

УДК 538.9

ПОЛУЧЕНИЕ И ЭЛЕКТРОННЫЙ ТРАНСПОРТ В ТОНКИХ ПЛЕНКАХ ИРИДАТА СТРОНЦИЯ

© 2024 г. И. Е. Москаль^{1, 2, *}, А. М. Петржик¹, Ю. В. Кислинский¹, А. В. Шадрин^{1, 2},
Г. А. Овсянников¹, Н. В. Дубицкий³

¹Федеральное государственное бюджетное учреждение науки “Институт радиотехники и электроники имени В. А. Котельникова Российской академии наук”, Москва, Россия

²Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования “Московский физико-технический институт (национальный исследовательский университет)”, Долгопрудный, Россия

³Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования “МИРЭА – Российский технологический университет” Москва, Россия

*E-mail: ivan.moscal@yandex.ru

Поступила в редакцию 15.11.2023

После доработки 22.11.2023

Принята к публикации 28.12.2023

Представлены результаты исследования эпитаксиальных тонких пленок SrIrO_3 , приведены данные по технологии роста, кристаллической структуре и электронному транспорту. В пленках SrIrO_3 , напыленных в смеси газов Ag и O_2 , зависимость сопротивления от температуры имеет металлический характер. Пленки, полученные в чистом аргоне, могут иметь как металлический, так и диэлектрический ход зависимости сопротивления от температуры при разных условиях напыления по давлению и температуре. Для диэлектрических образцов рассчитана энергия активации и проведено сравнение с энергией активации для пленок Sr_2IrO_4 .

DOI: 10.31857/S0367676524040211, EDN: QGROJC

ВВЕДЕНИЕ

Ириидаты семейства Раддлсдена-Поппера $\text{Sr}_{n+1}\text{Ir}_n\text{O}_{3n+1}$ интересны своими необычными свойствами, которые объясняют сильной спин-орбитальной связью, энергия которой составляет около $\lambda \approx 0.5$ эВ, и умеренным электрон-электронным взаимодействием, энергия которого равна $U \approx 2.0$ эВ. Пленки иридата стронция различного состава демонстрируют различные свойства, так, например, SrIrO_3 является парамагнитным металлом, а диэлектрический Sr_2IrO_4 демонстрирует антиферромагнитный порядок при температурах ниже 240 К.

Sr_2IrO_4 проявляет свои необычные свойства в контактах с другими материалами, в частности в гетероструктуре $\text{Nb/Sr}_2\text{IrO}_4/\text{YBa}_2\text{CuO}_x$ был зарегистрирован сверхпроводящий ток при толщинах промежуточного слоя из Sr_2IrO_4 $d = 5$ и 7 нм [1]. Для гетероструктур с толщиной Sr_2IrO_4 $d = 5$ нм был обнаружен пик проводимости при нулевом смещении “zero bias peak” и необычные ступени Фиске [2]. Парамагнитный металл SrIrO_3 обеспечил в гетероструктуре $\text{SrIrO}_3/\text{LaSrMnO}_3$ возникновение спинового тока на границе раздела [3].

Синтез тонких пленок иридата стронция имеет ряд особенностей, так из одной и той же мишени можно получить пленки различных фаз. В работе [4] были получены пленки составов SrIrO_3 , Sr_2IrO_4 и $\text{Sr}_3\text{Ir}_2\text{O}_7$ из металлической мишени SrIrO_3 , а в работе [5] пленки этих же составов удалось синтезировать из диэлектрической мишени $\text{Sr}_3\text{Ir}_2\text{O}_7$.

Тонкие пленки SrIrO_3 обычно показывают металлическую зависимость сопротивления от температуры, однако при уменьшении толщины до 2 нм металлический ход сменяется на диэлектрический [6]. В работе [4] показаны изменения в характере зависимости сопротивления от температуры при различном давлении кислорода [4], с уменьшением рабочего давления кислорода сопротивление синтезированных тонких пленок SrIrO_3 увеличивается.

В данной работе обсуждаются эпитаксиально выращенные тонкие пленки SrIrO_3 , полученные методом катодного распыления на постоянном токе. В пленках, напыленных в смеси газов Ag и O_2 , зависимость сопротивления от температуры имеет металлический характер. В пленках, полученных в чистом аргоне, кривая зависимости сопротивления от температуры может приобретать различный характер, так при высокой температуре и низком

Таблица 1. Параметры напыления образцов и характер зависимости $R(T)$ для них.

Образец	P , мбар (атмосфера)	T , С	c -параметр, Å	Характер зависимости $R(T)$
N1	0.25 (7Ar/2O ₂)	770	4.04	металлический
SO1	0.6 (1Ar/1O ₂)	820	4.04	металлический
N2	1.3 (Ar)	750	3.98	металлический
SO2	0.4 (Ar)	820	4.07	диэлектрический

давлении Ag пленки SrIrO_3 приобретают диэлектрическую зависимость сопротивления от температуры, сравнимую с зависимостью сопротивления от температуры для диэлектрических тонких пленок Sr_2IrO_4 . Особенностью пленок, полученных в чистом Ar, является примесь поликристаллического иридия, которая отсутствует в пленках, полученных в смеси Ar и O₂.

МЕТОДИКА ИЗГОТОВЛЕНИЯ
ТОНКИХ ПЛЕНОК SrIrO_3

Тонкие пленки наносились на подложки (110) NdGaO_3 (NGO) и (100) SrIrO_3 (STO) методом катодного распыления на постоянном токе. Мишень изготавливалась из смеси порошков SrCO_2 и IrO_2 по стандартной керамической технологии [7], диаметр мишени – 1 дюйм, размер подложек $5 \times 5 \text{ мм}^2$. Для роста использовалась высоковакуумная установка Leybold Z400. Рабочее напряжение на катоде 400 В, ток катода 0.1 А, расстояние между мишенью и подложкой 20 мм. Рассмотрим ниже две серии полученных образцов: первая серия была напылена в смеси аргона и кислорода, образцы N1 и SO1, а вторая – в чистом аргоне, образцы N2 и SO2, см. табл. 1.

Пленки, полученные в чистом Ar, могут иметь как диэлектрическую зависимость сопротивления от температуры, так и характерную для SrIrO_3 металлическую. В пленке N2, синтезированной при температуре подложки $T = 750^\circ\text{C}$ и рабочем давлении 1.3 мбар, а также в пленке SO₂, полученной при температуре подложки $T = 820^\circ\text{C}$ и рабочем давлении 0.4 мбар, наблюдается примесь металлического поликристаллического иридия. Обе пленки наносились на идентичные подложки (110) NdGaO_3 .

В пленках, напыленных в смеси Ar и O₂, наблюдается типичное для SrIrO_3 сопротивление порядка 100–150 Ом/квадрат. Образец SO1 был напылен при рабочем давлении 0.4 мбар в смеси Ar и O₂ в пропорции 1:1, в пленке не обнаружено побочной фазы поликристаллического иридия. Образец N1, напыленный при давлении 0.25 мбар в смеси Ar и O₂ при пропорции 7/2, также не имеет примеси поликристаллического иридия. Образец SO1 был напылен на подложку SrTiO_3 , а образец N1 – на подложку NdGaO_3 .

РЕНТГЕНОСТРУКТУРНЫЙ АНАЛИЗ
ТОНКИХ ПЛЕНОК SrIrO_3

Пленки напылялись на подложки (110) NdGaO_3 с a -параметром (при псевдокубическом представлении) решетки 3.85 Å и на подложки (001) SrTiO_3 , у которых $a = 3.90 \text{ Å}$. Для псевдокубического монокристаллического перовскита SrIrO_3 a -параметр равен 3.96 Å [8]. Значение c -параметра для эпитаксиально выращенных пленок SrIrO_3 варьируется от 3.96 до 4.04 Å, в зависимости от режимов напыления и используемой подложки [4, 9]. Наши данные, полученные с помощью рентгеновской дифракции, представлены на рис. 1. Рентгеновские дифрактограммы снимались 3-кружным дифрактометром Rigaku на длине волны Cu K-альфа с использованием монохроматора. На рисунке показаны рентгеновские дифрактограммы для образцов, напыленных в чистом аргоне и в смеси аргон / кислород. Видно, что примесь поликристаллического иридия присутствует в пленках, синтезированных в чистом аргоне (образцы N2, SO2), причем c -параметр для этих пленок сильно отличается. Пленка N2 соответствует перовскитной фазе SrIrO_3 с c -параметром 3.98 Å.

Для образца SO2, зависимость сопротивления от температуры которого имеет диэлектрический ход, показанный на рис. 1 рефлекс от SrIrO_3 , однозначно не разрешается из-за наложения на пик от подложки, поэтому c -параметр, равный 4.07, для этого образца был определен по следующему рефлексу от SrIrO_3 при больших углах 2θ .

Для образцов, напыленных в смеси газов, (образцы N1, SO1) c -параметр решетки равен 4.04 Å и соответствует перовскитной фазе SrIrO_3 .

ЭЛЕКТРОТРАНСПОРТНЫЕ
ХАРАКТЕРИСТИКИ ПЛЕНОК SrIrO_3

Полученные пленки можно разделить на диэлектрические и металлические, см. рис. 2. SO2 имеет сопротивление, сопоставимое с сопротивлением диэлектрических пленок Sr_2IrO_4 . Ранее уже сообщалось о диэлектрическом ходе сопротивления у пленок SrIrO_3 [6,9], однако сопротивление пленок, полученных в указанных работах, на несколько порядков меньше, чем у пленки SO2.

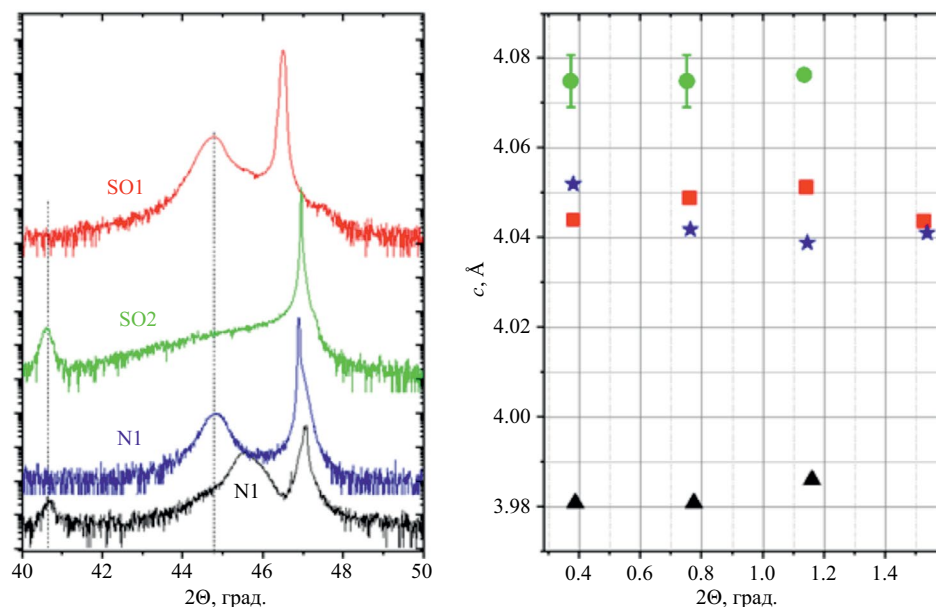


Рис. 1. Слева: участок рентгеновской дифрактограммы, на котором хорошо видно существенное различие в c -параметрах полученных образцов и наличие или отсутствие рефлекса от поликристаллического Ir. Справа: определенный из дифрактограмм c -параметр иридата стронция в зависимости от угла 2θ . Круг – образец SO2, квадрат – SO1, звезда – N1, треугольник – N2.

Такое высокое сопротивление сопровождается увеличенным c -параметром кристаллической структуры пленки и образованием поликристаллического иридия в пленке. Для пленок N1 и SO1, напыленных в смеси аргона и кислорода, наблюдалось металлическое поведение зависимостей сопротивлений от температуры: с понижением температур уменьшаются их сопротивления. Для образца N2 сопротивление имеет несколько необычный характер: при нагреве до $T = 250$ К оно падает, а далее начинает увеличиваться.

Для диэлектриков зависимость сопротивления от температуры описывается законом термической активации носителей и имеет вид:

$$\rho(T) = \rho_0 \exp\left(\frac{\Delta E_A}{2kT}\right), \quad (1)$$

где ρ – удельное сопротивление, k – постоянная Больцмана, T – температура.

Зависимость сопротивления от температуры для образца SO2 и для пленки Sr_2IrO_4 , полученной ранее, аппроксимированы по модели термической активации, как показано на рис. 3. Аппроксимация нашей экспериментальной зависимости дает значение ΔE_A около 100 мэВ для образца SO2. Из литературы известно, что энергия активации для пленок Sr_2IrO_4 составляет около 60 мэВ, а для пленки SrIrO_3 с толщиной 2 нм энергия активации составляла 6 мэВ [6]. Теоретическая ширина запрещенной зоны Sr_2IrO_4 приблизительно равна 620 мэВ

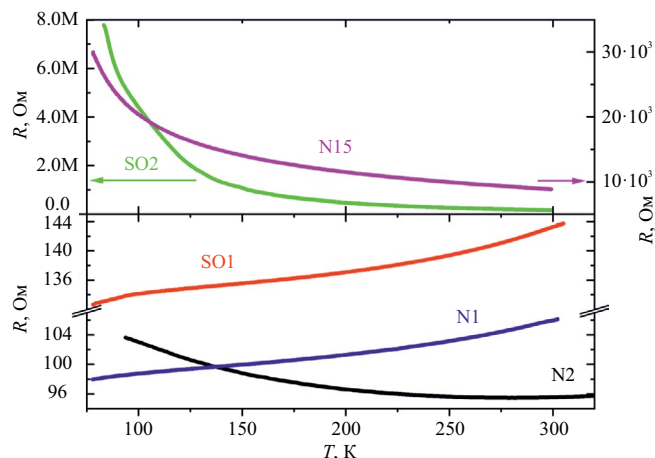


Рис. 2. Сравнение зависимостей сопротивления от температуры образцов с металлическим ходом кривой, сопротивление которых составляет порядка 100–150 Ом, и диэлектрического образца, сопротивление которого увеличивается до 8 МОм с уменьшением температуры до 77 К.

[10]. В экспериментальных работах значение варьируется от 60 мэВ в статье [6] до 200 мэВ в [7].

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Описана технология роста тонких пленок SrIrO_3 методом катодного распыления на постоянном токе, представлены рентгеновские

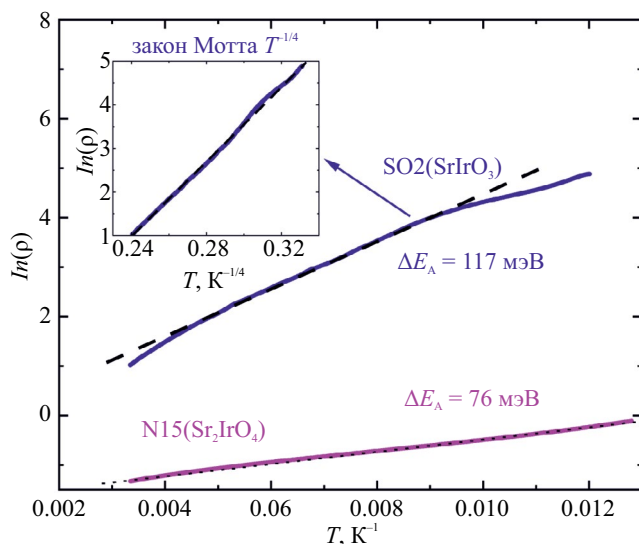


Рис. 3. Сравнение энергии активации от температуры для образца SO2 с диэлектрическим ходом сопротивления с диэлектрической пленкой Sr_2IrO_4 .

дифрактограммы и электрофизические характеристики полученных эпитаксиальных тонких пленок. В полученных пленках было обнаружено необычно высокое сопротивление для данного материала, сравнимое с диэлектрическими пленками Sr_2IrO_4 . У полученных диэлектрических пленок SrIrO_3 энергия активации $\Delta E_A \approx 100$ мэВ, что даже превышает энергию активации некоторых образцов Sr_2IrO_4 , описанных в литературе, с $\Delta E_A \approx 60$ мэВ. Для полученных высокорезистивных пленок SrIrO_3 интересной особенностью является увеличенный c -параметр кристаллической решетки, $c \approx 4.07$ Å, хотя, согласно, опубликованным

экспериментальным работам c -параметр пленок SrIrO_3 обычно варьируется лишь в диапазоне 3.96–4.04 Å.

Исследование поддержано Российским научным фондом (проект № 23-49-10006, <https://rscf.ru/project/23-49-10006/>).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Petrzlik A.M., Constantinian K.Y., Ovsyannikov G.A. et al. // Phys. Rev. B. 2019. V. 100. Art. No. 024501.
2. Petrzlik A.M., Constantinian K.Y., Ovsyannikov G.A. et al. // J. Surf. Invest. X-Ray Synchrotron Neutron Techn. 2020. V. 14. No. 3. P. 547.
3. Ovsyannikov G.A., Constantinian K.Y., Shmakov V.A. et al. // Phys. Rev. B. 2023. V. 107. Art. No. 144419.
4. Kazunori Nishio, Harold Y. Hwang // APL Materials. 2016. V. 4. Art. No. 036102.
5. Gutierrez-Llorente A., Iglesias L., Rodr'iguez-Gonz'alez B., Rivadulla F. // APL Materials. 2018. V. 6. Art. No. 091101.
6. Fuentes V., Vasic B., Konstantinovic Z. et al. // J. Magn. Magn. Mater. 2020. V. 501. Art. No. 166419.
7. Петржик А.М., Cristiani G., Логвенов Г. и др. // Письма в ЖТФ. 2017. Т. 43. № 12. С. 25; Petrzlik A.M., Cristiani G., Logvenov G. et al. // Tech. Phys. Lett. 2017. V. 43. No. 6. P. 554.
8. Biswas A., Jeong Y.H. // Current Appl. Phys. 2017. V. 17. P. 605.
9. Кислинский Ю.В., Овсянников Г.А., Петржик А.М. и др. // ФТТ. 2015. Т. 57. № 12. С. 2446; Kislin-skii Yu.V., Ovsyannikov G.A., Petrzlik A.M. et al. // Phys. Solid State. 2015. V. 57. No. 12. P. 2519.
10. Gao G., Schlottmann P. // Rep. Prog. Phys. 2018. V. 81. Art. No. 042502.

Production and electronic transport in thin films of strontium iridate

I. E. Moskal^{1, 2}*, A. M. Petrzlik¹, Yu. V. Kislinskiy¹, A. V. Shadrin^{1, 2}, G. A. Ovsyannikov¹, N. V. Dubitskiy³

¹Kotelnikov Institute of Radio Engineering and Electronics of the Russian Academy of Sciences, Moscow, 125009 Russia

²Moscow Institute of Physics and Technology (National Research University), Dolgoprudny, 141701 Russia

³Russian Technological University – MIREA, Moscow, 119454 Russia

*e-mail: ivan.moscal@yandex.ru

The results of the study of epitaxial thin films of SrIrO_3 are presented, data on growth technology, crystal structure and electronic transport are presented. In SrIrO_3 films received in a mixture of Ar and O_2 gases, the dependence of resistance on temperature has a metallic character. For the films deposited in pure argon, the resistance versus temperature curves shows both a metallic and a dielectric behavior. It depends on the deposition pressure and the deposition temperature. The activation energy was calculated for dielectric samples and compared with the activation energy for Sr_2IrO_4 films.