>m</sub> ]<sub>0</sub>/LAO(100)系列超晶格单一  $c$  取向生长的外延膜.在超晶格薄膜的 XRD 图谱中清楚地观察到超晶格的卫星峰,这表明其有良好的周期调制结构,从卫星峰的分布计算了部分超晶格样品的超周期厚度,并且计算出在我们的 PLD 系统中 SrTiO<sub>3</sub> 和 SrTi<sub>0.8</sub>Nb<sub>0.2</sub>O<sub>3</sub> 的沉积速率,分别为 0.78 Å/pulse 和 0.57 Å/pulse.在这种系列的超晶格薄膜中发现了激光感生热电压(LITV)效应,说明这种由立方和准立方材料组成的人造原子层热电堆结构有各向异性的 Seebeck 系数( $S_{ab} - S_c$ ).在 SrTiO<sub>3</sub> 介电层厚度  $n = 48.6$  nm 保持不变的情况下,随着导电层 SrTi<sub>0.8</sub>Nb<sub>0.2</sub>O<sub>3</sub> 厚度  $m$  的变化,在  $m = 19.0$  nm 时,LITV 信号的平均峰值电压最大  $\bar{U}_p = 0.7$  V/mJ·mm; $m = 11.4$  nm 时,LITV 信号的平均响应时间最小  $\bar{\tau} = 124$  ns.

[1] Ohta H, Kim S, Mune Y, Mizoguchi T, Nomura K, Ohta S, Nomura T, Nakanishi Y, Ikuhara Y, Hirano M, Hosono H, Koumoto K 2007 *Nature Mater.* **6** 129  
 [2] Zhang P X, Zhang G Y, Habermeier H U 2004 *The XXIV Conference on Solid State Physics* **27** 16  
 [3] Lengllner H, Kremb G, Schnellbogl A, Betz J, Renk K F, Prettl W 1992 *Appl. Phys. Lett.* **57** 2725  
 [4] Zhang P X, Lee W K, Zhang G Y 2002 *Appl. Phys. Lett.* **81** 4026  
 [5] Gervais F, Servain J L 1993 *Phys Rev. B* **47** 8416  
 [6] Shimizu T, Okushi H 1999 *J. Appl. Phys.* **85** 7244  
 [7] Schuller Y K 1980 *Phys Rev. B* **24** 1597

[8] Habermeier H U, Li X H, Zhang P X, Leibold B 1999 *Solid State Commun* **110** 473  
 [9] Zhang P X, Wang C, Zhang G Y, Yu L, Lee W K, Habermeier H U 2004 *Opt. Laser Technol.* **36** 341  
 [10] Brous J, Fankuchen I, Banks E 1953 *Acta Crystallogr.* **85** 67  
 [11] Jiang J C, Pan X Q 2001 *J. Appl. Phys.* **89** 365  
 [12] Lebedev O I, Hamet J F, Van Tendeloo G, Beaumont V, Raveau B 2001 *J. Appl. Phys.* **90** 5261  
 [13] Ohta H, Mune Y, Koumoto K, Mizoguchi T, Ikuhara Y 2008 *Thin Solid Films* **516** 5916

# Preparation and laser induced thermoelectric voltage effect of $[(\text{SrTiO}_3)_n(\text{SrTi}_{0.8}\text{Nb}_{0.2}\text{O}_3)_m]_{20}/\text{LaAlO}_3$ superlattices

Qin Yi Zhang Hui Tan Song-Lin Liu Ting Zhang Peng-Xiang<sup>†</sup>

(*Institute of Advanced Materials for Photo-electronics, Kunming University of Science and Technology, Kunming 650051, China*)

(Received 17 September 2008; revised manuscript received 2 November 2008)

## Abstract

The  $(\text{SrTiO}_3)_n(\text{SrTi}_{0.8}\text{Nb}_{0.2}\text{O}_3)_m$  superlattices on vicinal-cut  $\text{LaAlO}_3(100)$  single crystal substrate with tilting angle  $10^\circ$  have been prepared using pulsed laser deposition. The superlattices were characterized by X-ray diffraction, in which regularly distributed satellite peak structure was observed. According to the position of satellite peaks, the superperiod of superlattices was calculated and the deposition rates of  $\text{SrTiO}_3$  and  $\text{SrTi}_{0.8}\text{Nb}_{0.2}\text{O}_3$  were deduced as  $0.78 \text{ \AA}/\text{pulse}$  for  $\text{SrTiO}_3$  and  $0.57 \text{ \AA}/\text{pulse}$  for  $\text{SrTi}_{0.8}\text{Nb}_{0.2}\text{O}_3$ . In addition, laser induced thermoelectric voltage (LITV) effect was measured for the first time in these superlattice thin films. This phenomenon indicates that this kind of artificial atomic layer thermopile structure possesses Seebeck anisotropy. It was found that when the thickness of dielectric  $\text{SrTiO}_3$  layer  $n = 46.8 \text{ nm}$ , for conductive  $\text{SrTi}_{0.8}\text{Nb}_{0.2}\text{O}_3$  layer with  $m = 19.0 \text{ nm}$  and  $m = 11.4 \text{ nm}$ , the average peak voltage of LITV signals reaches the maximum  $\bar{U}_p = 0.7 \text{ V}/\text{mJ}\cdot\text{mm}$ , and the minimum average response time is  $\bar{\tau} = 124 \text{ ns}$ , respectively.

**Keywords:**  $[(\text{SrTiO}_3)_n(\text{SrTi}_{0.8}\text{Nb}_{0.2}\text{O}_3)_m]_{20}/\text{LAO}(100)$  superlattices, laser induced thermoelectric voltage, anisotropy Seebeck coefficient, atomic layer thermopile

**PACC:** 7550R, 7215J, 8115I

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: pxzhang@FKF.MOG.ed