

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 (SrIrO_3) получены методом высокочастотного магнетронного распыления на следующих монокристаллических подложках: $(110)\text{NdGaO}_3$, $(001)\text{SrTiO}_3$, $(001)(\text{LaAlO}_3)_{0.3}(\text{Sr}_2\text{TaAlO}_6)_{0.7}$ (LSAT) и $(110)\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3\text{-PbTiO}_3$ (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 SrIrO_3 кристалла.

Электронные транспортные параметры тонких SrIrO_3 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 спин-орбитального расщепления для $\text{Ir } 4f$ состояний, которая варьируется от 2.99 eV для SrIrO_3 пленки, напыленной на $(001)\text{SrTiO}_3$, до 3.10 eV для пленки на $(110)\text{PMN-PT}$, что связано с концентрацией кислородных вакансий, совершенством структуры и стехиометрией.

Ключевые слова: тонкие SrIrO_3 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 SrIrO_3 , который при комнатной температуре и нормальном давлении кристаллизуется в моноклинную структуру с параметрами $a = 0.5604 \text{ nm}$, $b = 0.9618 \text{ nm}$, $c = 1.417 \text{ nm}$ (угол $\beta = 93.26^\circ$) [3]. При повышенной температуре 1000 °C и давлении 60 kbar, с последующим быстрым охлаждением, получают объемную орторомбическую фазу с параметрами $a = 0.5597 \text{ nm}$, $b = 0.5581 \text{ nm}$, $c = 0.7752 \text{ nm}$. При росте тонких пленок методом лазерной абляции на монокристаллических подложках в условиях повышенной температуры возникают эпитаксиальные на-

пряжения, обусловленные несоответствием параметров кристаллических решеток пленки и подложки. При согласованной подложке удастся получить тонкие пленки с моноклинной структурой, незначительно отклоняющейся от орторомбической, с параметрами $a = 0.56120 \text{ nm}$, $b = 0.55865 \text{ nm}$, $c = 0.7934 \text{ nm}$ (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 $a_c \approx \sqrt{\frac{a^2+b^2}{4}} \approx c/2 = 0.396 \text{ nm}$ [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 SrIrO_3 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 SrIrO_3 пленок ключевую роль играют эпитаксиальные напряжения, возникающие вследствие рассогласования параметров кристаллической решетки пленки и подложки [9,10]. Для орторомбической фазы объемного кристалла SrIrO_3 стехиометрического состава в псевдокубическом представлении с размером $a_c \approx 0.396 \text{ nm}$ 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 напылении и режимы охлаждения после распыления, что позволяет изменять величину кислородных вакансий.

Исследование влияния эпитаксиальных напряжений на свойства тонких пленок SrIrO_3 представляет особый интерес при использовании широкого спектра подложек с различными параметрами решетки. В частности, применение сегнетоэлектрической подложки $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3\text{-PbTiO}_3$ открывает дополнительные возможности для контроля напряженности пленок [14].

2. Методика напыления SrIrO_3 пленок

Тонкие SrIrO_3 пленки были получены методом магнетронного распыления на переменном токе [15,16]. Предварительная откачка проводилась до давления $2 \cdot 10^{-5} \text{ mbar}$. Для роста SrIrO_3 пленок использовались монокристаллические подложки, схожие по параметрам решетки с монокристаллической фазой SrIrO_3 : (110) NdGaO_3 (NGO), (001) SrTiO_3 (STO), (001)(LaAlO_3)_{0.3}($\text{Sr}_2\text{TaAlO}_6$)_{0.7} (LSAT) и (110) $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3\text{-PbTiO}_3$ (PMN-PT). В качестве мишени использовался спрессованный порошок, смешанный в пропорции SrIrO_3 и отожженный при температуре 1000°C . Проведенный рентгенофазовый анализ подтвердил однофазность полученных мишеней. Для роста SrIrO_3 пленок подложки NGO, STO и LSAT разогревались до температуры 770°C , а PMN-PT до 750°C , для более эффективного и равномерного нагрева подложки крепились к нагревателю при помощи серебряной пасты, что позволило обеспечить эпитаксиальный рост тонких SrIrO_3 пленок.

Напыление SrIrO_3 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 O_2 в пропорции 10/35, при котором происходит рост SrIrO_3 пленки без образования кристаллов Sr_2IrO_4 или $\text{Sr}_3\text{Ir}_2\text{O}_7$ [18,19].

Отжиг полученных образцов проходил в два этапа. Во время первого этапа сразу после напыления полученные пленки охлаждались до 500°C и полчаса отжигались в атмосфере кислорода. Второй этап заключался в медленном охлаждении пленок до комнатной температуры в атмосфере кислорода, скорость охлаждения составляла 10°C 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 SrIrO_3 пленок

Структурные свойства SrIrO_3 пленок исследовались методом рентгеновской дифракции с использованием дифрактометра Rigaku SmartLab с вращающимся медным анодом. Измерения проводились в геометрии параллельного пучка с монохроматором $\text{Ge}(220) \times 2$ на длине волны рентгеновского излучения $\text{CuK}\alpha_1$ ($\lambda = 1.54056 \text{ \AA}$). Эпитаксиальный рост SrIrO_3 пленки подтверждался результатами просвечивающей микроскопии (TEM) [20]. Например, для SrIrO_3 пленки, напыленной на (001) SrTiO_3 подложку, мы имеем следующее эпитаксиальное соотношение $(001)\text{SrIrO}_3 // (001)\text{SrTiO}_3$, $[100]\text{SrIrO}_3 // [100]\text{SrTiO}_3$, т.е. рост осуществляется типа куб на куб. Более сложный тип роста происходит при напылении SrIrO_3 пленки на (110) NdGaO_3 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) SrTiO_3 , (001)LSAT и (110) NdGaO_3 подложек (рис. 1), в тоже время для пленки, осажденной на подложке (110)PMN-PT, наблюдались рефлексы $(nm0)\text{SrIrO}_3$ (рис. 2).

Анализ параметров решетки эпитаксиальных SrIrO_3 пленок выявил их существенную зависимость от используемой подложки (табл. 1). Пленки на (001) SrTiO_3 , (001)LSAT и (110) NdGaO_3 подложках демонстрируют сжатие (параметр $m = c/a - 1 = 3.2\text{--}4.5\%$), что сопровождается увеличением межплоскостного расстояния элементарной ячейки пленок с до $0.402\text{--}0.404 \text{ nm}$ [21] при одновременном уменьшении параметра a , определяемого подложкой до $0.387\text{--}0.391 \text{ nm}$. Особый интерес представляет SrIrO_3 пленка на подложке SrTiO_3 [22], которая, несмотря на значительное рассогласование параметров решетки ($m = 3.2\%$), демонстрирует объем псевдокубической ячейки $V_{\text{eff}} = 61.5 \cdot 10^{-3} \text{ nm}^3$, что

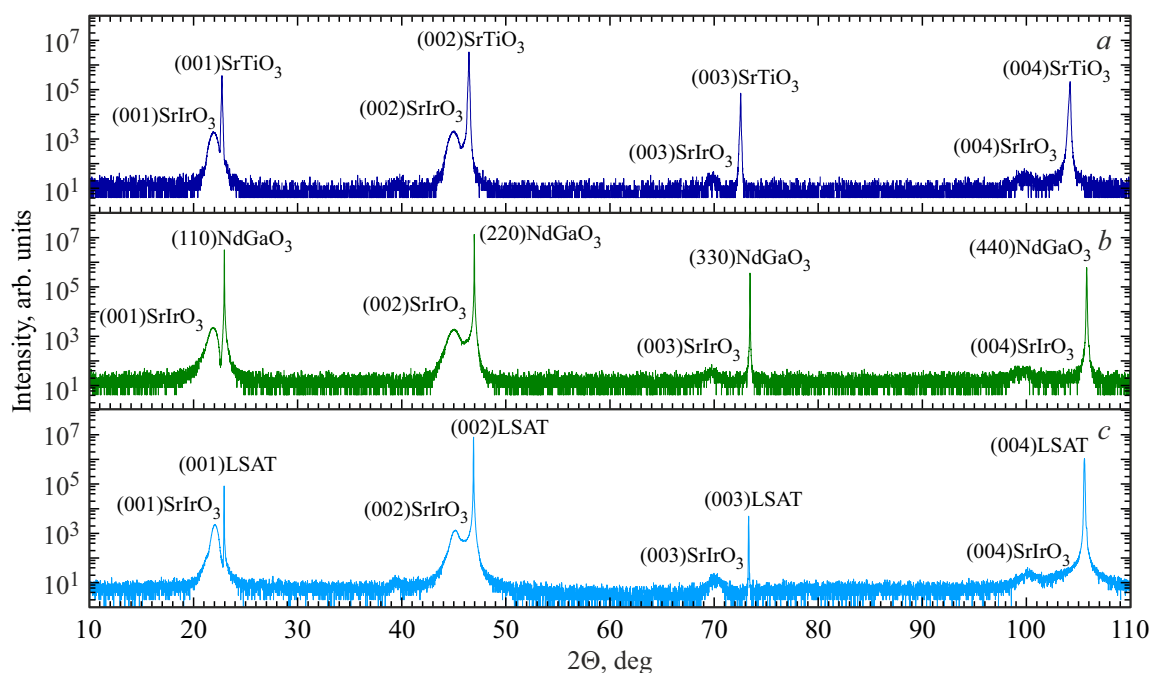


Рис. 1. Рентгеновские дифрактограммы брэгговского отражения эпитаксиальных тонких SrIrO_3 пленок, выращенных на подложках: (a) — $(001)\text{SrTiO}_3$, (b) — $(110)\text{NdGaO}_3$, (c) — $(001)(\text{LaAlO}_3)_{0.3}(\text{Sr}_2\text{TaAlO}_6)_{0.7}$.

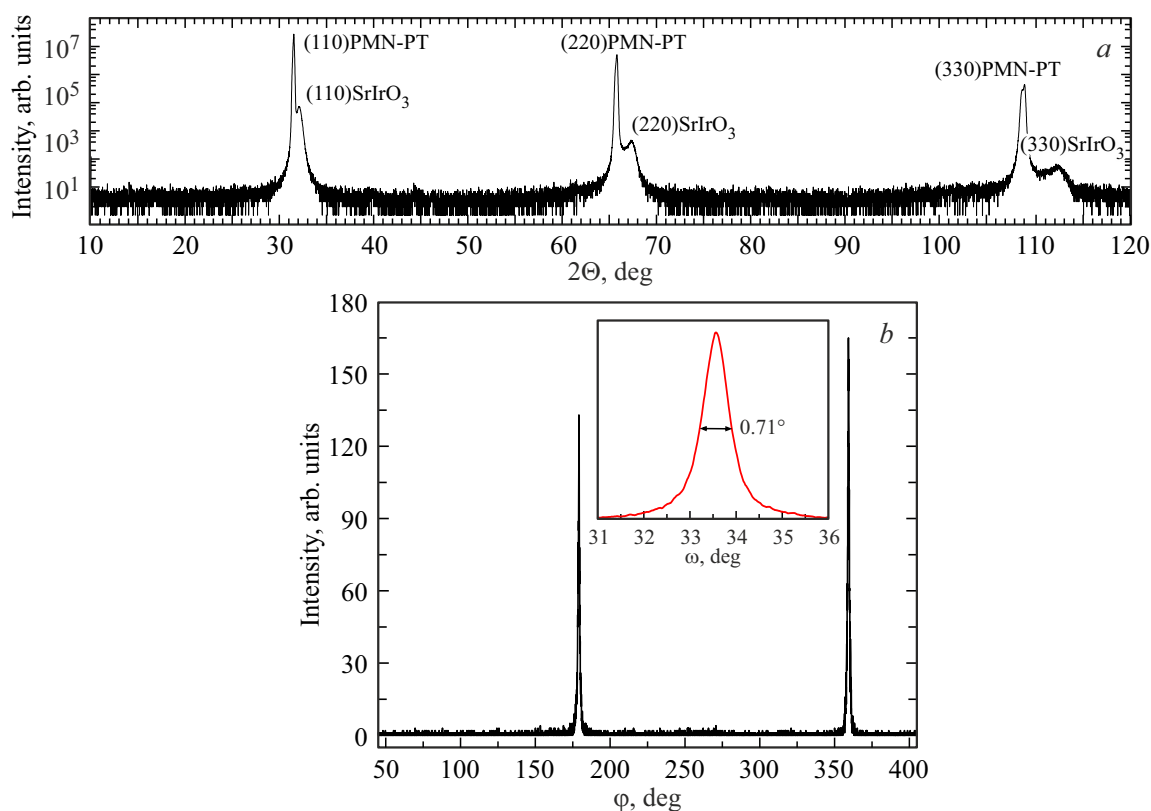


Рис. 2. (a) Рентгеновская дифрактограмма брэгговского отражения эпитаксиальной тонкой SrIrO_3 пленки, выращенной на PMN-PT подложке. (b) φ -скан SrIrO_3 пленки, на вставке представлена кривая качания (ω -скан) рефлекса $(220)\text{SrIrO}_3$. Ширина кривой качания на полувысоте (FWHM) равна 0.71° .

Таблица 1. Структурные параметры эпитаксиальных тонких SrIrO_3 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 SrIrO_3 ($V_{crystal} = 62.1 \cdot 10^{-3} \text{ nm}^3$).

Образец	c_f , nm	a_s , nm	V_{eff} , 10^{-3} nm^3	m , %
Объемный SrIrO_3	0.396	0.396	62.1	—
$\text{SrIrO}_3/\text{SrTiO}_3$	0.403 ± 0.002	0.390	61.5	3.2
$\text{SrIrO}_3/\text{NdGaO}_3$	0.404 ± 0.001	0.386	60.4	4.5
$\text{SrIrO}_3/\text{LSAT}$	0.402 ± 0.001	0.387	60.2	3.9
$\text{SrIrO}_3/\text{PMN-PT}$	0.394 ± 0.001	0.402	63.5	-1.9

наиболее близко к объему ячейки орторомбической фазы кристалла SrIrO_3 ($V_{crystal} = 62.1 \cdot 10^{-3} \text{ nm}^3$).

Для пленки на PMN-PT (рис. 2, *a*) наблюдается растяжение в плоскости подложки ($m = -1.9\%$) с параметром подложки $a = 0.402 \text{ nm}$, что приводит к увеличению эффективного объема псевдокубической элементарной ячейки V_{eff} до $63.5 \cdot 10^{-3} \text{ nm}^3$ 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 φ -скан для (110) SrIrO_3 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 $\varphi \approx 180^\circ$ 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 SrIrO_3 в плоскости подложки.

Анализ кривой качания (ω -скан) отражения (220) SrIrO_3 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 SrIrO_3 и подложкой PMN-PT.

Для определения влияния условий роста на структурные параметры пленок, выращенных на подложке SrTiO_3 , исследовались зависимости кристаллических

параметров от давления смеси Ar/O_2 при соотношении 10/35. Рентгеноструктурный анализ SrIrO_3 пленок (рис. 3) показывает формирование однофазных эпитаксиальных SrIrO_3 пленок с характерными рефлексами (001) для всех трех образцов. При этом наблюдаются слабые пики металлического иридия, интенсивность которых варьируется в зависимости от условий роста. SrIrO_3 пленка, полученная при давлении 0.25 mbar (рис. 3, *a*), демонстрирует параметр $c = 0.403 \text{ nm}$ и эффективный объем элементарной ячейки $V_{eff} = 61.45 \cdot 10^{-3} \text{ nm}^3$. Увеличение давления до 0.5 mbar (рис. 3, *b*) приводит к росту параметра c до 0.407 nm при одновременном уменьшении объема ячейки до $61.15 \cdot 10^{-3} \text{ nm}^3$. Дальнейшее повышение давления до 0.75 mbar (рис. 3, *c*) сопровождается небольшим уменьшением параметра c до 0.405 nm и увеличением эффективного объема ячейки до $61.76 \cdot 10^{-3} \text{ nm}^3$.

Зависимость параметра c от общего давления газовой смеси имеет немонотонный характер с максимумом для SrIrO_3 пленок при $P_{\text{Ar}/\text{O}_2} = 0.5 \text{ mbar}$. Параметр рассогласования m демонстрирует монотонное увеличение с ростом давления от 3.2% при $P_{\text{Ar}/\text{O}_2} = 0.25 \text{ mbar}$ до 3.7% при $P_{\text{Ar}/\text{O}_2} = 0.75 \text{ mbar}$.

4. Атомно-силовая микроскопия SrIrO_3 пленок

Для исследования морфологии поверхности тонких SrIrO_3 пленок, выращенных на различных подложках, был использован метод атомно-силовой микроскопии (АСМ). Изображения поверхности образцов были получены в полуконтактном режиме на сканирующем зондовом микроскопе Solver PRO M (НТ МДТ). Данный микроскоп обеспечивает разрешение до 1 nm и позволяет исследовать образцы размером до $12 \times 12 \times 2 \text{ mm}$, разрешение позиционирования $5 \mu\text{m}$.

На рис. 5, *a* представлено АСМ-изображение SrIrO_3 пленки, выращенной на подложке SrTiO_3 . Топографический скан размером $5 \times 5 \mu\text{m}^2$ демонстрирует зернистую структуру с квазирегулярным распределением особенностей рельефа. Профиль высоты вдоль отмеченной

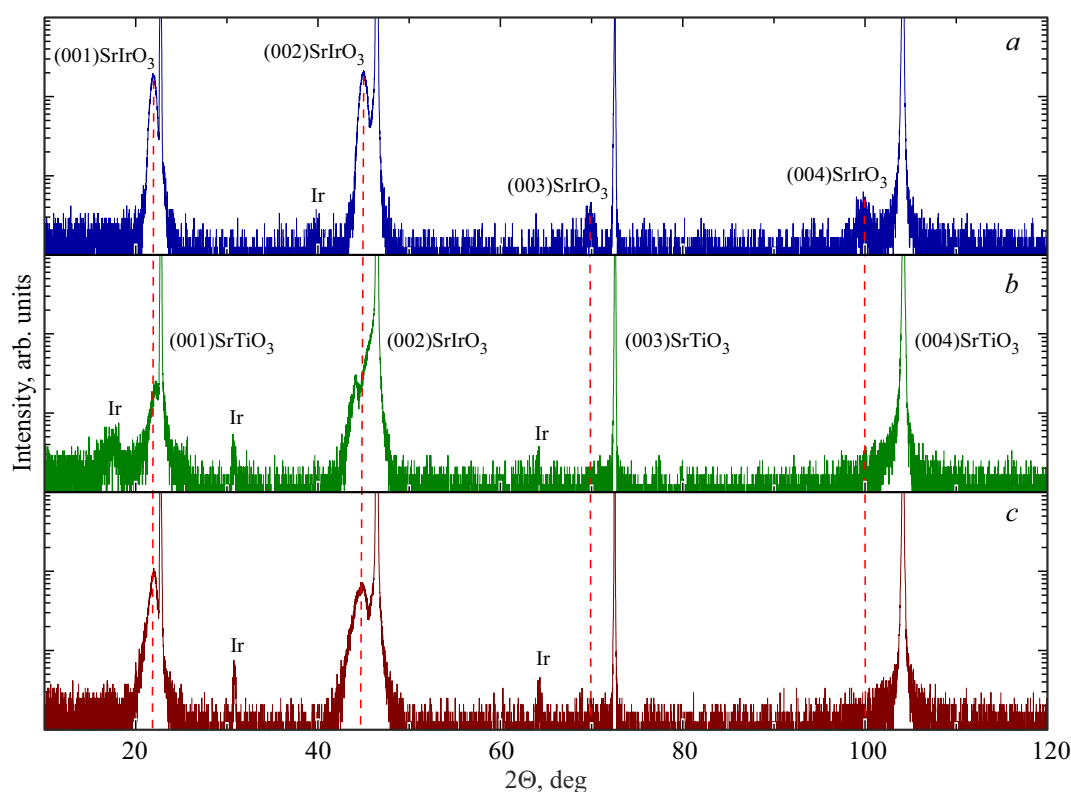


Рис. 3. Рентгеновские дифрактограммы тонких SrIrO_3 пленок, выращенных на SrTiO_3 подложках, при соотношении газов аргона/кислорода 10/35 и давлении смеси: (a) $P_{\text{Ar/O}_2} = 0.25$ mbar, (b) 0.5 mbar, (c) 0.75 mbar.

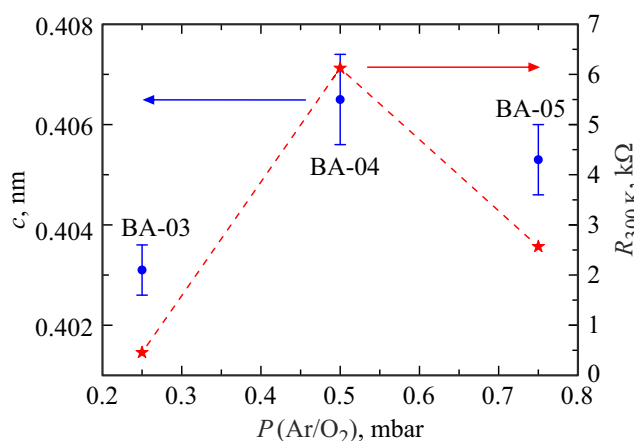


Рис. 4. Зависимость параметра элементарной кристаллической ячейки (заполненные круги) от давления газовой смеси $P_{\text{Ar/O}_2}$ (соотношение газов $\text{Ar/O}_2 = 10/35$) для исследуемых эпитаксиальных тонких SrIrO_3 пленок, выращенных на SrTiO_3 подложках: 0.25 mbar (BA-03), 0.5 mbar (BA-04), 0.75 mbar (BA-05). Звездами обозначены точки, соответствующие сопротивлению данных образцов при 300 K.

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 SrIrO_3 пленки составляет $\text{RMS} = 1.44$ nm.

Дополнительные статистические параметры, полученные при анализе распределения высот, свидетельствуют о высоком качестве SrIrO_3 пленки на подложке SrTiO_3 [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 SrTiO_3 среднеквадратичную шероховатость ($\text{RMS} = 1.44$ 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.

SrIrO_3 пленка, выращенная на LSAT подложке, продемонстрировала наименьшую среднеквадратичную шероховатость среди всех образцов (0.31 nm), однако анализ статистических параметров выявил anomalously 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].

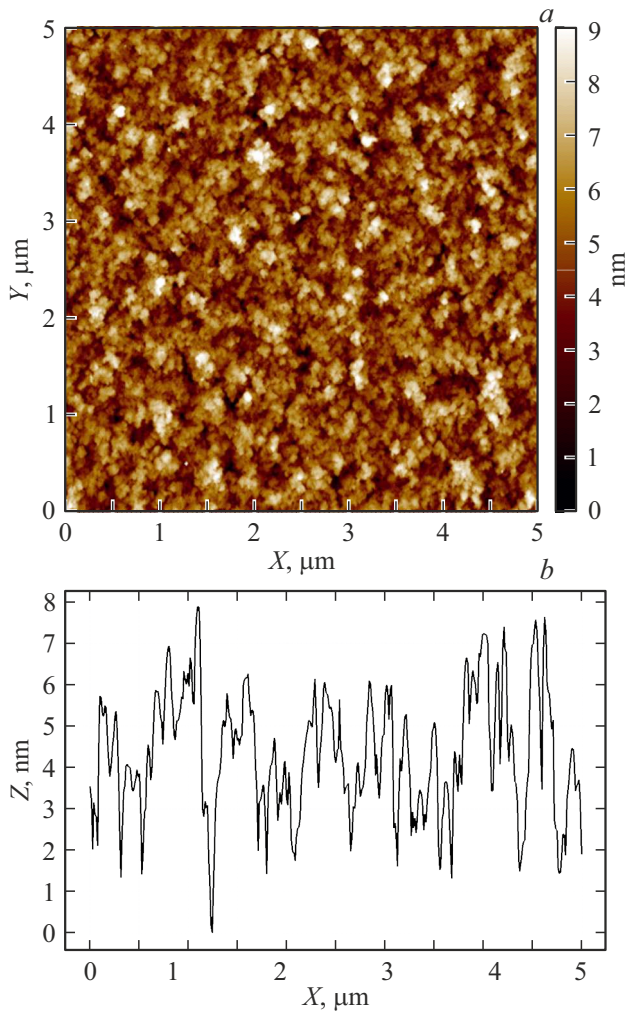


Рис. 5. (а) АСМ-изображение поверхности эпитаксиальной SrIrO_3 пленки, выращенной на SrTiO_3 подложке. Размер области сканирования $5 \times 5 \mu\text{m}^2$. (б) График профиля высоты вдоль горизонтали $Y = 1 \mu\text{m}$ на АСМ-изображении.

SrIrO_3 пленка на PMN-PT подложке характеризуется наиболее высокой шероховатостью ($\text{RMS} = 6.11 \text{ nm}$) 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 SrIrO_3 существенно зависят от выбранной подложки. Образцы на подложках SrTiO_3 и NdGaO_3 демонстрируют сопоставимые значения шероховатости, однако пленка на SrTiO_3 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 релье-

фом поверхности, что может быть обусловлено структурным несоответствием между подложкой и растущим слоем.

На основании анализа морфологии поверхности методом АСМ можно заключить, что подложка SrTiO_3 обеспечивает оптимальные условия для роста высококачественных эпитаксиальных SrIrO_3 пленок с равномерной морфологией поверхности.

5. Электротранспортные характеристики

Электротранспортные измерения SrIrO_3 пленок были проведены четырехзондовым методом по схеме Монтеромери в диапазоне температур $77\text{--}300 \text{ K}$ [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 пленки для трех значений давления смеси при $P_{\text{Ar/O}_2} = 0.25, 0.5$ и 0.75 mbar .

SrIrO_3 пленка (BA-03, 0.25 mbar) демонстрирует монотонное уменьшение сопротивления от $0.45 \text{ k}\Omega$ при 300 K до $0.39 \text{ k}\Omega$ при 77 K . Для SrIrO_3 пленки (BA-04, 0.5 mbar) сопротивление увеличивается с уменьшением температуры от $6.0 \text{ k}\Omega$ при 300 K до $9.5 \text{ k}\Omega$ при 77 K [27]. SrIrO_3 пленка (BA-05, 0.75 mbar) показывает увеличение сопротивления от $2.5 \text{ k}\Omega$ при 300 K до $3.0 \text{ k}\Omega$ при 77 K . Наблюдаемое различие в характере проводимости и абсолютных значениях сопротивления связано с изменением кислородных вакансий в SrIrO_3 пленках [28].

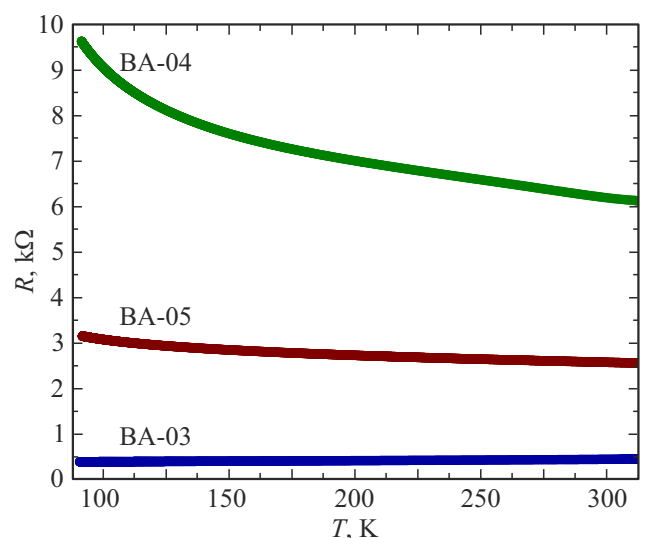


Рис. 6. Температурная зависимость квадрата сопротивления SrIrO_3 пленок, полученных на SrTiO_3 подложках при разном давлении газовой смеси $P_{\text{Ar/O}_2}$ (соотношение газов $\text{Ar/O}_2 = 10/35$): 0.25 mbar (BA-03), 0.5 mbar (BA-04), 0.75 mbar (BA-05).

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

Образец	T_K , К	R_K , Ω	R_0 , Ω	R_1 , Ω	T_M , К
SrIrO ₃ /SrTiO ₃	9.6	1268	5965	0.3	1.04
SrIrO ₃ /NdGaO ₃	253	2225	6258	0.6	1.62
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

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 SrIrO₃ пленок от температуры $R(T)$ были проанализированы в рамках следующей модели [31]:

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

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, $T_K^* = \sqrt{\frac{T_K}{2^{1/S}-1}}$. 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 $5 \cdot 10^{-3} \Omega$ для SrIrO₃ на PMN-PT. Такое различие может быть связано с изменением фононного рассеяния вследствие деформации кристаллической решетки.

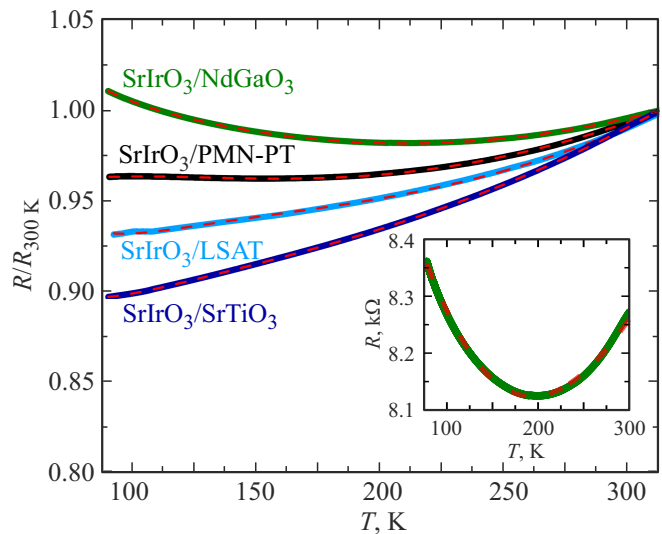


Рис. 7. Зависимости нормированного сопротивления от температуры, пунктиром показаны аппроксимации по формуле (1). На вставке показана зависимость квадрата сопротивления SrIrO₃ пленки, выращенной на NdGaO₃ подложке, с аппроксимацией по формуле (1).

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.

6. Анализ химического состава и электронной структуры методом рентгеновской фотоэлектронной спектроскопии

Для исследования химического состава и электронной структуры SrIrO₃ пленок использовался метод рентгеновской фотоэлектронной спектроскопии (РФЭС), основанный на явлении фотоэффекта, возникающего под действием монохроматического рентгеновского излучения на SrIrO₃ пленку. Сдвиги фотоэлектронных линий энергии связи позволяют с большой точностью анали-

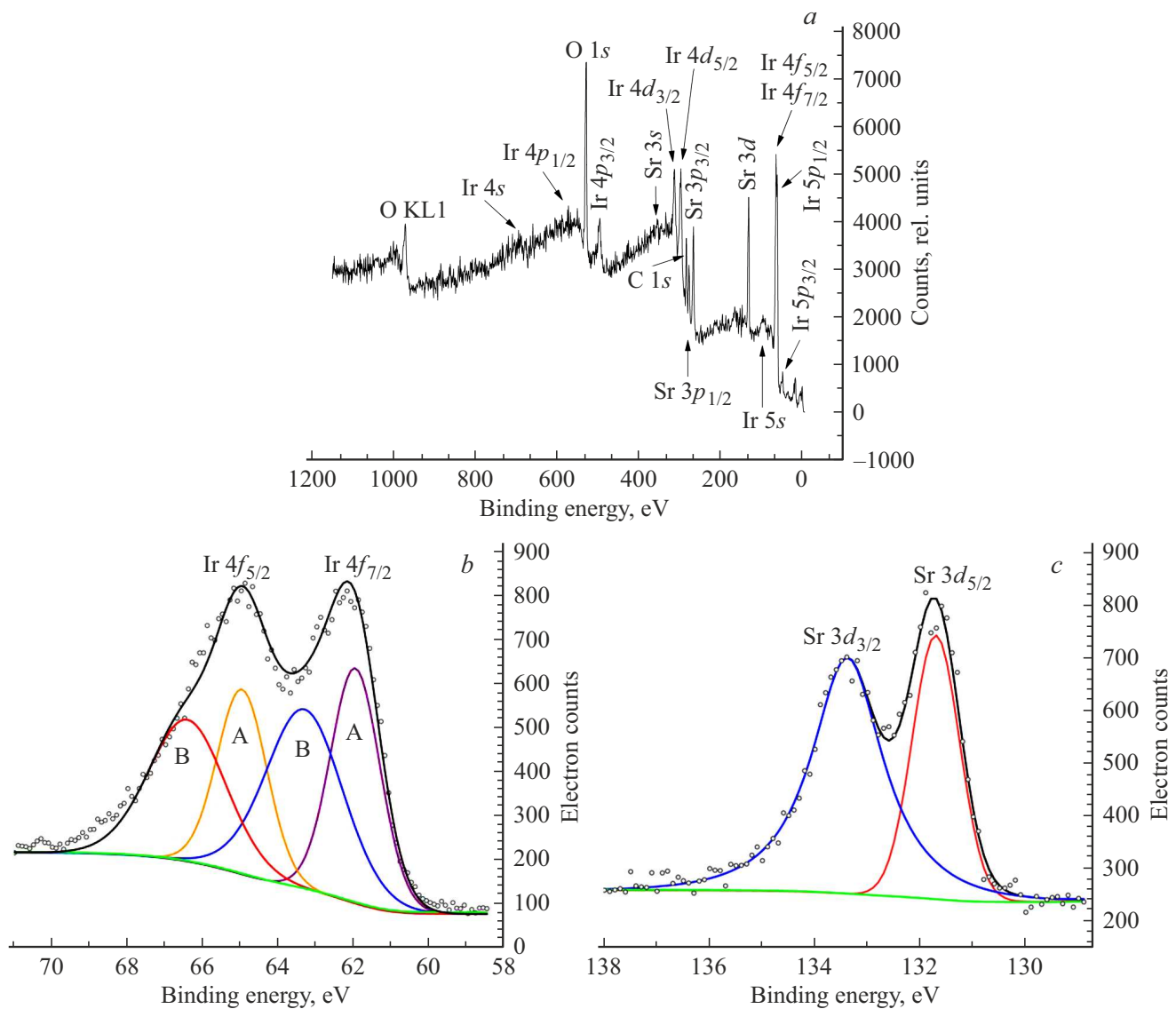


Рис. 8. (a) — Обзорный фотоэлектронный спектр SrIrO_3 пленки, выращенной на $(001)\text{SrTiO}_3$ подложке. Стрелками обозначены положения пиков, соответствующие энергиям связи электронов различных подуровней электронных оболочек химических элементов, содержащихся в пленке. Примерные значения уровней энергий для идентификации пиков (принадлежность элементу и подуровню) определены из XPS NIST Database. (b) — Подробный РФЭС спектр диапазона энергий связи для электронного подуровня $4f$ иридия. Оранжевая Ir(A) $4f_{5/2}$ и красная Ir(B) $4f_{5/2}$ и линии — две составляющие аппроксимации функциями Фойгта пика Ir $4f_{5/2}$. Фиолетовая Ir(A) $4f_{7/2}$ и синяя Ir(B) $4f_{7/2}$ линии — две составляющие аппроксимации пика Ir $4f_{7/2}$. (c) — Подробный РФЭС спектр диапазона энергий связи для электронного подуровня $3d$ стронция. Красная линия — аппроксимация пика Sr $3d_{5/2}$. Синяя линия — аппроксимация пика Sr $3d_{3/2}$. 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 измеренных данных.

зирать 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 $\text{AlK}\alpha$ с энергией испускаемого фотона $E = h\nu = 1486.6$ 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 микрон. 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

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

Образец	Sr, %	Ir, %	Sr/Ir	Ir(B)/Ir(A)	ϵ_{SO} , 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

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 спин-орбитального взаимодействия (рисунок 8, б). 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 ($\epsilon_{SO} \sim 3.0$ eV) [34]. Такие значения спин-орбитального расщепления 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 ($\epsilon_{SO} = 3.10$ 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 4*f*_{7/2} и Ir 4*f*_{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

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, в).

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, за 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 K для пленки на NdGaO₃ до 556 K 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 4*f* состояний,

что характерно для Ir^{4+} в октаэдрическом окружении. Отношение $\text{Ir(B)}/\text{Ir(A)}$ 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 SrIrO_3 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

- [1] 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. Arnett. *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. Kisilinskii, 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. Константиныч, Г.Д. Ульянов, 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. Константиныч, Н.В. Андреев, Т.А. Свиридова. *ФТТ* **57**, 12, 2446 (2015).
- [30] В.А. Байдинова, Н.В. Дубицкий, И.Е. Москаль, Г.А. Овсянников, А.М. Петржик, Г.Д. Ульянов, К.И. Константиныч, 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. Konstantinović, B. Martínez, L. Balcells, A. Pomar. *J. Magn. Magn. Mater.* **501**, 166419 (2020).

Редактор Ю.Э. Кутяев