

文章编号: 0253-2239(2010)01-0294-05

退火处理对 LaAlO_3 薄膜发光特性的影响

杜建周¹ 王东生^{1,2} 谷志刚³ 赵志敏¹ 陈 会¹ 杨世波¹ 李永祥²

¹ 南京航空航天大学应用物理系, 江苏 南京 210016

² 中国科学院上海硅酸盐研究所高性能陶瓷和超微结构国家重点实验室, 上海 200050

³ 青岛半导体研究所, 山东 青岛 266071

摘要 在室温下,采用射频磁控溅射法在 p-Si(100)衬底上制备了铝酸镧(LaAlO_3)薄膜,分别在 800 °C,900 °C 和 950 °C 下进行退火处理。利用 X 射线衍射(XRD)仪、原子力显微镜(AFM)、荧光分光光度计等研究了不同温度退火处理对 LaAlO_3 薄膜结构、表面形貌及光学性质的影响。研究表明, LaAlO_3 薄膜样品在 900 °C 开始由非晶向晶体转变,说明高温退火有利于提高结晶质量。光致发光(PL)谱测量发现样品在 368,470 nm 位置处分别出现发光峰,各峰的强度随退火温度的升高逐渐增强,但峰位基本保持不变。根据吸收光谱和缺陷能级图,推测出 368 nm 紫外光峰来源于电子从氧空位形成的缺陷能级到价带顶能级的跃迁,470 nm 附近的蓝光峰归因于电子从负价 Al_{La} 错位缺陷能级到价带顶能级的跃迁。

关键词 薄膜光学;射频磁控溅射; LaAlO_3 薄膜;退火处理;光致发光

中图分类号 O433.4 文献标识码 A doi: 10.3788/AOS20103001.0294

Effects of Annealing Treatment on Photoluminescence of LaAlO_3 Thin Films

Du Jianzhou¹ Wang Dongsheng^{1,2} Gu Zhigang³ Zhao Zhimin¹ Chen Hui¹
Yang Shibo¹ Li Yongxiang²

¹ Department of Applied Physics, Nanjing University of Aeronautics and Astronautics, Nanjing, Jiangsu 210016, China

² State Key Laboratory of High Performance Ceramics and Superfine Microstructure, Shanghai Institute of Ceramics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200050, China

³ Qingdao Semiconductor Research Institute, Qingdao, Shandong 266071, China

Abstract LaAlO_3 thin films were fabricated on p-Si (100) substrates by using radio-frequency magnetron sputtering deposition method at room temperature. Then the samples were annealed at 800 °C, 900 °C and 950 °C, respectively. The structural, morphological and optical properties of LaAlO_3 thin films annealed at different temperature were investigated separately by X-ray diffraction (XRD), atomic force microscopy (AFM) and fluorescence spectrophotometer. The results of XRD and AFM show that annealing at higher temperature can improve the crystalline quality of the films. The films changed gradually from amorphous to crystalline above 900 °C. Two emission peaks located at 368 nm and 470 nm in photoluminescence (PL) spectra are observed, respectively. The intensities of PL peaks increased with increasing annealing temperature. According to the absorption spectra and the calculated defect energy levels of the LaAlO_3 films, it can be proposed that the 368 nm UV emission originates from the defect energy level of oxygen vacancies to the top of valence band and the 470 nm blue emission is derived from electron transition between the energy level of negative electricity Al_{La} anti-site defects and the top of valence band.

Key words thin-film optics; radio-frequency magnetron sputtering; LaAlO_3 thin films; annealing treatment; photoluminescence(PL)

收稿日期: 2009-04-24; 收到修改稿日期: 2009-08-22

基金项目: 江苏省自然科学基金(BK2006197)和高性能陶瓷和超微结构国家重点实验室开放课题基金(SKL200804SIC)资助课题。

作者简介: 杜建周(1985—),男,硕士研究生,主要从事薄膜材料的制备、表征及光学特性等方面的研究。

E-mail: dujianzhou123@nuaa.edu.cn

导师简介: 王东生(1970—),男,博士,副教授,硕士生导师,主要从事薄膜材料的研究。E-mail: wdsnju@sina.com

1 引言

LaAlO₃ 在室温下为斜方六面体晶体结构,空间群为 R-3C;高于 530 °C 时发生相变而成为立方结构,空间群为 PM-3M^[1,2]。它具有带隙宽(约 5.6 eV)、熔点高(2100 °C)、介电常数大(约 25)、与 Si 的晶格匹配好^[3]、热膨胀系数小、具有良好的热稳定性和化学稳定性等特点^[4,5],在衬底材料、高聚合物合成催化剂、高温燃料电池、微波介质陶瓷材料^[6,7]、栅极电介质材料等方面得到广泛的应用^[8,9]。

近年来,对 LaAlO₃ 掺杂稀土离子发光特性的研究成为热点。Deren 等^[10,11]研究了 LaAlO₃ 晶体分别掺杂 Pr³⁺,Er³⁺ 离子的发光性质,结果表明各发射峰对应于³P₀→³H₄,³H₆,³F₂ 以及⁴I_{13/2}→⁴I_{15/2} 和⁴S_{3/2}→⁴I_{15/2} 能级间的跃迁。Singh 等^[12]在 500 °C 高温炉中合成了 LaAlO₃:Ho³⁺ 荧光粉,并将观察到的发光峰归属于⁵S₂→⁵I₈ 和⁵F₅→⁵I₈ 能级的跃迁。Gocalinska 等^[13]采用丘克拉斯基法生长了掺杂 Tm³⁺ 的 LaAlO₃ 晶体,分析了在室温和 77 K 低温下样品的吸收和发射光谱,发现了波长分别位于 355,457.9 和 647.4 nm 处的发光峰。然而,有关 LaAlO₃ 薄膜发光特性的研究以及退火行为对其影响在国内外文献中尚未见报道。目前已采用多种方法制备高质量的 LaAlO₃ 薄膜,如分子束沉积法(MBD)^[14,15]、磁控溅射法^[16]、金属有机化学气相沉积法(MOCVD)^[17]、脉冲激光沉积法(PLD)等^[18]。由于 LaAlO₃ 薄膜的性能受生长和后处理工艺,尤其是退火工艺参数的影响^[19],因此研究退火对 LaAlO₃ 薄膜性能的影响有重要意义。由于磁控溅射具有工艺可控性好、成膜面积大、膜层性能稳定而得到广泛应用^[20]。本文采用射频磁控溅射法在 Si 衬底上制备了 LaAlO₃ 薄膜,测试结果表明 Pt/LaAlO₃/Si 具有良好的电容-电压(C-V)和电流-电压(I-V)特性^[21]。在优化制备工艺的基础上,对 LaAlO₃ 薄膜样品进行不同温度的退火处理,分析了不同温度条件下退火处理对薄膜结构、表面形貌及发光特性的影响,并深入讨论了各发光峰的来源及影响发光峰强度变化的因素。

2 实验

采用射频磁控溅射法在 p 型 Si(100)衬底上制备了 LaAlO₃ 薄膜,所用设备为 JGP600 型超高真空多靶磁控溅射仪,溅射气体为氩气,详细的制备工艺及沉积条件参见以前的工作报告^[21]。为消除制备条件对测试

结果的影响,将制备好的样品切割成四小块,将其中三块在空气中分别进行 800 °C,900 °C 和 950 °C 退火处理。退火设备为 GSL-1600X 型真空管式高温炉,采取常规热处理方式,升温速率为 5 °C/min,保温时间为 120 min,冷却方式为自然冷却。

采用 Rigaku/D/MAX-2500PC 型 X 射线衍射仪(Cu 靶 K α 射线, $\lambda=0.15406$ nm)测试样品的微观结构。用 Veeco/DiBioScope II 型多功能扫描探针显微镜的 AFM 模式观测样品的表面形貌,所用探针为氮化硅,并分析了退火温度提高对形貌及薄膜粗糙度的影响。利用吸收光谱和光致发光谱(PL)表征了样品的光学性质。其中,吸收光谱的测试系统为 WGD-3 型组合式多功能光栅光谱仪,采用 GY-2 型光源,测试系统波长范围为 200~800 nm;PL 谱的测试采用 RF-25301 型荧光分光光度计,光源为 150 W 氙灯,分光器是闪耀光栅,仪器灵敏度信噪比在 150 以上,测量波长范围为 220~900 nm。以上所有测试均在室温下进行。

3 结果与讨论

3.1 结构和形貌分析

图 1 为制备的 LaAlO₃ 薄膜样品经过不同温度退火处理后的 X 射线衍射(XRD)图谱。从图中看出,当薄膜样品未经任何热处理时,除来自衬底 Si(100)取向的衍射峰外,无其它明显的衍射峰,表明薄膜处于非晶状态;样品经 800 °C 退火处理后只有一个非晶包,表明仍为非晶结构,同时说明 LaAlO₃ 薄膜具有良好的热稳定性。经过 900 °C 退火处理后,样品衍射图中出现两个微弱的衍射峰,分别对应 LaAlO₃(100)和(111)的特征峰,表明样品开始由非晶向晶体结构转变。经过 950 °C 退火处理后,样品出现(100),(111),(200)和(211)衍射峰,并且各衍射峰强度相对增强,表明薄膜结晶状况良好。根据

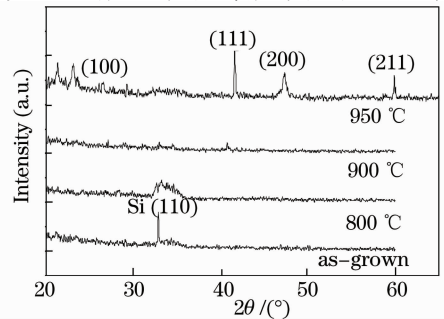


图 1 LaAlO₃ 薄膜的 X 射线衍射图谱

Fig. 1 X-ray diffraction patterns of LaAlO₃ films annealed

一系列不同温度退火处理后样品的 XRD 测试结果可以推断:采用射频磁控溅射法在 Si(100)衬底上制备的 LaAlO_3 薄膜的结晶温度大于 $900\text{ }^\circ\text{C}$ 。

图 2 所示为 LaAlO_3 薄膜的三维原子力显微形貌图 (AFM),扫描面积均为 $20\text{ }\mu\text{m}\times 20\text{ }\mu\text{m}$ 。其中图 2(a)代表未退火处理薄膜样品,图 2(b)~图 2(d)分别代表经 $800\text{ }^\circ\text{C}$, $900\text{ }^\circ\text{C}$ 和 $950\text{ }^\circ\text{C}$ 退火处理后的薄膜样品。图 3 为各样品表面在 $5\text{ }\mu\text{m}\times 5\text{ }\mu\text{m}$ 面积范围内均方根粗糙度 (RMS) 随退火温度

变化的曲线图。从图 2(a)可以看出未退火处理薄膜样品表面无明显缺陷,整体表现为平整、致密,但是出现了少量柱状突起,根据坐标尺度的比例关系判断这些柱状突起实际上是一些比较平缓的突起包。当样品经过 $800\text{ }^\circ\text{C}$ 退火处理后,表面更加平滑, RMS 值从 0.91 nm 降至 0.52 nm ,可能是 LaAlO_3 薄膜在制备过程产生的各种应力^[22]在退火处理过程中得到释放而引起。

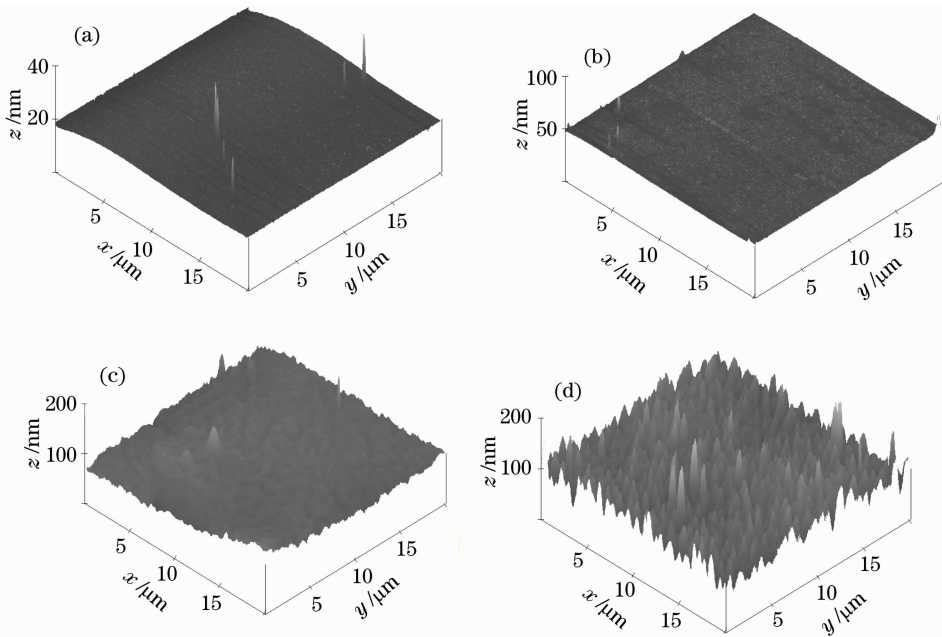


图 2 LaAlO_3 薄膜的三维原子力显微形貌图

Fig. 2 Three-dimensional AFM images of LaAlO_3 thin films

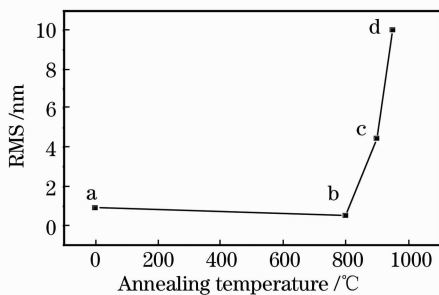


图 3 不同退火温度后 LaAlO_3 薄膜的表面均方根粗糙度

Fig. 3 RMS roughness of LaAlO_3 thin films annealed at different temperature

样品经 $900\text{ }^\circ\text{C}$ 退火处理后,表面变得比较粗糙, RMS 值增至 4.45 nm ,但是无法看到明显的晶粒结构,仍处于结晶的初始阶段,与图 1 中 XRD 结果相吻合。经 $950\text{ }^\circ\text{C}$ 退火处理后薄膜结晶性能显著提高,出现清晰的 LaAlO_3 纳米晶粒,同时表面粗糙度明显增加, RMS 值增大至 10.0 nm 。可见,薄膜表

面粗糙度的变化与退火温度、结晶化程度等因素有关。

3.2 吸收光谱分析

图 4 是 LaAlO_3 薄膜样品经 $950\text{ }^\circ\text{C}$ 退火处理后的吸收光谱,波长范围 $350\sim 520\text{ nm}$,从图中可以看出位于 $365, 410$ 和 435 nm 处有明显的吸收峰。一般认为薄膜的光致发光特性与自身缺陷、结晶状况、

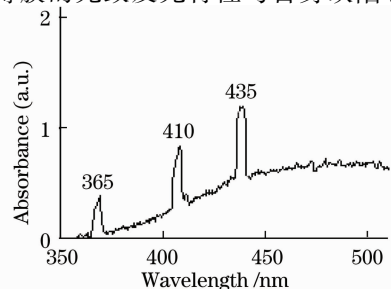


图 4 LaAlO_3 薄膜经 $950\text{ }^\circ\text{C}$ 退火处理后的吸收谱
Fig. 4 Absorption spectrum of LaAlO_3 thin film annealed at $950\text{ }^\circ\text{C}$

化学计量比等有密切关系^[23],而文中这些吸收峰的出现可能与 LaAlO₃ 薄膜中的氧空位(V_O)、氧填隙(I_O)、铝镧错位(Al_{La})等缺陷形成的能级有关。

为了分析薄膜中各种缺陷对材料光谱性能的影响,要确定缺陷态在能带中的能级位置。Xiong 等^[24]利用密度泛函理论计算了 LaAlO₃ 晶体中 V_O, Al_{La}, I_O 等几种缺陷的能级位置,计算结果表明,屏蔽-交换(SX)近似方法计算出 LaAlO₃ 晶体带隙为 4.4 eV,其中价带和导带分别由 O 的 2p 电子态、La 的 d 电子态构成,这比实验得出的 5.6 eV 结果要小,因此需要对禁带中缺陷能级的位置进行修正。在保持价带顶位置不变的前提下,将导带底刚性的向上移动,同时将禁带中的各缺陷态能级位置也参照相同比例移动,如图 5 所示为修正后的 LaAlO₃ 薄膜缺陷能级位置图。

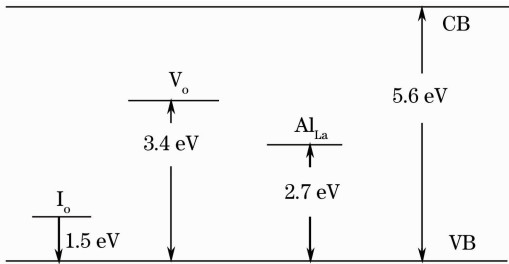


图 5 LaAlO₃ 薄膜中缺陷能级图

Fig. 5 Energy level diagram of the defect in the LaAlO₃ thin film

通过对比吸收谱图 4 和缺陷能级图 5 可以发现,氧空位缺陷能级到价带顶能级的能量差为 3.4 eV,这与图 4 中观测到的 365 nm 的吸收峰能量相接近。此外,修正后的 Al_{La} 错位缺陷能级到价带顶的能级差平均值约为 2.7 eV,而吸收谱中 410 nm 和 435 nm 吸收峰对应能量分别为 3.03 eV 和 2.86 eV,这比平均能量 2.7 eV 分别高出 0.33 eV, 0.16 eV。LaAlO₃ 为钙钛矿结构,Al 离子和 La 离子有相同的价,离子半径也比较接近,这使得 Al 和 La 容易相互错位形成缺陷。其中 Al 离子代替 La 离子形成的错位缺陷能级比较复杂,在带隙的中部附近可以形成中性和负价 Al_{La} 两种主要错位缺陷,中性 Al_{La} 错位能级高于负价 Al_{La} 位错能级^[24]。另一方面,在刚性的移动各缺陷能级时会引起一定的偏差。由于仪器测试波长范围有限,未测定与 I_O 缺陷有关的吸收峰。上述结果表明各种缺陷的存在改变了 LaAlO₃ 薄膜能级结构,对其光学性质也产生重要影响。

3.3 退火处理对 LaAlO₃ 薄膜 PL 谱的影响

图 6 为 LaAlO₃ 薄膜经不同温度退火处理后的

PL 谱,激发光波长为 245 nm。从图中可以看出,各样品均出现了位于 368 nm 处较强的紫外光峰,且峰值波长随退火温度的升高发生一定程度的红移,但基本特征保持不变。此外,还出现了波长位于 470 nm 附近较弱的复合发光峰。

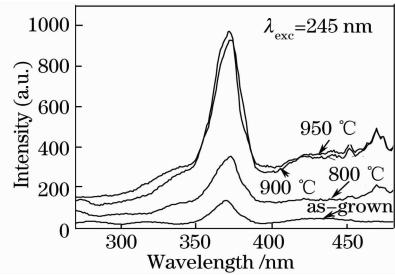


图 6 LaAlO₃ 薄膜经不同退火温度处理后光致发光谱

Fig. 6 Photoluminescence (PL) spectra of LaAlO₃ thin films annealed at different temperature

采用射频磁控溅射方法制备 LaAlO₃ 薄膜时,由于电荷俘获、暂态阈值电压偏移、以及远库仑散射引起的 Si 载流子迁移率的降低等因素导致了 V_O 缺陷^[24],并在 V_O 的基础上构成缺陷发光中心。从能级图 5 可知 V_O 缺陷能级到价带顶能级的能量差为 3.4 eV,这与 368 nm 紫外发光峰对应的能量(3.38 eV)基本一致,因此 LaAlO₃ 薄膜中 368 nm 紫外光发射主要来源于电子从 V_O 缺陷能级到价带顶能级间的跃迁。而 470 nm 的蓝光峰则与电子从负价 Al_{La} 错位形成的缺陷能级(约 2.64 eV)到价带顶能级跃迁有关,这比计算得出的 Al_{La} 缺陷能级到价带顶能级的平均能量(2.7 eV)略低。

随着退火温度的提高,薄膜表面原子的蒸发速率也得到提高,表面吸附的 O 原子比 La, Al 原子更容易脱离薄膜表面使得氧空位增多。此外, V_O 的增多也引起薄膜中 Al_{La}, I_O 等缺陷浓度的增加。因此,随着退火温度的提高,各发光峰强度有不同程度的增强。LaAlO₃ 薄膜的各种缺陷中, V_O 缺陷浓度较高成为主要的缺陷,产生了较强的紫外光峰(368 nm); Al_{La} 错位缺陷浓度较低,因此蓝光峰

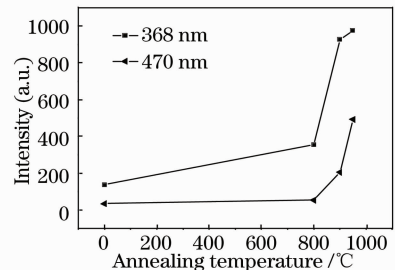


图 7 发光峰强度

Fig. 7 Intensity of photoluminescence peaks

(470 nm)的强度也比较弱,如图 7 所示。此外,从 XRD 谱和 AFM 分析可知退火温度高于 900 °C 时 LaAlO₃ 薄膜开始结晶,随着退火温度的提高结晶化程度也得到增强,使得辐射跃迁的几率大大提高,各发光峰强度也显著增强。表明结晶化程度对于薄膜发光性能的影响较大。

4 结 论

采用射频磁控溅射法在 p-Si (100)衬底上制备了非晶 LaAlO₃ 薄膜,通过不同温度的退火处理,研究了退火对 LaAlO₃ 薄膜微观结构和发光性能的影响。结果表明,随着退火温度的提高,薄膜的结晶质量得到提高,并且确定结晶转换温度大于 900 °C。在 PL 谱中观测到峰位位于 368 nm 的紫外光峰和 470 nm 的蓝光峰。分析认为 368 nm 紫光峰是由电子从 V_O 能级到价带顶能级跃迁引起;而 470 nm 蓝光峰对应电子从负价 Al_L形成的缺陷能级到价带顶能级跃迁。在这两种缺陷形成的能级中,氧空位占据主导地位。在研究的范围内,随着退火温度的提高,一方面引起薄膜中的 V_O, Al_L等缺陷增多,进而导致对应的发光中心的浓度也相应提高,使得薄膜发光性能得到改善;另一方面,结晶质量的提高对薄膜发光特性也有重要影响。

参 考 文 献

- Xin Luo, Biao Wang. Structural and elastic properties of LaAlO₃ from first-principles calculations [J]. *J. Appl. Phys.*, 2008, **104**(7): 073518-1~073518-7
- P. W. Peacock, J. Robertson. Bonding energies and band offsets of Si-ZrO₂ and HfO₂ gate oxide interfaces [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2004, **92**(5): 057601-1~057601-4
- A. Uedono, S. Inumiya, T. Matsuki *et al.*. Vacancy-fluorine complexes and their impact on the properties of metal-oxide transistors with high-*k* gate dielectrics studied using monoenergetic positron beams [J]. *J. Appl. Phys.*, 2007, **102**(5): 054511-1~054511-7
- B. C. Chakoumakos, D. G. Scholm, M. Urbanik *et al.*. Thermal expansion of LaAlO₃ and (La, Sr) (Al, Ta) O₃ substrate materials for superconducting thin-film device applications [J]. *J. Appl. Phys.*, 1998, **83**(4): 1979~1982
- G. D. Wilk, R. M. Wallace, J. M. Anthony. High-*k* gate dielectrics: current status and materials properties considerations [J]. *J. Appl. Phys.*, 2001, **89**(10): 5243~5275
- Javier Junquera, Philippe Ghosez. Critical thickness for ferroelectricity in perovskite ultrathin films [J]. *Nature*, 2003, **422**(6931): 506~509
- L. Becerra, C. Merckling, N. Baboux *et al.*. Ultralow equivalent oxide thickness obtained for thin amorphous LaAlO₃ layers grown on Si (001) [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2007, **91**(19): 192909-1~192909-3
- Seung-Gu Lim, Stas Kriventsov, Thomas N. Jackson *et al.*. Dielectric functions and optical bandgaps of high-*k* dielectrics for metal-oxide-semiconductor field-effect transistors by far ultraviolet spectroscopic ellipsometry [J]. *J. Appl. Phys.*, 2002, **91**(7): 4500~4505
- Angus I. Kingon, Jon-Paul Maria, S. K. Streiffer. Alternative dielectrics to silicon dioxide for memory and logic devices [J]. *Nature*, 2000, **406**(6799): 1032~1038
- Prezemyslaw J. Deren. Spectroscopic characterization of LaAlO₃ crystal doped with Pr³⁺ ions [J]. *J. Lumin.*, 2007, **122**~**123**: 40~43
- P. J. Deren, R. Mahiou. Spectroscopic characterization of LaAlO₃ crystal doped with Er³⁺ ions [J]. *Opt. Mater.*, 2007, **29**(7): 766~772
- Vijay Singh, D. T. Naidu, R. P. S Chakradhar *et al.*. Synthesis, characterization and optical properties of LaAlO₃:Ho³⁺ phosphor [J]. *Physica B*, 2008, **403**(19~20): 3781~3785
- A. Gocalinska, P. J. Deren, P. Gluchowski *et al.*. Spectroscopic characterization of LaAlO₃ crystal doped with Tm³⁺ ions [J]. *Opt. Mater.*, 2008, **30**(5): 680~683
- Byung-Eun Park, Hiroshi Ishiwara. Formation of LaAlO₃ films on Si (100) substrates using molecular beam deposition [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2003, **82**(8): 1197~1199
- L. F. Edge, D. G. Schlom, R. T. Brewer *et al.*. Suppression of subcutaneous oxidation during the deposition of amorphous lanthanum aluminate on silicon [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2004, **84**(23): 4629~4631
- L. Miotii, P. Bastos, C. Driemeier *et al.*. Effects of post-deposition annealing in O₂ on the electrical characteristics of LaAlO₃ films on Si [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2005, **87**(2): 022901-1~022901-3
- Ai-Dong Li, Qi-Yue Shao, Hui-Qin Ling *et al.*. Characteristics of LaAlO₃ gate dielectrics on Si grown by metalorganic chemical vapor deposition [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2003, **83**(17): 3540~3542
- X. B. Lu, Z. G. Liu, G. H. Shi *et al.*. Interfacial structures of LaAlO₃ films on Si (100) substrates [J]. *Appl. Phys. A*, 2004, **78**(6): 921~923
- Wang Congjuan, Jin Yunxia, Shao Jianda *et al.*. Influence of three post-treatment methods on properties of ZrO₂ thin films [J]. *Chinese J. Lasers*, 2008, **35**(10): 1600~1604
王聪娟, 晋云霞, 邵建达等. 三种不同后处理方式对 ZrO₂ 薄膜性能的影响 [J]. *中国激光*, 2008, **35**(10): 1600~1604
- Zeng Weiqiang, Yao Jianke, He Hongbo *et al.*. Influence of substrate temperature on the properties of Tin-doped Indium oxide thin films prepared by direct current magnetron sputtering [J]. *Chinese J. Lasers*, 2008, **35**(12): 2031~2035
曾维强, 姚建可, 贺洪波等. 基底温度对直流磁控溅射 ITO 透明导电薄膜性能的影响 [J]. *中国激光*, 2008, **35**(12): 2031~2035
- Wang Dongsheng, Yu Tao, You Biao *et al.*. Properties of high-*k* gate dielectric LaAlO₃ thin films [J]. *J. Inorganic Materials*, 2003, **18**(1): 229~232
王东生, 于涛, 游彪等. 高介电常数的栅极电介质 LaAlO₃ 薄膜的性能研究 [J]. *无机材料学报*, 2003, **18**(1): 229~232
- Chen Chuanxiang, Qi Hongxia. Influence of annealing on ZnO film and ZnO/p-Si heterojunctions [J]. *Acta Optica Sinica*, 2008, **28**(7): 1411~1414
陈传祥, 齐红霞. 退火处理对 ZnO 薄膜晶体结构和 ZnO/p-Si 异质结光电性质的影响 [J]. *光学学报*, 2008, **28**(7): 1411~1414
- Huang Taohua, Zhou Shengming, Teng Hao *et al.*. Structural and optical characteristics of ZnO films on LiGaO₂ substrate [J]. *Acta Optica Sinica*, 2008, **28**(7): 1420~1424
黄涛华, 周圣明, 滕浩等. LiGaO₂ 衬底上 ZnO 外延膜的结构与光学特性 [J]. *光学学报*, 2008, **28**(7): 1420~1424
- K. Xiong, J. Robertson, S. J. Clark. Defect states in the high-dielectric-constant gate oxide LaAlO₃ [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2006, **89**(2): 022907-1~022907-3