08,05

Структура и электронный транспорт в тонких пленках иридата стронция под влиянием эпитаксиальных напряжений, вызванных рассогласованием с подложкой

© Н.В. Дубицкий^{1,2}, В.А. Байдикова^{1,3}, А.М. Петржик¹, И.Е. Москаль¹, А.В. Шадрин^{1,4}, В.А. Шмаков¹, Г.А. Овсянников¹

¹ Институт радиотехники и электроники им. В.А. Котельникова РАН, Москва, Россия ² Национальный исследовательский университет «Высшая школа экономики», Физический факультет, Москва, Россия ³ МИРЭА — Российский технологический университет, Москва, Россия

⁴ Московский физико-технический институт,

Долгопрудный, Московская область, Россия

E-mail: nikita.dubitskiy@gmail.com

Поступила в Редакцию 6 марта 2025 г. В окончательной редакции 6 марта 2025 г. Принята к публикации 5 мая 2025 г.

> Эпитаксиальные тонкие пленки иридата стронция (SrIrO₃) получены методом высокочастотного магнетронного распыления на следующих монокристаллических подложках: (110)NdGaO₃, (001)SrTiO₃, (001)(LaAlO₃)_{0.3}(Sr₂TaAlO₆)_{0.7} (LSAT) и (110)Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O₃-PbTiO₃ (PMN-PT). С помощью рентгеновской дифракции изучены структурные особенности и влияние релаксации напряжений в тонких пленках, вызванных различием параметров элементарных ячеек решетки пленки и подложки. На основе анализа дифракционных данных установлено, что в пленках наблюдается изменение объема элементарной ячейки пленки по сравнению с объемом SrIrO₃ кристалла.

> Электронные транспортные параметры тонких SrIrO₃ пленок показывают существенную зависимость от типа используемой подложки и параметров напыления. Анализ температурной зависимости сопротивления выявил влияние рассеяния магнитных примесей, вызванных кислородными вакансиями, на электронный транспорт пленок. Методом рентгеновской фотоэлектронной спектроскопии определена величина спинорбитального расщепления для Ir 4f состояний, которая варьируется от 2.99 eV для SrIrO₃ пленки, напыленной на (001)SrTiO₃, до 3.10 eV для пленки на (110)PMN-PT, что связано с концентрацией кислородных вакансий, совершенством структуры и стехиометрией.

> Ключевые слова: тонкие SrIrO₃ пленки, эпитаксиальный рост, рассогласование решеток, кислородные вакансии, электронный транспорт.

DOI: 10.61011/FTT.2025.06.60964.4HH-25

1. Введение

Перовскитные оксиды переходных металлов с 5d электронами привлекают значительное внимание исследователей благодаря сильному спин-орбитальному взаимодействию, которое приводит к формированию уникальных электронных состояний [1,2]. Особый интерес представляет иридат стронция SrIrO₃, который при комнатной температуре и нормальном давлении кристаллизуется в моноклинную структуру с параметрами a = 0.5604 nm, b = 0.9618 nm, c = 1.417 nm (угол $\beta = 93.26^{\circ}$) [3]. При повышенной температуре 1000 °С и давлении 60 kbar, с последующим быстрым охлаждением, получают объемную орторомбическую фазу с параметрами a = 0.5597 nm, b = 0.5581 nm, c = 0.7752 nm. При росте тонких пленок методом лазерной абляции на монокристаллических подложках в условиях повышенной температуры возникают эпитаксиальные напряжения, обусловленные несоответствием параметров кристаллических решеток пленки и подложки. При согласованной подложке удается получить тонкие пленки с моноклинной структурой, незначительно отклоняющейся от орторомбической, с параметрами a = 0.56120 nm, b = 0.55865 nm, c = 0.7934 nm (угол $\gamma = 90.367^{\circ}$) [4], которая в дальнейшем анализируется с учетом слабого отклонения от кубической и может быть представлена в псевдокубическом приближении с параметром решетки

 $a_c \approx \sqrt{\frac{a^2 + b^2}{4}} \approx c/2 = 0.396 \,\mathrm{nm} \, [5].$

Сильное спин-орбитальное взаимодействие в сочетании с кристаллическим полем приводит к расщеплению t_{2g} подуровней 5d электронов иридия на состояния с $J_{eff} = 3/2$ и $J_{eff} = 1/2$ [6]. Изменение кристаллической структуры SrIrO₃ пленки может приводить к смещению уровня Ферми относительно полосы $J_{eff} = 1/2$ [7,8], что существенно влияет на электронные свойства материала.

При формировании тонких SrIrO₃ пленок ключевую роль играют эпитаксиальные напряжения, возникающие вследствие рассогласования параметров кристаллической решетки пленки и подложки [9,10]. Для орторомбической фазы объемного кристалла SrIrO₃ стехиометрического состава в псевдокубическом представлении с размером $a_c \approx 0.396 \, \mathrm{nm}$ получаем объем элементарной ячейки $V_{\text{crystal}} = 62.1 \cdot 10^{-3} \text{ nm}^3$. Рассогласование решеток приводит к деформации кристаллической структуры тонких пленок, что вызывает изменение межатомных расстояний и углов связей Ir-O-Ir [11]. Степень несоответствия параметров между пленкой и подложкой может приводить как к сжатию, так и к расширению эффективного объема элементарной ячейки относительно объема идеального монокристалла, что существенно влияет на электронные транспортные свойства материала [12].

Особую роль в формировании свойств пленок играют кислородные вакансии, концентрация которых зависит от степени рассогласования параметров решетки пленки и подложки [13]. Критическими параметрами при получении эпитаксиальных пленок являются состав кислородной смеси при напылениии и режимы охлаждения после распыления, что позволяет изменять величину кислородных вакансий.

Исследование влияния эпитаксиальных напряжений на свойства тонких пленок SrIrO₃ представляет особый интерес при использовании широкого спектра подложек с различными параметрами решетки. В частности, применение сегнетоэлектрической подложки Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O₃-PbTiO₃ открывает дополнительные возможности для контроля напряженности пленок [14].

2. Методика напыления SrIrO₃ пленок

Тонкие SrIrO₃ пленки были получены методом магнетронного распыления на переменном токе [15,16]. Предварительная откачка проводилась до давления $2 \cdot 10^{-5}$ mbar. Для роста SrIrO₃ пленок использовались монокристаллические подложки, схожие по параметрам решетки с монокристаллической фазой SrIrO₃: (110)NdGaO₃ (NGO), (001)SrTiO₃ (STO), $(001)(LaAlO_3)_{0.3}(Sr_2TaAlO_6)_{0.7}$ (LSAT) И (110)Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O₃-PbTiO₃ (PMN-PT). В качестве мишени использовался спрессованный порошок, смешанный в пропорции SrIrO₃ и отожженный при температуре 1000 °С. Проведенный рентгенофазовый анализ подтвердил однофазность полученных мишеней. Для роста SrIrO₃ пленок подложки NGO, STO и LSAT разогревались до температуры 770°С, а РММ-РТ до 750°С, для более эффективного и равномерного нагрева подложки крепились к нагревателю при помощи серебряной пасты, что позволило обеспечить эпитаксиальный рост тонких SrIrO₃ пленок.

Напыление SrIrO₃ пленок происходило при давлении 0.25 mbar, при таком давлении полученные пленки имели параметры решетки наиболее близкие к литературным данным по монокристаллам и тонким пленкам. Кроме

того, указанные пленки демонстрировали характерную металлическую зависимость сопротивления от температуры [17], причем изменение давления приводило к существенному увеличению сопротивления пленки. Рабочее давление в камере состояло из смеси Ar и O₂ в пропорции 10/35, при котором происходит рост SrIrO₃ пленки без образования кристаллов Sr₂IrO₄ или Sr₃Ir₂O₇ [18,19].

Отжиг полученных образцов проходил в два этапа. Во время первого этапа сразу после напыления полученные пленки охлаждались до $500 \,^{\circ}$ С и полчаса отжигались в атмосфере кислорода. Второй этап заключался в медленном охлаждении пленок до комнатной температуры в атмосфере кислорода, скорость охлаждения составляла 10 градусов в минуту. При мощности в 50 W и давлении 0.25 mbar скорость роста составила около 10 nm/h, что позволяло получать пленки толщиной 30 nm за 3 часа напыления.

3. Структура SrIrO₃ пленок

Структурные свойства SrIrO₃ пленок исследовались методом рентгеновской дифракции с использованием дифрактометра Rigaku SmartLab с вращающимся медным анодом. Измерения проводились в геометрии параллельного пучка с монохроматором Ge(220) × 2 на длине волны рентгеновского излучения CuK_{a1} ($\lambda = 1.54056$ Å). Эпитаксиальный рост SrIrO₃ пленки подтверждался результатами просвечивающей микроскопии (TEM) [20]. Например, для SrIrO₃ пленки, напыленной на (001)SrTiO₃ подложку, мы имеем следующее эпитаксиальное соотношение (001)SrIrO₃//(001)SrTiO₃, [100]SrIrO₃//[100]SrTiO₃, т.е. рост осуществляется типа куб на куб. Более сложный тип роста происходит при напылении SrIrO₃ пленки на (110)NdGaO₃ или (110)PMN-PT подложки.

Анализ рентгеновских дифрактограмм (рис. 1) показывает зависимость межплоскостного расстояния пленок от кристаллических параметров подложки. Наблюдаются интенсивные и четкие рефлексы (00k) (k = 1, 2, 3, 4) для (001)SrTiO₃, (001)LSAT и (110)NdGaO₃ подложек (рис. 1), в тоже время для пленки, осажденной на подложке (110)PMN-PT, наблюдались рефлексы (*nm*0)SrIrO₃ (рис. 2).

Анализ параметров решетки эпитаксиальных SrIrO₃ пленок выявил их существенную зависимость от используемой подложки (табл. 1). Пленки на (001)SrTiO₃, (001)LSAT и (110)NdGaO₃ подложках демонстрируют сжатие (параметр m = c/a - 1 = 3.2 - 4.5%), что сопровождается увеличением межплоскостного расстояния элементарной ячейки пленок c до 0.402–0.404 nm [21] при одновременном уменьшении параметра a, определяемого подложкой до 0.387–0.391 nm. Особый интерес представляет SrIrO₃ пленка на подложке SrTiO₃ [22], которая, несмотря на значительное рассогласование параметров решетки (m = 3.2%), демонстрирует объем псевдокубической ячейки $V_{eff} = 61.5 \cdot 10^{-3}$ nm³, что



Рис. 1. Рентгеновские дифрактограммы брэгговского отражения эпитаксиальных тонких SrIrO₃ пленок, выращенных на подложках: (a) - (001)SrTiO₃, (b) - (110)NdGaO₃, (c) - (001)(LaAlO₃)_{0.3}(Sr₂TaAlO₆)_{0.7}.



Рис. 2. (*a*) Рентгеновская дифрактограмма брэгговского отражения эпитаксиальной тонкой SrIrO₃ пленки, выращенной на PMN-PT подложке. (*b*) φ-скан SrIrO₃ пленки, на вставке представлена кривая качания (ω-скан) рефлекса (220)SrIrO₃. Ширина кривой качания на полувысоте (FWHM) равна 0.71°.

Образец	c_f , nm	a_s , nm	$V_{eff}, 10^{-3} \text{ nm}^3$	<i>m</i> , %
Объемный SrIrO ₃	0.396	0.396	62.1	—
SrIrO ₃ /SrTiO ₃	0.403 ± 0.002	0.390	61.5	3.2
SrIrO ₃ /NdGaO ₃	0.404 ± 0.001	0.386	60.4	4.5
SrIrO ₃ /LSAT	0.402 ± 0.001	0.387	60.2	3.9
SrIrO ₃ /PMN-PT	0.394 ± 0.001	0.402	63.5	-1.9

Таблица 1. Структурные параметры эпитаксиальных тонких SrIrO₃ пленок, выращенных на 4-х подложках, межплоскостные расстояния пленок (c_f) и подложек (a_s) , степень рассогласования решеток пленка-подложка (m), эффективный объем псевдокубической ячейки пленки (V_{eff}) , сравниваемый с объемом псевдокубической ячейки орторомбической фазы кристалла SrIrO₃ $(V_{crystal} = 62.1 \cdot 10^{-3} \text{ nm}^3)$.

наиболее близко к объему ячейки орторомбической фазы кристалла SrIrO₃ ($V_{crystal} = 62.1 \cdot 10^{-3} \text{ nm}^3$).

Для пленки на РМN-РТ (рис. 2, *a*) наблюдается растяжение в плоскости подложки (m = -1.9%) с параметром подложки a = 0.402 nm, что приводит к увеличению эффективного объема псевдокубической элементарной ячейки V_{eff} до $63.5 \cdot 10^{-3}$ nm³ по сравнению с значением $V_{crystal}$ [23].

Перед каждой съемкой симметричных $2\Theta/\omega$ сканов, кривых качания и φ -сканов производилась обязательная юстировка положения образца, включающая Z-скан (положение по высоте), R_x -скан (качание столика с образцом вдоль направления источник-детектор) и R_y -скан (качание столика с образцом перпендикулярно пучку). Юстировка проводилась по наиболее интенсивному пику подложки (200) или (220).

Для определения упорядочения в плоскости подложки был проведен *ф*-скан для (110)SrIrO₃ пленки, выращенной на (110)PMN-PT подложке (рис. 2, b), при этом угол χ был предварительно выставлен на 45° (считая, что $\chi = 0^{\circ}$ — положение столика в плоскости пола). Наблюдаемые четкие рефлексы при значениях $\phi \approx 180^\circ$ и $\varphi \approx 360^\circ$ (с угловым разделением в 180°) и полушириной пиков $1.1 \pm 0.1^{\circ}$ указывают на формирование эпитаксиальной пленки с единственным вариантом ориентации в плоскости подложки. Согласно проекции карты обратного пространства для направления (011) в кубическом кристалле, плоскости (100) и (010) должны наблюдаться под углом $\chi = 45^{\circ}$, а плоскости (001) и $(00\bar{1})$ под углом $\chi = 90^{\circ}$. Таким образом, наличие только двух рефлексов при φ -сканировании на угле $\chi = 45^\circ$ подтверждает единственный вариант ориентации SrIrO₃ в плоскости подложки.

Анализ кривой качания (ω -скан) отражения (220)SrIrO₃ показал четко выраженный дифракционный пик с полушириной (FWHM) 0.71° (вставка к рис. 2, *b*), что свидетельствует о высокой степени текстурирования выращенной пленки в направлении нормали к поверхности, несмотря на значительное рассогласование параметров решетки между SrIrO₃ и подложкой PMN-PT.

Для определения влияния условий роста на структурные параметры пленок, выращенных на подложке SrTiO₃, исследовались зависимости кристаллических параметров от давления смеси Ar/O2 при соотношении 10/35. Рентгеноструктурный анализ SrIrO₃ пленок (рис. 3) показывает формирование однофазных эпитаксиальных SrIrO₃ пленок с характерными рефлексами (001) для всех трех образцов. При этом наблюдаются слабые пики металлического иридия, интенсивность которых варьируется в зависимости от условий роста. SrIrO₃ пленка, полученная при давлении 0.25 mbar (рис. 3, a), демонстрирует параметр c = 0.403 nm и эффективный объем элементарной ячейки $V_{eff} = 61.45 \cdot 10^{-3} \, \mathrm{nm^3}$. Увеличение давления до 0.5 mbar (рис. 3, b) приводит к росту параметра с до 0.407 nm при одновременном уменьшении объема ячейки до 61.15 · 10⁻³ nm³. Дальнейшее повышение давления до 0.75 mbar (рис. 3, c) сопровождается небольшим уменьшением параметра с до 0.405 nm и увеличением эффективного объема ячейки до $61.76 \cdot 10^{-3}$ nm³.

Зависимость параметра *c* от общего давления газовой смеси имеет немонотонный характер с максимумом для SrIrO₃ пленок при $P_{Ar/O_2} = 0.5$ mbar. Параметр рассогласования *m* демонстрирует монотонное увеличение с ростом давления от 3.2% при $P_{Ar/O_2} = 0.25$ mbar до 3.7% при $P_{Ar/O_2} = 0.75$ mbar.

4. Атомно-силовая микроскопия SrIrO₃ пленок

Для исследования морфологии поверхности тонких SrIrO₃ пленок, выращенных на различных подложках, был использован метод атомно-силовой микроскопии (ACM). Изображения поверхности образцов были получены в полуконтактном режиме на сканирующем зондовом микроскопе Solver PRO M (HT MДТ). Данный микроскоп обеспечивает разрешение до 1 nm и позволяет исследовать образцы размером до $12 \times 12 \times 2$ mm, разрешение позиционирования 5 μ m.

На рис. 5, *а* представлено ACM-изображение SrIrO₃ пленки, выращенной на подложке SrTiO₃. Топографический скан размером $5 \times 5 \,\mu m^2$ демонстрирует зернистую структуру с квазирегулярным распределением особенностей рельефа. Профиль высоты вдоль отмеченной



Рис. 3. Рентгеновские дифрактограммы тонких SrIrO₃ пленок, выращенных на SrTiO₃ подложках, при соотношении газов аргона/кислорода 10/35 и давлении смеси: (*a*) $P_{Ar/O_2} = 0.25$ mbar, (*b*) 0.5 mbar, (*c*) 0.75 mbar.



Рис. 4. Зависимость параметра элементарной кристаллической ячейки (заполненные круги) от давления газовой смеси $P_{\text{Ar/O}_2}$ (соотношение газов Ar/O₂ = 10/35) для исследуемых эпитаксиальных тонких SrIrO₃ пленок, выращенных на SrTiO₃ подложках: 0.25 mbar (BA-03), 0.5 mbar (BA-04), 0.75 mbar (BA-05). Звездами обозначены точки, соответствующие сопротивлению данных образцов при 300 К.

на изображении линии (рис. 5, *b*) показывает типичные вариации в нанометровом диапазоне, достигающие максимального размаха (peak-to-peak) в 15.93 nm. Среднеквадратичная шероховатость данной SrIrO₃ пленки составляет RMS = 1.44 nm. Дополнительные статистические параметры, полученные при анализе распределения высот, свидетельствуют о высоком качестве SrIrO₃ пленки на подложке SrTiO₃ [24]. Коэффициент асимметрии (Skewness), близкий к нулю (0.001), указывает на симметричное распределение высот относительно средней плоскости поверхности. Значение коэффициента эксцесса (Kurtosis) составляет 3.18, что соответствует близкому к нормальному гауссовому распределению высот и характерно для равномерно сформированных эпитаксиальных слоев.

Аналогичные исследования были проведены для образцов, выращенных на подложках NGO, LSAT и PMN-PT. Пленка на подложке NGO показала схожую с SrTiO₃ среднеквадратичную шероховатость (RMS = 1.44 nm), но при этом больший размах высот (25.58 nm) и более высокий коэффициент эксцесса (4.98), что указывает на наличие более выраженных локальных особенностей рельефа.

SrIrO₃ пленка, выращенная на LSAT подложке, продемонстрировала наименьшую среднеквадратичную шероховатость среди всех образцов (0.31 nm), однако анализ статистических параметров выявил аномально высокие значения коэффициентов асимметрии (11.00) и эксцесса (495.22). Такие показатели свидетельствуют о наличии отдельных высоких выступов на преимущественно гладкой поверхности, что может быть связано с дефектами подложки или особенностями процесса роста [25].



Рис. 5. (*a*) АСМ-изображение поверхности эпитаксиальной SrIrO₃ пленки, выращенной на SrTiO₃ подложке. Размер области сканирования $5 \times 5 \,\mu m^2$. (*b*) График профиля высоты вдоль горизонтали $Y = 1 \,\mu m$ на АСМ-изображении.

SrIrO₃ пленка на PMN-PT подложке характеризуется наиболее высокой шероховатостью (RMS = 6.11 nm) и максимальным размахом высот (47.01 nm) среди исследованных систем. Небольшое отрицательное значение коэффициента асимметрии (-0.22) указывает на незначительное преобладание впадин над выступами в структуре поверхности.

Проведенные исследования показывают, что морфологические характеристики пленок SrIrO₃ существенно зависят от выбранной подложки. Образцы на подложках SrTiO₃ и NdGaO₃ демонстрируют сопоставимые значения шероховатости, однако пленка на SrTiO₃ характеризуется более однородным распределением особенностей рельефа и, следовательно, более высоким структурным совершенством. Образец на LSAT, несмотря на наименьшую шероховатость, имеет статистически неоднородную поверхность с отдельными выступающими дефектами. Пленка на PMN-PT обладает наиболее развитым рельефом поверхности, что может быть обусловлено структурным несоответствием между подложкой и растущим слоем.

На основании анализа морфологии поверхности методом ACM можно заключить, что подложка SrTiO₃ обеспечивает оптимальные условия для роста высококачественных эпитаксиальных SrIrO₃ пленок с равномерной морфологией поверхности.

5. Электротранспортные характеристики

Электротранспортные измерения SrIrO₃ пленок были проведены четырехзондовым методом по схеме Монтгомери в диапазоне температур 77–300 К [26]. Для всех образцов использовалась идентичная квадратная геометрия с одинаковыми размерами и расположением контактов, что обеспечивает корректное сравнение без дополнительных геометрических поправок. На рис. 6 представлены температурные зависимости квадрата сопротивления квадрата пленки для трех значений давления смеси при $P_{\rm Ar/O_2} = 0.25$, 0.5 и 0.75 mbar.

SrIrO₃ пленка (BA-03, 0.25 mbar) демонстрирует монотонное уменьшение сопротивления от 0.45 kΩ при 300 K до 0.39 kΩ при 77 K. Для SrIrO₃ пленки (BA-04, 0.5 mbar) сопротивление увеличивается с уменьшением температуры от 6.0 kΩ при 300 K до 9.5 kΩ при 77 K [27]. SrIrO₃ пленка (BA-05, 0.75 mbar) показывает увеличение сопротивления от 2.5 kΩ при 300 K до 3.0 kΩ при 77 K. Наблюдаемое различие в характере проводимости и абсолютных значениях сопротивления связано с изменением кислородных вакансий в SrIrO₃ пленках [28].



Рис. 6. Температурная зависимость квадрата сопротивления SrIrO₃ пленок, полученных на SrTiO₃ подложках при разном давлении газовой смеси $P_{\text{Ar/O}_2}$ (соотношение газов Ar/O₂ = 10/35): 0.25 mbar (BA-03), 0.5 mbar (BA-04), 0.75 mbar (BA-05).

Образец	T_K , K	R_K, Ω	R_0, Ω	R_1, Ω	T_M, K
SrIrO ₃ /SrTiO ₃	9.6	1268	5965	0.3	1.04
SrIrO ₃ /NdGaO ₃	253	2225	6258	0.6	İ.62
SrIrO ₃ /LSAT	556	10.6	2.5	0.05	13.68
SrIrO ₃ /PMN-PT	459	3.7	1.9	0.005	5.79

Таблица 2. Электрофизические параметры эпитаксиальных тонких SrIrO₃ пленок, выращенных на подложках: SrTiO₃, NdGaO₃, LSAT и PMN-PT.

Температурные зависимости квадрата сопротивления эпитаксиальных тонких SrIrO₃ пленок на 4-х подложках, нормированные на значение при комнатной температуре, представлены на рис. 7. Вид кривых R(T) существенно зависит от типа используемой подложки [29,30]. Все пленки демонстрируют металлический тип проводимости (dR/dT > 0) при высоких температурах в диапазоне 300–200 К с переходом к росту сопротивления (dR/dT < 0) при понижении температуры.

Экспериментальные зависимости сопротивления $SrIrO_3$ пленок от температуры R(T) были проанализированы в рамках следующей модели [31]:

$$R(T) = R_0 + R_1 \left(\frac{T}{T_M}\right)^B + R_K \left(\frac{T_K^*}{T^2 + T_K^*}\right)^S, \qquad (1)$$

где R_0 — сопротивление, вызванное примесями (не зависит от температуры), второй член R_1 — параметр, описывающий вклад электрон-фононного взаимодействия. Коэффициент R_K характеризует вклад рассеяния электронов на локализованных магнитных моментах, $T_K^* = \sqrt{\frac{T_K}{2^{1/5}-1}}$. Параметр S = 0.43 [32] определяет характер взаимодействия между локализованными спинами и электронами проводимости, параметр B = 1.44 задает степенную зависимость электрон-фононного рассеяния от температуры, T_M — нормировочная температура.

В табл. 2 приведены электрофизические параметры для всех пленок. Видно, что температура T_K существенно различается для пленок на различных подложках: от 9.6 К для SrIrO₃/SrTiO₃ до 556 К для SrIrO₃/LSAT, высокое значение T_K объясняется отклонением от теории возмущения при расчете для модели (1) [33]. Наиболее сильный эффект влияния магнитных примесей (максимальное значение $R_K = 2225 \Omega$) наблюдается в пленках на подложке NdGaO₃. В противоположность этому, пленка на PMN-PT демонстрирует минимальное значение $R_K = 3.2 \Omega$, что согласуется с наименьшей степенью рассогласования решеток m = -1.9%.

Вклад электрон-фононного взаимодействия, характеризуемый параметром R_1 , также показывает значительную вариацию: от 0.6 Ω для SrIrO₃ на NdGaO₃ до 5 · 10⁻³ Ω для SrIrO₃ на PMN-PT. Такое различие может быть связано с изменением фононного рассеяния вследствие деформации кристаллической решетки.



Рис. 7. Зависимости нормированного сопротивления от температуры, пунктиром показаны аппроксимации по формуле (1). На вставке показана зависимость квадрата сопротивления SrIrO₃ пленки, выращенной на NdGaO₃ подложке, с аппроксимацией по формуле (1).

Наблюдаемые закономерности указывают на определяющую роль структурных деформаций в формировании электронных свойств SrIrO₃ пленок. Эпитаксиальные напряжения, возникающие из-за рассогласования решеток, приводят к модификации электронной структуры и, как следствие, к изменению характера проводимости.

Анализ химического состава и электронной структуры методом рентгеновской фотоэлектронной спектроскопии

Для исследования химического состава и электронной структуры $SrIrO_3$ пленок использовался метод рентгеновской фотоэлектронной спектроскопии (РФЭС), основанный на явлении фотоэффекта, возникающего под действием монохроматического рентгеновского излучения на $SrIrO_3$ пленку. Сдвиги фотоэлектронных линий энергии связи позволяют с большой точностью анали-



Рис. 8. (a) — Обзорный фотоэлектронный спектр SrIrO₃ пленки, выращенной на (001)SrTiO₃ подложке. Стрелками обозначены положения пиков, соответствующие энергиям связи электронов различных подуровней электронных оболочек химических элементов, содержащихся в пленке. Примерные значения уровней энергий для идентификации пиков (принадлежность элементу и подуровню) определены из XPS NIST Database. (b) — Подробный РФЭС спектр диапазона энергий связи для электронного подуровня 4*f* иридия. Оранжевая Ir(A) 4*f*_{5/2} и красная Ir(B) 4*f*_{5/2} и линии — две составляющие аппроксимации пика Ir 4*f*_{7/2}. (c) — Подробный РФЭС спектр диапазона энергий. Красная линия — аппроксимация пика Sr 3*d*_{5/2}. Синяя линия — аппроксимация пика Sr 3*d*_{3/2}. На рисунках (*b*) и (*c*) точками обозначена измеренная спектроскопом экспериментальная характеристика. Зеленая линия — фон, вызванный неупругим рассеянием фотоэлектронов в пленке, определенный по методу Ширли. Черная линия — аппроксимация и змеренных данных.

зировать изменение в химическом окружении атомов. В данной работе исследование проводилось с помощью спектрометра Theta Probe (Thermo Fisher Scientific, Великобритания) при давлении остаточных газов не хуже $1.3 \cdot 10^{-8}$ mbar. Для генерации рентгеновского излучения использовался стандартный анод AlK α с энергией испускаемого фотона E = hv = 1486.6 eV. Абсолютное энергетическое разрешение спектрометра на линии серебра Ag $3d_{5/2}$ составило 0.46 eV. Размер луча рентге-

новских фотонов был выбран равным 400 микрометрам. Энергоанализатор во время всех измерений находился в режиме FAT (Fixed Analyzer Transmission). Абсолютная погрешность измерений кинетической энергии фотоэлектронов составила не более 0.1 eV. Измерения выполнялись в два этапа. На первом этапе измерялся обзорный спектр пленки с шагом по кинетической энергии фотоэлектрона равным 1 eV, при этом пропускная энергия фотоэлектрона (PassEnergy) энергоанализатора

Образец	Sr, %	Ir, %	Sr/Ir	Ir(B)/Ir(A)	$\epsilon_{ m SO},{ m eV}$
SrIrO ₃ /SrTiO ₃	53.81	46.19	1.16	1.20	3.03
SrIrO ₃ /NdGaO ₃	56.28	43.72	1.29	1.14	2.99
SrIrO ₃ /LSAT	56.94	43.06	1.32	1.35	2.99
SrIrO ₃ /PMN-PT	57.77	42.23	1.37	1.20	3.10

Таблица 3. Параметры РФЭС спектров эпитаксиальных тонких SrIrO₃ пленок, выращенных на подложках: SrTiO₃, NdGaO₃, LSAT и PMN-PT.

спектрометра устанавливалась равной 200 eV. На втором этапе измерялись подробные спектры отдельных диапазонов энергий фотоэлектронов, соответствующие пикам Sr и Ir с шагом по энергии фотоэлектронов равным 0.100 eV, пропускная энергия спектроанализатора устанавливалась равной 50 eV.

Обзорный спектр SrIrO₃ пленки приведен на рис. 8, *а.* Спектр иридия Ir 4*f* состоит из двух компонент: Ir 4*f*_{7/2} и Ir 4*f*_{5/2}, возникающих вследствие спинорбитального взаимодействия (рисунок 8, *b*). Величина спин-орбитального расщепления ϵ_{SO} между этими компонентами для пленки SrIrO₃ на NdGaO₃ составляет 2.99 eV, на SrTiO₃ — 3.03 eV, на LSAT — 2.99 eV, 3.10 eV — PMN-PT (табл. 3). Полученные значения хорошо согласуются с литературными данными для SrIrO₃ ($\epsilon_{SO} \sim 3.0 \text{ eV}$) [34]. Такие значения спин-орбитального расщепления консления характерны для иридия в степени окисления Ir⁴⁺ [35].

Важно отметить, что величина спин-орбитального расщепления существенно зависит от электронной структуры и дефектов в материале. Как показано в работе [28], ϵ_{SO} чувствителен к концентрации кислородных вакансий в SrIrO₃ пленках. SrIrO₃ пленки с большим значением ϵ_{SO} обычно характеризуются меньшей концентрацией кислородных вакансий и, следовательно, более совершенной стехиометрией и структурой. В этом контексте наблюдаемое максимальное расщепление ($\epsilon_{SO} = 3.10 \text{ eV}$) для SrIrO₃ пленки на подложке PMN-PT может указывать на его оптимальную кислородную стехиометрию и меньшую концентрацию магнитных примесей по сравнению с другими исследованными образцами.

Для более детального анализа электронной структуры каждая из спин-орбитальных компонент Ir $4f_{7/2}$ и Ir $4f_{5/2}$ была аппроксимирована двумя составляющими, обозначенными как Ir(A) и Ir(B), соответствующие атомам иридия с различными локальными искажениями кислородных октаэдров. Отношение интенсивностей пиков Ir(B)/Ir(A) варьируется от 1.14 до 1.35 для разных подложек [36], что свидетельствует о различном распределении этих состояний. Отношение Sr к Ir варьируется от 1.16 (SrIrO₃/SrTiO₃) и до 1.37 (SrIrO₃/PMN-PT). Такие значения связаны с различными значениями параметров решетки и степенью рассогласования между пленкой

Физика твердого тела, 2025, том 67, вып. 6

и подложкой, определенных из рентгеноструктурного анализа.

Пики Sr 3*d* также демонстрируют дублетную структуру (Sr 3 $d_{5/2}$ и Sr 3 $d_{3/2}$) с характерным расщеплением около 1.8 eV, что соответствует Sr в оксидном окружении (рис. 8, *c*).

7. Заключение

В работе было проведено исследование структурных, электронных и транспортных свойств эпитаксиальных тонких SrIrO₃ пленок, выращенных методом высокочастотного магнетронного распыления на монокристаллических подложках: (110)NdGaO₃, (001)SrTiO₃, (001)(LaAlO₃)_{0.3}(Sr₂TaAlO₆)_{0.7} (LSAT) и (110)Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O₃-PbTiO₃ (PMN-PT). Структурный анализ показал, что все полученные пленки близки к псевдокубической фазе. Установлено, что степень рассогласования решеток между пленкой и подложкой варьируется от -1.9% для PMN-PT до 4.5% для NdGaO₃, что приводит к различной степени деформации кристаллической структуры. Эффективный объем элементарной ячейки SrIrO₃ пленок, 38 исключением образца на подложке PMN-PT, меньше, чем объем псевдокубической ячейки орторомбической фазы кристалла SrIrO₃ (62.1 \cdot 10⁻³ nm³), что указывает на формирование сжатой кристаллической структуры.

Электрофизические измерения выявили металлический характер проводимости SrIrO₃ пленки с переходом к росту сопротивления при низких температурах. Анализ температурной зависимости сопротивления в рамках упрощенной модели, учитывающей влияние рассеяния электронов на магнитных примесях, показал существенное влияние типа подложки на электронный транспорт SrIrO₃ пленок. Значения температуры T_K , характеризующей взаимодействие с магнитными примесями, варьируются от 253 К для пленки на NdGaO3 до 556 К для пленки на LSAT, что связано со степенью деформации кристаллической решетки. Исследование методом РФЭС позволило определить атомный состав SrIrO₃ пленок, а также исследовать электронную структуру и химическое состояние ионов иридия и стронция, кроме того была оценена величина спин-орбитального расщепления, которая составляет около 3 eV для Ir 4f состояний, что характерно для Ir^{4+} в октаэдрическом окружении. Отношение Ir(B)/Ir(A) демонстрирует зависимость от типа подложки, что согласуется с различной степенью деформации кристаллической решетки. Полученные результаты демонстрируют определяющую роль подложки в формировании структурных и электронных свойств тонких SrIrO₃ пленок, что открывает возможности для целенаправленной модификации их функциональных характеристик путем выбора соответствующей подложки.

Финансирование работы

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда № 23-79-00010, https://rscf.ru/project/23-79-00010/ с привлечением оборудования Центра коллективного пользования уникальным научным оборудованием в области нанотехнологий (ЦКП МФТИ).

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- S. Sardar, M. Vagadia, T.M. Tank, J. Sahoo, D.S. Rana. J. Appl. Phys. 135, 8 (2024).
- [2] H. Chen, D. Yi. APL Mater. 9, 6 (2021).
- [3] J.M. Longo, J.A. Kafalas, R.J. Arnott. J. Solid State Chem. 3, 2, 174 (1971).
- [4] J. Liu, D. Kriegner, L. Horak, D. Puggioni, C. Rayan Serrao, R. Chen, D. Yi, C. Frontera, V. Holy, A. Vishwanath, J.M. Rondinelli, X. Marti, R. Ramesh. Phys. Rev. B 93, 8, 085118 (2016).
- [5] B.L. Chamberland, A.R. Philpotts. J. Alloys Compd. 182, 2, 355 (1992).
- [6] G. Cao, P. Schlottmann. Rep. Prog. Phys. 81, 4, 042502 (2018).
- [7] S.J. Moon, H. Jin, K.W. Kim, W.S. Choi, Y.S. Lee, J. Yu, T.W. Noh. Phys. Rev. Lett. 101, 22, 226402 (2008).
- [8] Z.T. Liu, M.Y. Li, Q.F. Li, J.S. Liu, W. Li, H.F. Yang, D.W. Shen. Sci. Rep. 6, 1, 30309 (2016).
- [9] J.H. Gruenewald, J. Nichols, J. Terzic, G. Cao, J.W. Brill, S.S.A. Seo. J. Mater. Res. 29, 21, 2491 (2014).
- [10] L. Horák, D. Kriegner, J. Liu, C. Frontera, X. Marti, V. Holý. J. Appl. Crystallogr. 50, 2, 385 (2017).
- [11] B. Kim, B.H. Kim, K. Kim, B.I. Min. Sci. Rep. 6, 1, 27095 (2016).
- [12] И.Е. Москаль, А.М. Петржик, Ю.В. Кислинский, А.В. Шадрин, Г.А. Овсянников, Н.В. Дубицкий. Известия РАН. Серия физическая 88, 4, 673 (2024).
- [13] V. Fuentes, L. Balcells, Z. Konstantinović, B. Martínez, A. Pomar. Nanomaterials 14, 3, 242 (2024).
- [14] S.S. Li, Y. Zhang, J.S. Ying, Z.C. Wang, J.M. Yan, G.Y. Gao, R.K. Zheng. J. Appl. Phys. **133**, 1 (2023).
- [15] И.Е. Москаль, Ю.В. Кислинский, А.М. Петржик, Г.А. Овсянников, Н.В. Дубицкий. ФТТ 66, 7, 1101 (2024).
- [16] Y.V. Kislinskii, K.Y. Constantinian, I.E. Moskal, N.V. Dubitskiy, A.M. Petrzhik, A.V. Shadrin, G.A. Ovsyannikov. Russian Microelectronics 52, Suppl 1, S53 (2023).
- [17] A. Biswas, Y.H. Jeong. Curr. Appl. Phys. 17, 5, 605 (2017).

- [18] K. Nishio, H.Y. Hwang, Y. Hikita. APL Mater. 4, 036102 (2016).
- [19] A. Gutierrez-Llorente, L. Iglesias, B. Rodriguez-Gonzalez, F. Rivadulla. APL Mater. 6, 091101 (2018).
- [20] Г.А. Овсянников, К.И. Константинян, Г.Д. Ульев, А.В. Шадрин, П.В. Лега, А.П. Орлов. Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования 2, 81 (2024).
- [21] A. Biswas, K.S. Kim, Y.H. Jeong. J. Appl. Phys. 116, 21 (2014).
- [22] T.J. Anderson, S. Ryu, H. Zhou, L. Xie, J.P. Podkaminer, Y. Ma, C.B. Eom. Appl. Phys. Lett. 108, 15 (2016).
- [23] D. Cui, Y. Xu, L. Zhou, L. Zhang, Z. Luan, C. Li, D. Wu. Appl. Phys. Lett. 118, 5 (2021).
- [24] L. Fruchter, O. Schneegans, Z.Z. Li. J. Appl. Phys. 120, 7 (2016).
- [25] L. Zhang, Q. Liang, Y. Xiong, B. Zhang, L. Gao, H. Li, Y.F. Chen. Phys. Rev. B 91, 3, 035110 (2015).
- [26] H.C. Montgomery. J. Appl. Phys. 42, 7, 2971 (1971).
- [27] W. Zhao, M. Gu, D. Xiao, Q. Li, X. Liu, K. Jin, J. Guo. Phys. Rev. Mater. 8, 10, 105001 (2024).
- [28] S. Suresh, S.P.P. Sadhu, V. Mishra, W. Paulus, M.R. Rao. J. Phys.: Condens. Matter 36, 42, 425601 (2024).
- [29] Ю.В. Кислинский, Г.А. Овсянников, А.М. Петржик, К.И. Константинян, Н.В. Андреев, Т.А. Свиридова. ФТТ 57, 12, 2446 (2015).
- [30] В.А. Байдикова, Н.В. Дубицкий, И.Е. Москаль, Г.А. Овсянников, А.М. Петржик, Г.Д. Ульев, К.И. Константинян, Ю.В. Кислинский, А.В. Шадрин. Радиоэлектроника. Наносистемы. Информационные технологии 16, 4, 509 (2024).
- [31] G. Rimal, T. Tasnim, G. Calderon Ortiz, G.E. Sterbinsky, J. Hwang, R.B. Comes. Phys. Rev. Mater. 8, 7, L071201 (2024).
- [32] R. Choudhary, S. Nair, Z. Yang, D. Lee, B. Jalan. APL Mater. 10, 9 (2022).
- [33] Н.К. Чумаков, И.А. Черных, А.Б. Давыдов, И.С. Езубченко, Ю.В. Грищенко, Л.Л. Лев, М.Л. Занавескин. ФТП 54, 9, 962 (2020).
- [34] D. Fuchs, A.K. Jaiswal, F. Wilhelm, D. Wang, A. Rogalev, M.L. Tacon. arXiv preprint arXiv:2502.02985 (2025).
- [35] W. Surta, S. Almalki, Y.X. Lin, T. Veal, M. O'Sullivan. arXiv preprint:2406.01845 (2024).
- [36] V. Fuentes, B. Vasić, Z. Konstantinovi, B. Martínez, L. Balcells, A. Pomar. J. Magn. Magn. Mater. 501, 166419 (2020).

Редактор Ю.Э. Китаев