ВЛИЯНИЕ УСЛОВИЙ РОСТА НА СТРУКТУРУ И ЭЛЕКТРОННЫЙ ТРАНСПОРТ ЭПИТАКСИАЛЬНЫХ ТОНКИХ ПЛЕНОК SRIRO₃

GROWTH CONDITIONS EFFECT ON STRUCTURE AND ELECTRONIC TRANSPORT IN EPITAXIAL SRIRO3 THIN FILMS

дубицкий н.в.

магистр 1 курса Физического факультета, Национальный исследовательский университет «Высшая школа экономики». Инженер, институт радиотехники и электроники им. В.А. Котельникова РАН, Москва

БАЙДИКОВА В.А.

магистр 2 курса кафедры системной инженерии, ИИИ РТУ МИРЭА. Инженер, институт радиотехники и электроники им. В.А. Котельникова РАН, Москва

ПЕТРЖИК А.М.

к.ф.-м. н. Институт радиотехники и электроники им. В.А. Котельникова РАН, Москва

ОВСЯННИКОВ Г.А.

д.ф.-м. н. Институт радиотехники и электроники им. В.А. Котельникова РАН, Москва

DUBITSKIY N.V.

1st year Master's student of Physics Faculty, National Research University Higher School of Economics. Engineer, Kotel'nikov Institute of Radio Engineering and Electronics, Russian Academy of Sciences, Moscow

BAYDIKOVA V.A.

2nd year Master's student of systems engineering, Institute of Artificial Intelligence of MIREA – Russian Technological University. Engineer, Kotel'nikov Institute of Radio Engineering and Electronics, Russian Academy of Sciences, Moscow

PETRZHIK A.M.

Candidate of Physical and Mathematical Sciences, Kotel'nikov Institute of Radio Engineering and Electronics, Russian Academy of Sciences, Moscow

OVSYANNIKOV G.A.

Doctor of Physical and Mathematical Sciences, Kotel'nikov Institute of Radio Engineering and Electronics, Russian Academy of Sciences, Moscow Аннотация: Исследованы эпитаксиальные тонкие пленки SrIrO₃ толщиной 11-53 нм, выращенные методом высокочастотного катодного распыления на подложках SrTiO₃ при различном парциальном давлении газовой смеси Ar/O₂ в диапазоне 0.25-0.75 мбар. Рентгеноструктурный анализ выявил формирование значительных механических напряжений и деформацию решетки пленок. Установлен переход от металлического к полупроводниковому поведению проводимости в диапазоне температур 77-300 К с уменьшением толщины, обусловленный изменением параметров носителей заряда и электрон-магнонного рассеяния. Обнаружена корреляция между структурным совершенством и электронным транспортом, определяемая степенью релаксации напряжений. Показано, что варьирование парциального давления газовой смеси позволяет контролировать электронные свойства пленок. Полученные результаты создают основу для разработки функциональных оксидных гетероструктур с управляемыми характеристиками для применений в спинтронике

Ключевые слова: тонкие пленки SrIrO₃, эпитаксиальный рост, катодное распыление, механические напряжения, рентгеновская дифракция, электронный транспорт, релаксация напряжений Annotation. Epitaxial thin films of SrIrO₃ with thicknesses ranging from 11-53 nm were grown by radio frequency magnetron sputtering on SrTiO₃ substrates under varying partial pressures of the Ar/O_2 gas mixture in the range of 0.25-0.75 mbar. X-ray structural analysis revealed the formation of significant mechanical stresses and lattice distortion in the films. A transition from metallic to semiconducting conduction behavior was observed in the 77-300 K temperature range with decreasing thickness, attributed to changes in charge carrier localization parameters and electron-magnon scattering. A correlation was found between structural perfection and electronic transport, determined by the degree of stress relaxation. Tuning the partial pressure of the gas mixture was shown to allow control over the electronic properties of the films by modulating the concentration of oxygen vacancies. The obtained results provide a foundation for the development of functional oxide heterostructures with tailored characteristics for spintronics applications

Keywords: SrIrO₃ thin films, epitaxial growth, cathode sputtering, mechanical strain, X-ray diffraction, electronic transport, strain relaxation

ВВЕДЕНИЕ

Перовскит SrIrO₃ привлекает значительное внимание благодаря уникальному сочетанию металлической проводимости и сильного спин-орбитального взаимодействия [1,2]. Недавние исследования показали критическую зависимость свойств SrIrO₃ от условий роста и деформации решетки [3,4]. Эпитаксиальные напряжения являются значимым инструментом модификации функциональных характеристик через изменение перекрытия орбиталей и зонной структуры [5]. При этом концентрация кислородных вакансий, определяемая параметрами синтеза, вносит дополнительный вклад в формирование электронного транспорта [6].

Несмотря на активные исследования, взаимосвязь между условиями роста, структурой и электронными свойствами пленок SrIrO₃ остается малоизученной, что препятствует созданию высококачественных гетероструктур для практических приложений. В данной работе демонстрируется возможность прецизионного контроля структурного совершенства и проводимости в эпитаксиальных пленках SrIrO₃ через оптимизацию параметров высокочастотного катодного распыления. Комбинация рентгеноструктурного анализа и электрофизических измерений позволила установить фундаментальные корреляции между условиями роста, деформацией решетки и механизмами электронного транспорта. Полученные результаты открывают новые возможности для инженерии функциональных свойств оксидных гетероструктур.

МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Эпитаксиальные тонкие пленки SrIrO₃ толщиной 11-53 нм были синтезированы методом высокочастотного катодного распыления на монокристаллических подложках (001)SrTiO₃. Рост осуществлялся при температуре подложки 770 °C в атмосфере Ar/O₂ с давлением 0.25-0.75 мбар и соотношением потоков Ar/O₂ = 10/35. В качестве мишени использовался спрессованный порошок SrIrO₃ стехиометрического состава. Кристаллическая структура и деформация решетки исследовались методом рентгеновской дифракции на дифрактометре Rigaku SmartLab (излучение $CuK_{\alpha 1}$). Фазовый состав и ориентация определялись из θ-

20 сканов, а оценка деформации оценивалась по положению и форме пиков в симметричной брэгговской геометрии. Электрофизические свойства изучались четырехзондовым методом Монтгомери в интервале температур 77-300 К. Температурные зависимости сопротивления R(T) регистрировались в режиме непрерывного охлаждения со скоростью 1 К/мин при токе 100 мкА. Выбранные методики позволили провести комплексное исследование взаимосвязи между условиями роста, структурными характеристиками и электронным транспортом в плен-ках SrIrO₃.

СТРУКТУРНЫЕ СВОЙСТВА И ОСОБЕННОСТИ РОСТА ТОНКИХ ПЛЕНОК SRIRO3

Для исследования структурных особенностей эпитаксиальных тонких пленок SrIrO₃, выращенных на монокристаллических подложках SrTiO₃, были проведены измерения методом рентгеновской дифракции. Дифрактограммы θ -20 (рис. 1) демонстрируют интенсивные пики (00n) от пленки SrIrO₃ и подложки SrTiO₃, свидетельствующие о формировании высокоориентированной монокристаллической структуры. Сдвиг положений пиков пленки в сторону меньших углов относительно подложки указывает на больший параметр *c* решетки пленки из-за растягивающих эпитаксиальных напряжений [1,6]. Слабые пики металлического иридия свидетельствуют о присутствии небольшого количества включений Ir, вероятно, образующихся из-за недостатка кислорода и неполного окисления распыляемой мишени SrIrO₃ в процессе роста.



*Рис. 1. Рентгеновские дифрактограммы тонких пленок SrIrO*₃, выращенных на подложках SrTiO₃ при различном парциальном давлении смеси Ar/O₂, также присутствуют слабые пики Ir.

Количественные структурные параметры исследованных пленок SrIrO₃, выращенных при разных условиях, представлены в табл. 1. Толщина пленок t была определена из полуширин рентгеновских пиков по формуле Шеррера [3]:

$$\Delta(2\theta) = \frac{0.9\lambda}{t * \cos\theta} + \left(\frac{2\delta c}{c}\right) * \tan\theta, \tag{1}$$

где $\Delta(2\theta)$ – полуширина дифракционного пика, t – толщина пленки, θ – угол дифракции, $\delta c/c$ – относительная деформация решетки в направлении роста пленки, $\lambda = 1.54056$ Å – длина волны рентгеновского излучения $CuK_{\alpha 1}$.

Таблица 1. Структурные параметры эпитаксиальных тонких пленок SrIrO₃, выращенных на подложках

| Об- | <i>t</i> , HM | c, Å | $\delta c/c, 10^{-3}$ | m, | V _{eff} , Å ³ | <i>∆ω</i> , ° |
|-------|---------------|-----------|-----------------------|-----|-----------------------------------|---------------|
| разец | | | | % | | |
| BA03 | | 4.03±0.05 | 3.1±0.5 | 3.2 | 61.45±0.76 | 0.17±0.02 |
| | 53±14 | | | | | |
| BA04 | 11±3 | 4.01±0.03 | 0.9±0.4 | 3.4 | 61.15±0.46 | 0.82±0.07 |
| BA05 | 33±8 | 4.05±0.09 | 3.6±0.8 | 3.7 | 61.76±1.37 | 0.33±0.03 |

SrTiO₃, $\Delta \omega$ полуширина кривой качания для рефлекса (001).

Зависимость параметра c от парциального давления газовой смеси Ar/O₂ имеет немонотонный характер (рис. 2) с минимумом для образца ВА-04 (P(Ar/O₂) = 0.5 мбар). Эффективный объем элементарной ячейки пленок V_{eff} = 61.15-61.76 Å³ меньше объема идеального монокристалла SrIrO₃ (62.1 Å³), что указывает на сжатие кристаллической решетки, однако превышение параметром с значений для объемного кристалла SrIrO₃ (3.96 Å) и подложки SrTiO₃ (3.905 Å) свидетельствует о растягивающих напряжениях в направлении роста. Анализ структурных параметров показывает, что для самой тонкой пленки ВА04 (11 нм) наблюдается минимальная деформация $\delta c/c = 0.9 \times 10^{-3}$ при максимальной полуширине рентгеновского пика $\Delta \omega = 0.82^{\circ}$. С увеличением толщины до 33 нм (BA05) деформация возрастает до 3.6×10^{-3} , а $\Delta \omega$ снижается до 0.33°. При толщине 53 нм (ВА03) происходит частичная релаксация напряжений ($\Delta \omega = 0.17^{\circ}$, $\delta c/c = 3.1 \times 10^{-3}$). Рассогласование параметров решеток (m = 3.2-3.7 %) существенно превышает значение для идеального монокристалла SrIrO₃ (m = 1.4 %), что указывает на формирование значительных механических напряжений в гетероструктуре [8]. Наблюдаемое поведение обусловлено влиянием условий роста, нестехиометрии и дефектов, что приводит к неоднородному распределению напряжений по толщине пленки и существенно влияет на структурное совершенство и функциональные свойства тонких пленок SrIrO₃ [5].



Рис. 2. Зависимость параметра элементарной кристаллической ячейки от парциального давления газовой смеси Ar/O₂ для исследуемых эпитаксиальных тонких пленок SrIrO₃.

ЭЛЕКТРОННЫЙ ТРАНСПОРТ ТОНКИХ ПЛЕНОК SRIRO3

На рис. 3 представлены температурные зависимости нормированного сопротивления R/R_{300K} пленок SrIrO₃. Образцы демонстрируют различное поведение: для BA03 наблюдается слабый металлический характер проводимости во всем диапазоне температур, тогда как об разцы BA04 и BA05 показывают полупроводниковый рост сопротивления при понижении температуры [7]. При этом образец BA04 демонстрирует наиболее сильный рост R/R_{300K}. Экс периментальные зависимости R(T) хорошо описываются формулой [9], учитывающей вклады локализации носителей заряда и электрон-магнонного рассеяния:

$$R = R_0 - \alpha T^{3/4} + \beta T^{3/2}, \tag{2}$$

где R_0 , α , β – параметры, описывающие остаточное сопротивление, трехмерную локализацию и неупругое рассеяние, вызванное взаимодействием электронов с антиферромагнитными магнонами.



Рис. 3. Температурная зависимость сопротивления эпитаксиальных тонких пленок SrIrO₃, полученных на подложках SrTiO₃. Сплошными линиями приведены аппроксимации по формуле (2).

В табл. 2 приведены количественные параметры аппроксимации, которые демонстрируют существенные различия между образцами. Для образца ВА03 с металлическим характером проводимости наблюдаются минимальные значения коэффициентов α/R_0 и β/R_0 , что коррелирует с наименьшей полушириной дифракционного пика ($\Delta \omega = 0.17^{\circ}$) и указывает на лучшее структурное совершенство пленки. Образец ВА04, напротив, характеризуется максимальными значениями транспортных коэффициентов и наибольшей величиной $\Delta \omega = 0.82^{\circ}$, что свидетельствует о высокой плотности структурных дефектов. Наблюдаемая корреляция между структурными и транспортными характеристиками подтверждает определяющую роль кристаллического совершенства и деформации решетки в формировании электронных свойств эпитаксиальных пленок SrIrO₃.

Таблица 2. Параметры, полученные при аппроксимации температурных зависимостей сопротивления

| эпитаксиальных тонких пленок SrIrO ₃ по формуле | (2 | 2 |). | • |
|--|----|---|----|---|
|--|----|---|----|---|

| Образец | R ₀ , кОм | $\alpha/R_0, 10^{-3}$ | $\beta/R_0, 10^{-5}$ |
|---------|-----------------------------|-----------------------|----------------------|
| BA03 | 6.2 | 0.8±0.1 | 3.2±0.1 |
| BA04 | 13.9 | 14.6±0.1 | 9.6±0.1 |
| BA05 | 3.8 | 8.1±0.1 | 4.9±0.1 |

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В данной работе продемонстрировано управление структурными и электронными свойствами эпитаксиальных пленок SrIrO₃ толщиной от 11 до 53 нм через контроль параметров роста. Рентгеноструктурный анализ выявил формирование значительных механических напряжений вследствие рассогласования параметров решеток пленки и подложки SrTiO₃. Обнаружено уменьшение эффективного объема элементарной ячейки пленок относительно массивного монокристалла на 0.6-1.5 %, что указывает на сжатие решетки. Анализ полуширины дифракционных рефлексов показал зависимость структурного совершенства пленок от их толщины, что обусловлено различной степенью релаксации напряжений.

Обнаружена сильная корреляция между дефектами кристаллической решетки и электронным транспортом в диапазоне температур 77-300 К. Исследуемые образцы демонстрируют переход от металлического к полупроводниковому поведению с уменьшением толщины, что сопровождается значительным усилением локализации носителей заряда и электрон-магнонного рассеяния.

Полученные результаты раскрывают механизмы формирования электронных свойств в эпитаксиальных пленках SrIrO₃ и демонстрируют эффективный подход к созданию оксидных гетероструктур с контролируемыми характеристиками для применений в квантовой электронике и спинтронике.

Исследования выполнены при поддержке гранта Российского научного фонда № 23-49-10006 в рамках научного проекта по изучению влияния сильного спин-орбитального взаимодействия на свойства иридатов.

Список использованных источников

- Байдикова В. А., Дубицкий Н. В., Москаль И. Е. и др. Структурные особенности, электронный и спиновый транспорт в эпитаксиальных тонких пленках иридатов // РЭНСИТ. – 2024. – Т. 16. – № 4. – С. 509-518.
- Москаль И. Е., Кислинский Ю. В., Петржик А. М. и др. Рост эпитаксиальных тонких пленок антиферромагнетика Sr2IrO4 для гетероструктур спинтроники // Физика твердого тела. – 2024. – Т. 66. – № 7. – С. 1101-1105.
- Дубицкий Н. В., Байдикова В. А., Москаль И. Е. и др. Исследование структуры и электронного транспорта в тонкой пленке Sr2IrO4, выращенной на подложке NdGaO3 // Перспективные материалы и технологии (ПМТ-2024). 2024. С. 44-48.
- Moskal I. E. et al. Production of and Electronic Transport in Thin Films of Strontium Iridate //Bulletin of the Russian Academy of Sciences: Physics. – 2024. – T. 88. – №. 4. – C. 582-585.

- Kislinskii Y. V. et al. Strontium Iridates as Barrier Materials for Josephson Heterostructures //Russian Microelectronics. – 2023. – T. 52. – №. Suppl 1. – C. S53-S58.
- Sweers M. E. et al. Epitaxial strain-tuned oxygen vacancy formation, reduction behavior, and electronic structure of perovskite SrIrO3 //Physical Review Materials. – 2024. – T. 8. – №. 5. – C. 055801.
- Zhao W. et al. Thickness-driven formation of a magnetic insulating state in monoclinic SrIrO 3 films //Physical Review Materials. – 2024. – T. 8. – №. 10. – C. 105001.
- Kleindienst K. R. et al. Structural properties and anisotropic electronic transport in SrIrO3 films //Physical Review B. 2018. T. 98. №. 11. C. 115113.
- 9. Wu F. X. et al. Metal-insulator transition in SrIrO3 with strong spin-orbit interaction //Journal of Physics: Condensed Matter. 2013. T. 25. №. 12. C. 125604.