# 용액 공정을 통해 제조된 LaAlO<sub>3</sub>/SrTiO<sub>3</sub> 계면에서의 이차원 전자 가스의 전기적 특성

유경희<sup>1</sup> · 유상혁<sup>2</sup> · 조현지<sup>1</sup> · 안현수<sup>3</sup> · 정종 $\hat{e}^3$  · 이형우<sup>2,4,†</sup> · 이정우<sup>1,†</sup>

'홍익대학교 나노신소재학과, 2아주대학교 에너지시스템학과 3인하대학교 물리학과, 4아주대학교 물리학과

# Electrical Properties of Two-dimensional Electron Gas at the Interface of LaAlO<sub>3</sub>/SrTiO<sub>3</sub> by a Solution-based Process

Kyunghee Ryu<sup>1</sup>, Sanghyeok Ryou<sup>2</sup>, Hyeonji Cho<sup>1</sup>, Hyunsoo Ahn<sup>3</sup>, Jong Hoon Jung<sup>3</sup>, Hyungwoo Lee<sup>2,4,†</sup>, and Jung-Woo Lee<sup>1,†</sup>

<sup>1</sup>Department of Materials Science and Engineering Hongik University, Sejong 30016 Republic of Korea
<sup>2</sup>Department of Energy Systems Research, Ajou University, Suwon 16499 Republic of Korea
<sup>3</sup>Department of Physics, Inha University, Incheon 22212 Republic of Korea
<sup>4</sup>Department of Physics, Ajou University, Suwon 16499 Republic of Korea
(Received March 15, 2024: Revised March 24, 2024: Accepted March 29, 2024)

초 록: SrTiO<sub>3</sub> (STO) 기판 위에 성장된 LaAlO<sub>3</sub> (LAO) 계면에서의 이차원 전자 가스 (2DEG)의 발견은 복합 산화물 이종 구조를 기반으로 한 혁신적인 전자소자 연구의 장을 제공함으로써 많은 관심을 받아왔다. 하지만 LAO 박막을 형성 하기 위하여, 일반적으로 물리기상증착법(PVD)을 기반으로 하는 펄스 레이저 증착 (PLD) 등의 기법이 주로 사용되어 왔 으나, 공정 비용이 많이 들며 LAO 내 La와 Al의 정밀한 조성 제어가 어려운 단점이 있다. 본 연구에서는 PVD에 비해 경 제적인 대안인 용액 기반 공정을 사용하여 LAO 박막을 제조하였고, 그 전기적 특성을 평가하였다. LAO 전구체 용액의 농 도를 다르게 하여 LAO의 두께를 2에서 65 nm까지 변화시켰으며, 각 두께에 따른 면저항 및 캐리어 농도를 도출하였다. 진공 열처리 후 형성된 전도성 채널의 면저항 값은 0.015에서 0.020 Ω·sq<sup>-1</sup> 범위로 나타났으며, 이러한 결과는 기존 문헌 과 비교하였을 때 LAO와 STO 사이의 계면에서의 전자 이동뿐만 아니라 계면으로부터 떨어져 있는 STO bulk 영역으로의 전자 전도를 시사한다. 본 연구 결과는 용액 기반 공정을 통한 2DEG 형성 및 제어를 구현한 것으로, 공정 비용을 줄이고 전자 소자 제조에서 보다 광범위한 응용 가능성을 제시한다는 점에 그 의의가 있다.

Abstract: The discovery of a two-dimensional electron gas (2DEG) at the interface of LaAlO<sub>3</sub> (LAO) and SrTiO<sub>3</sub> (STO) substrates has sparked significant interest, providing a foundation for cutting-edge research in electronic devices based on complex oxide heterostructures. However, conventional methods for producing LAO thin films, typically employing techniques like pulsed laser deposition (PLD) within physical vapor deposition (PVD), are associated with high costs and challenges in precisely controlling the La and Al composition within LAO. In this study, we adopted a cost-effective alternative approach—solution-based processing—to fabricate LAO thin films and investigated their electrical properties. By adjusting the concentration of the precursor solution, we varied the thickness of LAO films from 2 to 65 nm and determined the sheet resistance and carrier density for each thickness. After vacuum annealing, the sheet resistance of the conductive channel ranged from 0.015 to 0.020  $\Omega \cdot sq^{-1}$ , indicating that electron conduction occurs not only at the LAO/STO interface but also into the STO bulk region, consistent with previous studies. These findings demonstrate the successful formation and control of 2DEG through solution-based processing, offering the potential to reduce process costs and broaden the scope of applications in electronic device manufacturing.

Keywords: Complex oxide thin films, SrTiO<sub>3</sub>, LaAlO<sub>3</sub>, Two-dimensional electron gas, Solution-based process

<sup>†</sup>Corresponding author

E-mail: jungwoo@hongik.ac.kr, hyungwoo@ajou.ac.kr

<sup>© 2024,</sup> The Korean Microelectronics and Packaging Society

This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License(http://creativecommons.org/ licenses/by-nc/3.0) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

# 1. 서 론

LaAlO<sub>3</sub>(LAO)/SrTiO<sub>3</sub>(STO) 이종 구조는 절연체로 알려 진 두 복합산화물 사이에서 전도성 전자채널이 형성됨에 따라 많은 주목을 받아왔다.<sup>1)</sup> 이러한 전도성 전자채널은 흔 히 이차원 전자가스 (two-dimensional electron gas: 2DEG) 라고 통칭되며, 강유전, 2 강자성, 3 초전도 현상, 4 등의 다양 한 물리현상5-9)이 발현되는 것으로 알려져 있다. 이 때 전도 성 전자채널을 형성하는 매커니즘으로 polar catastrophe,<sup>10)</sup> 산소 결함(oxygen vacancy)<sup>11)</sup> 등을 들 수 있다. Polar catastrophe 모델에서, TiO2-terminated STO 표면에 LaO layer가 맞닿을 때, 계면에서 (LaO)<sup>+1</sup>/TiO<sub>2</sub><sup>0</sup> 형태의 극성 불연속성(polar discontinuity)이 형성된다. 이 때 불안정성 을 해소하기 위하여 LAO에서 전자가 계면 근방의 STO 로 이동하여 자유전자를 형성하게 된다는 것이다. 또한 LAO/STO 이종구조를 만드는 과정에서 STO 기판에 형 성되는 소량의 산소 결함이 자유전자 제공에 기여한다고 알려져 있다.11)

이러한 LAO/STO 이종 구조를 제조하기 위해서는 통상 적으로 물리기상증착법 (physical vapor deposition: PVD) 방식을 사용하며,1-4,12-17) 이는 펄스레이저 증착법 (pulsed laser deposition: PLD),<sup>1,5-9,12-17)</sup> 분자빔에피택시 (molecular beam epitaxy: MBE),<sup>18)</sup> 스퍼터링 (sputtering)<sup>19)</sup> 등의 방식 을 포함한다. 이러한 방식을 사용할 경우 결정성이 우수 하고 표면이 고른 박막을 얻을 수 있는 장점이 있지만, 고 가의 진공장비를 사용하며 조성의 정밀 제어가 어려운 단 접이 있다. 이에 대한 대안으로 용액 공정을 기반으로 한 LAO/STO 이종 구조가 보고되고 있다.<sup>20-22)</sup> Khan et al.은 STO 단결정 기관의 배향성 (001), (011), (111)에 따라 LAO 박막을 용액 공정으로 제조하였을 때 300 K 미만 전체 온도 범위에서 높은 전도성을 나타내는 고품질의 2DEG 가 형성될 수 있음을 입증하였지만, 이 과정에서LAO 용 액을 제조할 때 14 시간 동안 교반해야 하는 단점이 있었 다.<sup>20)</sup> 이러한 단점을 보완하기 위해서 Fu et al. 은 LAO 용액에 쓰이는 La전구체의 종류와 용매를 개선하여 교반 시간을 14 시간에서 1 시간으로 줄일 수 있었다.21) 이렇 게 용액 공정으로 제조된 LAO/STO 이종 구조의 경우 별 도의 진공 열처리를 수반하는 경우가 일반적이기 때문에, PLD로 제조된 2DEG와 비교하였을 때 계면에서 상대적 으로 멀리 떨어진 STO bulk 영역에서 산소결함에서 비롯 된 전자가 다수 존재하여 면저항이 작은 특성을 보인다.<sup>22)</sup> 이러한 용액 공정을 통한 LAO/STO 계면의 전기적 특 성에 대한 보고가 이어져 왔지만, 방대한 연구가 이루어 진 PVD 공정에 의한 계면과 비교하여, LAO 층의 두께 가 전기적 특성에 미치는 영향 등에 대한 보고는 아직까 지 이루어지지 않은 상태이다. 본 연구에서는 LAO 박막 제조를 위한 전구체 용액을 준비한 후, 농도를 조절하여 LAO 박막의 두께를 ~2 nm에서 65 nm까지 바꾸었다. 이

때 구조적, 전기적 특성을 파악하여, 각각의 샘플에서 일 어나는 현상을 해석하고자 하였다.

#### 2. 실험 방법

#### 2.1. LaAlO<sub>3</sub> 용액 제조

LAO용액에서 용질은 Lanthanum(III)actate hydrate(La (CH<sub>3</sub>COOH)<sub>3</sub>, 99.9%, Sigma Aldrich)와 Aluminum nitrate nonahydrate(Al(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>, 99.99%, Sigma Aldrich)를 1:1비율로 사용하였다.<sup>21)</sup> 이 때, Acetylacetone (99%, Sigma Aldrich) 을 1차 용매, 2:1비율의 Acetic acid (99%, Sigma Aldrich) 와 2-Methoxyethanol (99.9%, Sigma Aldrich)을 2차 용매로 사용하였다. 용매의 양이 동일한 상태에서 용질의 양을 다르게 하여 농도가 각각 0.2 M, 0.04 M, 0.01 M이 되도 록 조절하였다. 이를 상온에서 1시간동안 교반시켜 최종 적으로 투명 전구체 용액을 제조하였다 (Fig. 1(a)).

#### 2.2. LaAlO<sub>3</sub>/SrTiO<sub>3</sub> 이종 구조 제조

TiO<sub>2</sub>-terminated STO (001) 표면을 얻기 위하여, STO (001) 단결정 기판을 buffered hydrofluoric acid (BHF) 용 액에 40 초 동안 담군 후 증류수로 세척한다. 이후 900℃ 에서 6 시간 동안 열처리를 진행하였다. 열처리된 기판은 증류수, acetone, isopropyl alcohol (IPA) 용액에 각각 5 분 씩 초음파 세척기를 이용하여 세척하였다. 준비된 LAO 전구체 용액을 spin coater에 장착한 STO 기판 위에 떨어 뜨린 후 3000 rpm으로 30 초 동안 스핀코팅을 진행하였다 (Fig. 1(b)). 이후 hot plate 위에서 200℃로 3 분간 건조 과 정을 거친 후, air 분위기의 퍼니스에서 분당 5℃씩 승온 시켜 800℃에서 1 시간 동안 1 차 열처리 후 노냉(furnace cooling)시켰다. 2 차로 ~10<sup>-5</sup> Torr의 진공 퍼니스에서 800℃, 1 시간 동안 열처리한 후 노냉하여 LAO/STO의 계면에서 2DEG를 형성하였다.





#### 2.3. LaAlO<sub>3</sub>/SrTiO<sub>3</sub> 이종 구조 분석

LAO 박막의 구조를 확인하기 위해서 X선 회절분석기 (X-ray Diffractometer, SmartLab SE, Rigaku)를 사용하였다. LAO의 표면과 두께를 관찰하기 위해 전계방사전자주사 현미경(Field emission scanning electron microscope, JSM-IT500HR, JEOL)을 이용하였다. LAO 박막의 두께가 얇 아서 SEM으로 측정하기 어려운 0.01M LAO/STO 시편 의 경우 X선 반사율 측정(X-Ray Reflectometry)을 사용하 여 두께를 파악하였다. 전기적 측정을 위하여 Hall 효과 측정 장비(0.55 T)을 사용하여, van der Pauw 방식으로 면 저항과 이차원 캐리어 농도를 측정하였다.

## 3. 결과 및 고찰

용액 공정을 통해 전도성을 가지는 LAO/STO 계면을 얻기 위해, 두 단계의 열처리 과정을 진행하였다. 첫번째 열처리는 실험 과정에서 언급되었듯이 공기 중에서 800 ℃, 1시간 동안 행하여 졌고, 이 때 LAO 박막은 결정 화가 일어나며 c-axis 방향으로 성장됨을 XRD를 통해 확 인할 수 있었다 (Fig. 2(a)). 이렇게 제조된 LAO/STO 계 면은 전도성을 나타내지 않았는데, 이는 공기 중에서의 열처리가 STO에 일정 수준 이상의 산소결함을 형성시키 지 못했기 때문에 캐리어 농도가 충분하지 못한 것으로 생각되었다. 따라서 ~10<sup>-5</sup> Torr의 고진공에서 800℃, 1 시 간 추가 열처리를 진행하였으며, 이후 LAO/STO 계면이 전도성을 띄는 것을 확인하였다. 진공 열처리 후의 XRD 는 Fig. 2(b)에 나타나 있다. 진공 열처리 전과 비교하여 XRD 패턴에는 거의 변화가 없는 것으로 보아, 진공 열처 리는 LAO층의 결정성 등에는 거의 영향을 미치지 않고, 오직 STO 쪽의 산소가 LAO 층으로 이동하며 산소 결함 을 유발하는 역할을 하는 것으로 사료된다. 이 때 산소 결 함은, 800℃, 1 시간 열처리 과정에서 대부분 형성되었을 것으로 생각되며, 노냉 과정에서의 형성은 제한적일 것 으로 생각된다. LAO/STO 계면의 전기적 특성에 대한 분

석은 후에 다시 설명하도록 한다.

XRD 분석 결과에서 알 수 있듯이, LAO 전구체 용액 의 농도가 높아질수록 LAO (001) 회절 신호의 세기가 강 하게 나타남을 알 수 있다. LAO가 형성되지 않은 bare STO 기판과 비교하였을 때, 예상과 같이 높은 농도의 용 액을 사용하였을 때 LAO 박막의 두께가 증가하는 것이 확인되었다. 이러한 LAO 박막의 두께 및 표면을 관찰하 기 위하여 전계주사전자현미경을 사용하여 샘플을 분석 하였다. 0.2 M, 0.04 M, 0.01 M 세 농도의 용액을 사용한 박막에서 모두 평탄한 표면을 보이는 것을 확인할 수 있 었다. 단면 사진으로 확인한 결과, 0.2 M 용액을 사용한 경우 LAO의 두께는 약 65 nm (Fig. 3(a)), 0.04 M을 사용 한 경우 약 40 nm 로 확인되었다 (Fig. 3(b)). 0.01 M을 사 용한 경우, 두께가 SEM으로 확인되지 않을 만큼 얇아, X 선 반사율 측정 (X-ray reflectivity, XRR) 법을 사용하였 다. Fig. 3(d)에서 확인할 수 있듯이, 이 때 샘플의 두께는 약 2 nm로 확인되었다.

LAO/STO 계면의 전기적 특성을 파악하기 위하여, van der Pauw 방식을 사용하여 면저항 및 이차원 캐리어 농 도를 도출하였다. Fig. 4(a)에서 확인할 수 있듯이 면저항 의 값은 0.015~0.020 Ω·sq<sup>-1</sup> 범위의 값을 나타내었는데, 기 존의 보고들과 비교하였을 때, 10<sup>-4</sup> Torr 이하의 고진공 중 에서 PLD 공정으로 제조된 LAO/STO 계면과 유사한 수 준의 상온 면저항을 가지고 있음을 알 수 있다.<sup>1)</sup> 이는 진 공 열처리 과정에서 형성되는 STO 기판의 산소 결함이 캐리어를 공급하는 주된 요소임을 나타내는 것이다. 또 한 LAO 용액의 농도가 높아질수록, 즉 LAO의 두께가 두 꺼울수록 면저항이 낮아지는 것을 확인할 수 있었다. 이 는 진공 열처리 과정에서, STO에서 LAO쪽으로 산소가 이동하게 되는데, 두꺼운 LAO에서 더 많은 산소를 STO 에서 가져옴으로 인하여 STO에 산소결함이 더 많이 유 발되는 것으로 사료되나, 정확한 메커니즘에 대하여는 후 속 연구가 필요할 것이다. 또한 LAO 표면 쪽으로의 전도 성을 검증하기 위하여, LAO 박막을 같은 조건으로 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>



Fig. 2. X-ray diffraction patterns of LAO/STO thin films using different concentration of LAO precursor solution of 0.2 M, 0.04 M, and 0.01 M (a) before vacuum annealing (b) after vacuum annealing.



Fig. 3. (a)-(c) Surface morphologies and cross-sectional (inset) SEM images of LAO/STO thin films using different concentration of LAO precursor solution: (a) 0.2 M, (b) 0.04 M, (c) 0.01 M. (d) XRR curve of LAO/STO thin film using LAO precursor solution of 0.01 M.



Fig. 4. Electrical properties of LAO/STO films using different concentration of LAO precursor solution of 0.2 M, 0.04 M, and 0.01 M at room temperature: (a) Sheet resistance (b) carrier concentration (two-dimensional).

단결정 기판 위에 성장시켜 2 단계의 열처리 과정을 거 쳤다. 하지만 이 샘플에서는 전도성이 관측되지 않아, LAO/STO이종 구조에서의 전자 이동은 STO를 따라 일 어남을 확인할 수 있었다.

이러한 용액 공정으로 제조된 LAO/STO 계면의 낮은 면저항은, 계면 근처 뿐만 아니라 산소 결함에 따른 더 깊 은 영역의 STO를 통해서도 전하 이동 채널이 형성되어 있음을 생각할 수 있으며, 이는 캐리어 농도를 통해서도 확인할 수 있다. Fig. 4(b)는 LAO 용액 농도에 따른 2차 원 캐리어 농도를 나타내고 있다. 캐리어의 농도는 2~4 × 10<sup>16</sup> cm<sup>-2</sup> 값을 나타내고 있으며, 이는 역시10<sup>4</sup> Torr 이하 의 고진공 중에서 PLD 공정으로 제조된 LAO/STO 계면 과 유사한 수준으로 생각할 수 있다.<sup>1</sup>) 유의할 점은 면저 항을 토대로 이차원 캐리어 농도가 계산되었지만, 실제 로는 삼차원 상의 채널을 통해 전도가 일어나기 때문에, 두 값을 토대로 산출한 전자이동도 (mobility) 값은 신뢰 하기 어려운 점이 있다. 하지만, 이러한 결과 역시 앞서 언급한 것과 같이 고진공에서 열처리된 LAO/STO 계면 의 경우, 계면 근처 뿐만 아니라 STO 기판 영역에서 전 자가 이동할 수 있음을 보여주는 결과라고 할 수 있다.

다른 용액 공정과의 결과와 비교해 보았을 때, 우리의 결과는 더욱 전도성이 높은 채널이 형성되었음을 확인할 수 있다. Khan et al.<sup>20)</sup>은 용액 공정을 통해 제조된 LAO/ STO (001) 계면에서 상온 면저항 4.79 kΩ·sq<sup>-1</sup> 을 얻었다. 이 때 샘플을 제조하기 위하여, 10<sup>-4</sup> Pa의 고진공, 700℃ 에서의 열처리 조건을 가졌는데, 열처리 온도가 본 연구 에 사용된 진공 열처리 조건보다 100℃가 낮았기 때문에 상대적으로 소량의 산소 결함이 형성되었고, 이에 따라 캐리어 수가 적어 면저항 값이 높게 나왔다고 생각할 수 있다. 또한 Li et al.<sup>22)</sup>는 본 연구와 유사하게, LAO/STO 박막을 제조 후 5.0×10<sup>4</sup> Pa의 고진공 및 800℃ 에서 열처 리를 진행하였으며, 이 때 면저항은 약 4 kΩ·sq<sup>-1</sup>로 확인 되었다. 이 결과와 비교하였을 때, 본 연구에서 같은 고 진공 열처리 온도를 사용하였음에도 더 낮은 비저항이 형 성되는 이유는 명확하지 않지만, STO 기판에 더 많은 산 소결함이 형성되었음에 기인하였을 가능성이 크다. 따라 서 향후 용액 공정으로 LAO/STO 이종구조 제작 시 고진 공 열처리 온도의 추가적인 탐색을 통해 기판으로의 전 자 이동을 제어하는 연구가 필요할 것으로 사료된다.

### 4.결 론

본 연구에서는 용액 공정을 사용하여 전도성을 가지는 LAO/STO 이종구조를 형성하는데 성공하였다. LAO 박 막을 STO(001) 단결정 기판에 성장시켰을 때, 진공 열처 리 과정이 전도성 채널을 형성하는데 필수적임을 확인할 수 있었다. 이 때 전도성 채널은 LAO/STO 계면에서 뿐 만 아니라 계면에서 더 깊은 영역의 STO 로도 일부 형성 되어, 높은 캐리어 농도를 나타냄을 확인할 수 있었다. 두 께가 두꺼운 막의 경우 더 높은 캐리어 농도와 낮은 면저 항을 나타내었는데, 이에 대한 효과는 진공 열처리 시 두 꺼운 LAO 층으로 더 많은 산소가 STO 기판에서 이동하 는 것으로 사료되나, 이 때 STO bulk 영역의 전도성 채널 을 이해하고 제어하기 위해서는 진공 열처리 조건의 탐 색 등의 후속 연구가 필요할 것으로 생각된다. 본 연구에 서 제시하고 있는 용액 공정을 기반으로 한 산화물 박막 이종구조는, 다양한 물리현상을 나타내는 소자 및 시스 템에 상대적으로 경제적인 공정을 응용할 수 있는 기반 을 마련한 것으로, 향후 여러 방면에서 활용될 것으로 기 대한다.

# 감사의 글

본 연구는 홍익대학교 신임교수 연구지원비에 의하여 지원되었음.

#### References

- A. Ohtomo, H. Y. Hwang, "A high-mobility electron gas at the LaAlO<sub>3</sub>/SrTiO<sub>3</sub> heterointerface", Nature, 427, 423-426 (2004)
- 2. V. T. Tra, J. W. Chen, J. W. Chen, P. C. Huang, B. C. Huang, Y. Cao, C. H. Yeh, H. J. Liu, E. A. Eliseev, A. N. Morozovska, J. Y. Lin, Y. C. Chen, M. W. Chu, P. W. Chiu, Y. P. Chiu, L. Q. Chen, C. L. Wu, and Y. H. Chu, "Ferroelectric Control of the Conduction at the LaAIO<sub>3</sub>/SrTiO<sub>3</sub> Heterointerface", Adv. Mater., 25, 3357-3364 (2013)

- A. Brinkman, M. Huijben, M. V. Zalk, J. Huijben, U. Zeitler, J. C. Maan, W. G. V. D. Wiel, G. Rijnders, D. H. A. Blank, and H. Hilgenkamp, "Magnetic effects at the interface between non-magnetic oxides", Nat. Mater., 6, 493-496 (2007)
- 4. N. Reyren, S. Thiel, A. D. Caviglia, L. F. Kourkoutis, G. Hammerl, C. Richter, C. W. Schneider, T. Kopp, A. S. Ruetschi, D. Jaccard, M. Gabay, D. A. Muller, J. M. Triscone, and J. Mannhart, "Superconducting interfaces between insulating oxides", Science, 317, 1196-1199 (2007)
- H. Lee, N. Campbell, J. Lee, T. J. Asel, T. R. Paudel, H. Zhou, J. W. Lee, B. Noesges, J. Seo, B. Park, L. J. Brillson, S. H. Oh, E. Y. Tsymbal, M. S. Rzchowski, and C. B. Eom, "Direct Observation of a Two-dimensional Hole Gas in Oxide Heterostructures", Nat. Mater., 17, 231-236 (2018)
- Y. Kim, D. Kim, S. H. Mo, S. H. Ryou, J. W. Lee, K. Eom, J. W. Rhim, and H. Lee, "Low-frequency noise behavior of quasi-two-dimensional electron systems based on complex oxide heterostructures", Curr. Appl. Phys., 59, 129-135 (2024)
- K. Eom, J. W. Lee, G. Yang, Y. Kim, J. Jeon, J. Yeon, and H. Lee, "Origin of the giant persistent photoconductivity in LaAlO<sub>3</sub>/SrTiO<sub>3</sub> heterostructures probed by noise spectroscopy", J. Mater. Sci. Technol., 137, 152-158 (2022)
- S. Lee, J. Jeon, and H. Lee, "Probing oxygen vacancy distribution in oxide heterostructures by deep Learning-based spectral analysis of current noise", Appl. Surf. Sci. 604, 154599 (2022)
- 9. J. W. Lee, J. Kim, K. Eom, J. Jeon, Y. C. Kim, H. S. Kim, Y. H. Ahn, S. Kim, C. B. Eom, and H. Lee, "Strong Interfacial Charge Trapping in Ultrathin SrRuO<sub>3</sub> on SrTiO<sub>3</sub> Probed by Noise Spectroscopy", J. Phys. Chem. Lett., 13, 5618-5625 (2022)
- N. Nakagawa, H. Y. Hwang, and D. A. Muller, "Why some interfaces cannot be sharp", Nat. Mater., 5, 204-209 (2006)
- Z. Zhong, P. X. Xu, and P. J. Paul, "Polarity-induced oxygen vacancies at LaAlO<sub>3</sub>/SrTiO<sub>3</sub> interfaces", Phys. Rev. B., 82, 165127 (2010)
- H. Lee, N. Campbell, S. Ryu, W. Chang, J. Irwin, S. Lindemann, M. K. Mahanthappa, M. S. Rzchowski, and C. B. Eom, "Reversible tuning of two-dimensional electron gases in oxide heterostructures by chemical surface modification", Appl. Phys. Lett., 109, 191604 (2016)
- J. Jeon, K. Eom, Y. Hong, C. B. Eom, K. Heo and H. Lee, "Hot Electron Tunneling in Pt/LaAlO3/SrTiO3 Heterostructures for Enhanced Photodetection", ACS Appl. Mater. Interfaces 13, 47208-47217 (2021)
- M. Lee, Y. Kim, S. H. Mo, S. Kim, K. Eom, and H. Lee, "Optoelectronic Synapse based on Two-dimensional Electron Gas in Stoichiometry-controlled Oxide Heterostructures", Small, 2309851 (2024)
- G. Yang, Y. Kim, J. Jeon, M. Lee, D. Kim, S. Kim, K. Eom, and H. Lee, "Reversible Photomodulation of Two-Dimensional Electron Gas in LaAlO<sub>3</sub>/SrTiO<sub>3</sub> Heterostructures", Nano Lett., 23, 6369-6377 (2023)
- J. Jeon, K. Eom, M. Lee, S. Kim, H. Lee, "Collective Control of Potential-Constrained Oxygen Vacancies in Oxide Heterostructures for Gradual Resistive Switching", Small, 2301452 (2023)
- S. Lee, J. Jeon, K. Eom, C. Jeong, Y. Yang, J. Y. Park, C. B. Eom and H. Lee, "Variance-aware weight quantization of multi-level resistive switching devices based on Pt/LaAlO<sub>3</sub>/

SrTiO<sub>3</sub> Heterostructures", Sci. Rep., 12, 9068 (2022)

- M. P. Warusawithana, C. Richter, J. A. Mundy, P. Roy, J. Ludwig, S. Paetel, T. Heeg, A. A. Pawlicki, L. F. Kourkoutis, M. Zheng, M. Lee, B. Mulcahy, W. Zander, Y. Zhu, J. Schubert, J. N. Eckstein, D. A. Muller, C. S. Hellberg, J. Mannhart, and D. G. Schlom, "LaAlO<sub>3</sub> stoichiometry is key to electron liquid formation at LaAlO<sub>3</sub>/SrTiO<sub>3</sub> interfaces", Nat. Comun., 4, 2351 (2013)
- 19. J. P. Podkaminer, T. Hernandez, M. Huang, S. Ryu, C. W. Bark, S. H. Baek, J. C. Frederick, T. H. Kim, K. H. Cho, J. Levy, M. S. Rzchowski, and C. B. Eom, "Creation of a two-dimensional electron gas and conductivity switching of nanowires at the LaAlO<sub>3</sub>/SrTiO<sub>3</sub> interface grown by 90° off-

axis sputtering" Appl. Phys. Lett., 103, 071604 (2013)

- 20. T. Khan, H. Zhang, H. Zhang, X. Yan, D. Hong, F. Han, Y. Chen, B. Shen, and J. Sun, "High mobility 2-dimensional electron gas at LaAlO<sub>3</sub>/SrTiO<sub>3</sub> interface prepared by spin coating chemical methods", Nanotechnology, 28, 435701 (2017)
- J. Fu, J. Zhao, T. Sa, N. Qin, and D. Bao, "Photoluminescent and dielectric properties of Eu<sup>3+</sup>-doped LaAlO<sub>3</sub> thin films fabricated by chemical solution deposition method", Appl. Surf. Sci., 286, 1-6 (2013)
- M. Li, R. Yang, Y. Zhao, S. Wang, and K. Jin, "A comparison of LaAlO<sub>3</sub>/SrTiO<sub>3</sub> heterointerfaces grown by spin coating and pulsed laser deposition methods", J. Cryst. Growth, 558, 125912 (2021)