

04,06

Наноструктура, диэлектрические и сегнетоэлектрические свойства гетероструктуры $\text{BiFeO}_3/\text{SrTiO}_3$, выращенной на подложке $\text{Pt}/\text{Al}_2\text{O}_3$ (001) методом ВЧ-катодного распыления

© Я.Ю. Матяш, Н.В. Макинян, А.В. Павленко

Федеральный исследовательский центр Южный научный центр РАН,
Ростов-на-Дону, Россия

E-mail: matyash.ya.yu@gmail.com

Поступила в Редакцию 25 февраля 2026 г.

В окончательной редакции 7 марта 2026 г.

Принята к публикации 11 марта 2026 г.

С использованием методов рентгендифракционного анализа, диэлектрической спектроскопии и атомно-силовой микроскопии исследованы фазовый состав, наноструктура, диэлектрические и сегнетоэлектрические свойства гетероструктуры $\text{BiFeO}_3/\text{SrTiO}_3/\text{Pt}/\text{Al}_2\text{O}_3$ (*c*-срез). Показано, что слои BiFeO_3 и SrTiO_3 были выращены поликристаллическими текстурированными в направлении кристаллографической оси [111], параллельной нормали к подложке Al_2O_3 . Установлено, что гетероструктуре свойственны высокие величины спонтанной поляризации (деградации характеристик не наблюдается вплоть до 10^8 циклов переключения), малые токи утечки, а значения ϵ в диапазоне $T = 83\text{--}493\text{ K}$ монотонно возрастают и составляют $250\text{--}320$. Продemonстрировано, что сформированная в контактном режиме атомно-силового микроскопа путем приложения постоянного напряжения доменная структура пленки BiFeO_3 хорошо визуализировалась более 4 часов. Обсуждаются причины выявленных закономерностей.

Ключевые слова: тонкие пленки, мультиферроик, феррит висмута, титанат стронция.

DOI: 10.61011/FTT.2026.03.62939.9117

1. Введение

Мультиферроик BiFeO_3 (BFO) является представителем класса материалов, сочетающих в широком интервале температур магнитные и сегнетоэлектрические (СЭ) свойства с температурой СЭ фазового перехода $T_C \sim 1103\text{ K}$, а антиферромагнитного фазового перехода $T_N \sim 643\text{ K}$ [1]. В последние десятилетия BFO интенсивно изучается как в крупнокристаллическом, так и в тонкопленочном состояниях, что связано как с широким спектром его потенциального применения [2], так и интересными для фундаментальных исследований свойствами [3–6]. При комнатной температуре BFO характеризуется высокой для СЭ спонтанной поляризацией, которая в случае тонких пленок зависит от их структурного совершенства, кристаллографической ориентации, симметрии, и варьируется в пределах от $50\text{ }\mu\text{C}/\text{cm}^2$ [7] до $120\text{ }\mu\text{C}/\text{cm}^2$ [8]. В свою очередь кристаллическая структура гетероэпитаксиально выращенных пленок тесно связана с их эпитаксиальной деформацией при росте на различных подложках, а тип используемого метода осаждения может играть важную роль [9,10]. Значительная часть исследований пленок BFO реализуется на диэлектрических подложках титаната стронция SrTiO_3 (001) (STO), а также проводящих SrRuO_3 (001)/STO (001) или Nb:STO (001) [9,10], так как в этом случае пленки BFO получают хорошего структурного совершенства вследствие близости структур с подложкой. Однако подложки STO практически не используются в технике.

Применение же титаната стронция как буферного слоя при росте пленок BFO может быть эффективно использовано при их росте на другом типе подложек [11,12]. В частности, в [13] нашей научной группой показано, что использование подслоя титаната стронция позволяет вырастить монокристаллические пленки BFO (111) на промышленно используемых подложках Al_2O_3 (0001). Объединение же слоев с различными характеристиками в одной функциональной гетероструктуре позволяет изменить свойства всей структуры и выявить новые, в связи с чем исследования в этом направлении представляются актуальными.

В данной работе нами представляются результаты исследований наноструктуры, диэлектрических и сегнетоэлектрических свойств гетероструктуры $\text{BFO}/\text{STO}/\text{Pt}/\text{Al}_2\text{O}_3$ (001), с сопоставимыми толщинами слоев феррита висмута и титаната стронция (~ 170 и 180 nm , соответственно).

2. Методы получения и исследования образцов

Осаждение пленок феррита висмута и титаната стронция на подложку Pt (111)/ Al_2O_3 (0001) осуществлялось в обоих случаях методом высокочастотного (ВЧ) катодного напыления по технологии [14] на двух различных установках. Рентгендифракционные исследования пленок проводили на многофункциональном рентгеновском комплексе „РИКОР“ ($\text{CuK}\alpha$ -излучение).

Морфология поверхности пленок изучалась в полу-контактном и контактном режимах на атомно-силовом микроскопе „Ntegra Academia“ (NT-MDT Spectrum Instruments, Россия) с использованием кантилевера NS15/50 (NT-MDT Spectrum Instruments, Россия). Локальные сегнетоэлектрические характеристики объектов исследовались в режимах силовой микроскопии пьезо-отклика (СМП), спектроскопии СМП и микроскопии зонда Кельвина (МЗК) при помощи кремниевго кантилевера FMG01 с покрытием Pt (NT-MDT Spectrum Instruments, Россия, жесткость ~ 4.5 N/m, радиус закругления зонда — 35 nm). Затем в режиме МЗК по двух-проходной методике исследовали релаксацию индуцированных при поляризации областей. При регистрации сигнала поверхностного потенциала зонд отводился на расстояние 65 nm от поверхности пленки, амплитуда колебаний кантилевера составила 3 V, частота 134.8 kHz. Обработка сканов осуществлялась в программе Image Analysis и Gwyddion.

Для проведения электрофизических измерений на поверхности пленки BFO методом магнетронного распыления на установке Emitech SC7620 через теньевую маску с диаметром отверстий 90–100 μm осаждали металлические электроды из Pt. Измерение относительной диэлектрической проницаемости (ϵ) и тангенса угла диэлектрических потерь ($\text{tg } \delta$) при $T = 83\text{--}493$ K осуществляли на измерительном комплексе на базе LCR-метра E7-28 и криосистемы Linkam THMS600 stage. Измерения динамических петель диэлектрического гистерезиса ($P(E)$) и усталости проводили на анализаторе сегнетоэлектриков DX-FE2000 и аналитической зондовой станции MST4000A. Циклирование осуществлялось с помощью пилообразного сигнала с частотой $f = 300$ kHz и амплитудой поля $U = 15$ V. Измерение петель гистерезиса происходило на частоте $f = 1$ kHz с амплитудой $U = 20$ V.

Измерения токов утечки проводилось с помощью электрометра Tonghui TH2690 (Changzhou Tonghui Electronic Co., Ltd (Китай)) с использованием специализированного программного обеспечения (Программа для ЭВМ „LeakMeas“ [15]). Ток измерялся в ступенчатом режиме с выдержкой $t = 4$ s после прироста напряжения с шагом $U = 0.2$ V.

3. Экспериментальные результаты и обсуждение

На рентгенограммах θ – 2θ сканирования образца BFO/STO/Pt/ Al_2O_3 присутствовали только отражения от плоскостей слоев BFO, STO, Pt и подложки Al_2O_3 , что свидетельствует об отсутствии в объекте примесных фаз (рис. 1).

При сопоставлении величин интенсивностей линий установлено, что слои BFO и STO вырастают поликристаллическими с преимущественной ориентацией в направлении кристаллографической оси [111], параллель-

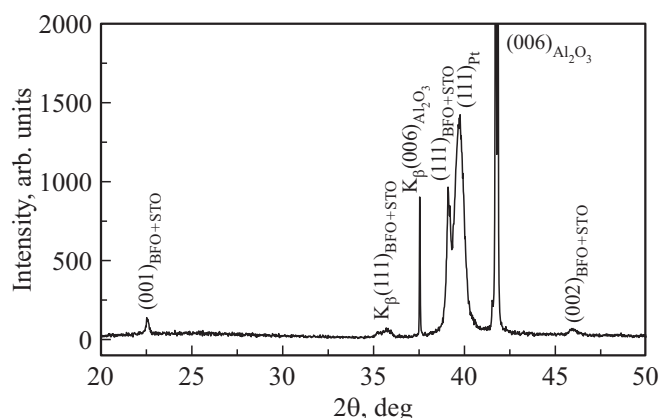


Рис. 1. θ – 2θ рентгенограмма гетероструктуры BFO/STO/Pt/ Al_2O_3 .

ной нормали к подложке (ось [006] подложки Al_2O_3). Поликристаллическая структура пленки BFO ярко отразилась на структуре ее поверхности (рис. 2) — она является, с одной стороны, достаточно однородной (гистограмма распределения высот по поверхности имеет симметричный унимодальный вид), не содержит каверн или иных дефектов поверхности, а с другой стороны — перепад высот достигает 100 nm.

Поверхность пленки BFO представлена ростовыми блоками овальной и трапециевидной формы, края блоков сглажены. Средний размер кристаллитов, рассчитанный по методу Watershed составил $\sim 90\text{--}95$ nm. Значение среднеквадратичной шероховатости (S_q) составило ~ 12.3 nm, что составляет около 3.5 % от общей толщины гетероструктуры (~ 350 nm).

Сегнетоэлектрические свойства гетероструктуры BFO/STO достаточно ярко проявились при измерении петель диэлектрического гистерезиса $P(E)$ и тока $I(E)$, представленных на рис. 3. По мере роста амплитуды E фиксировалось семейство вложенных петель $P(E)$ и $I(E)$, что характерно СЭ материалам. Несмотря на то, что исследуемая гетероструктура — двухслойная, компоненты которой с точки зрения СЭ отклика кардинально отличаются, при измерениях мы не фиксировали аномалий в переключении, которые наблюдались, например, в аналогичной гетероструктуре $\text{BiFeO}_3/\text{Sr}_{0.5}\text{Ba}_{0.5}\text{Nb}_2\text{O}_6/\text{Pt}/\text{MgO}$ [16]. Это может быть объяснено тем фактом, что пленки STO в отличие от $\text{Sr}_{0.5}\text{Ba}_{0.5}\text{Nb}_2\text{O}_6$ при комнатной температуре находятся в параэлектрической фазе, и поэтому при подаче электрического поля основные эффекты переключения поляризации происходят только в слое BFO, а в слое STO происходит „подстройка“ благодаря его высокой поляризуемости.

При значениях E до ~ 620 kV/cm вклада в измерения от токов утечек не наблюдалось, а величины коэрцитивных полей (E_c), остаточной (P_r) и максимальной (P_{max}) поляризаций имели промежуточное между теми, что были зафиксированы для однослойных пленок

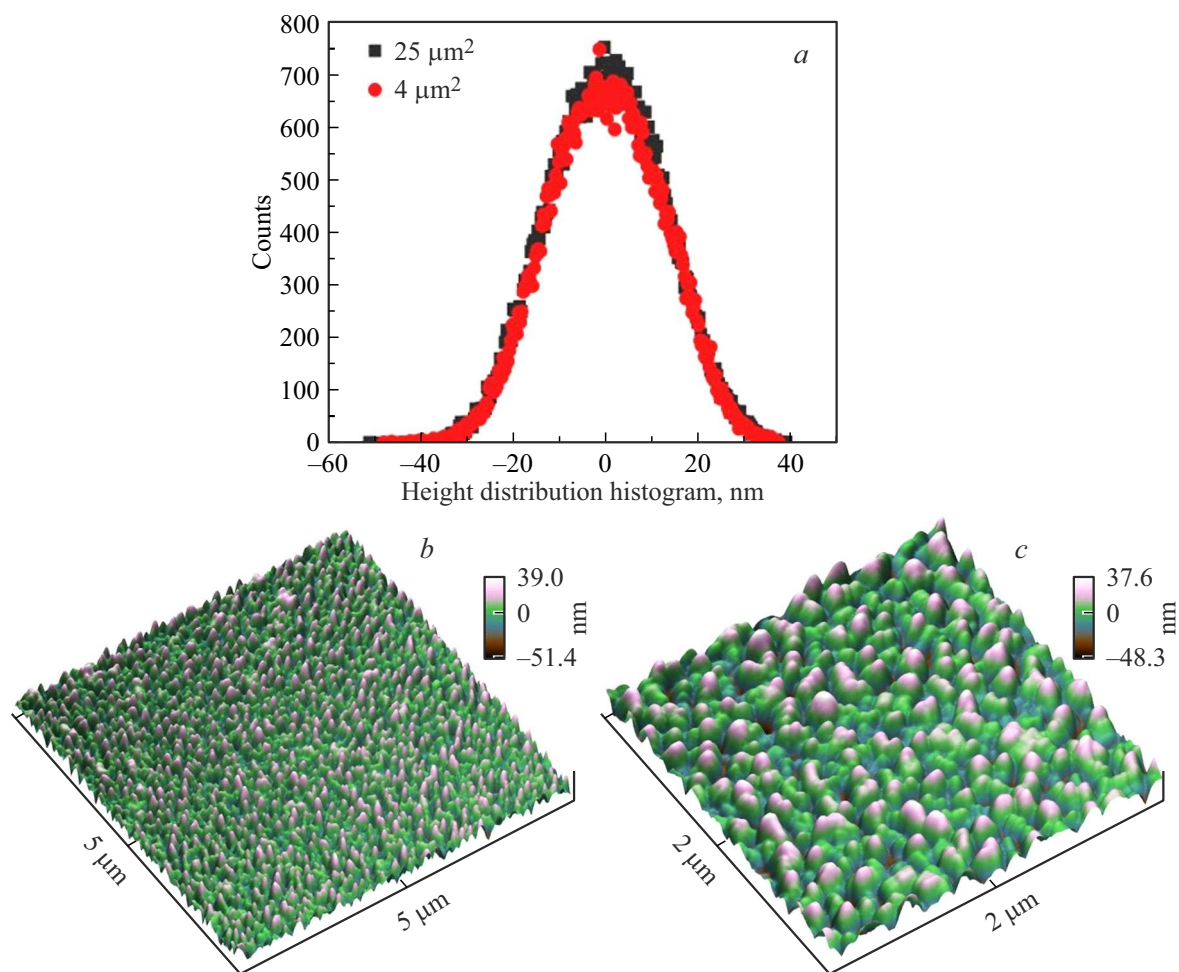


Рис. 2. АСМ-сканы топографии участков поверхности BFO/STO/Pt/Al₂O₃ площадью 25 μm² и 4 μm², а также их гистограммы распределения высот по поверхности.

феррита висмута и титаната стронция, и составляли 180 kV/cm, 35 μC/cm² и 78 μC/cm² и, соответственно. При $E > 620$ kV/cm компонента токов утечки начала давать существенный вклад, приводя сначала к скруглению петель, а затем к электрическому пробое образца (в ряде случаев происходило выгорание чипа при пробое). С учетом этого были проведены измерения токов утечек образца в ступенчатом режиме (рис. 3, c). Величины тока (и плотности тока) в приведенных вольтамперных характеристиках $I(U)$ сопоставимы или ниже, чем данные в литературе для сверхрешеток из BFO и STO [17] или однослойных тонкопленочных структур на основе BFO [5, 18–20]. Высокие величины токов переключения поляризации, сложная доменная структура, проводимость доменных стенок приводят к тому, что в пленках BFO деградация СЭ характеристик согласно экспериментальным данным ряда авторов происходит достаточно быстро (после 10^5 циклов переключения) [21–25], что ограничивает практическое применение материала. В исследуемой же нами двухслойной гетероструктуре наблюдалась хорошая стабильность СЭ

параметров (рис. 3, d) деградация начинала проявляться после 10^8 циклов переключения поляризации.

Как видно из рис. 4 пленке BFO/STO в диапазоне $T = 83–493$ K свойственны средние величины ϵ (250–320) и достаточно низкие $\tan \delta$ (0.05–0.1). Дисперсия ϵ и $\tan \delta$ вплоть до температуры ~ 373 K практически не изменялась и оставалась низкой, а при $T > 373$ K — незначительно возрастала. Диэлектрические потери резко начали возрастать при $T > 453$ K. При $T = 383–393$ K как на зависимостях $\epsilon(T)$, так и $\tan \delta(T)$, наблюдались аномалии, природа которых пока не ясна.

На рис. 5 приведены топография, вертикальная и латеральная компоненты амплитуды пьезоотклика поверхности гетероструктуры, полученные в режиме СМП.

Цветными линиями выделены ростовые блоки, в пределах которых наблюдаются значительные особенности в сигналах вертикального и латерального пьезооткликов, вероятнее всего, связанные с доменным строением слоя BFO. Анализируя одновременно указанные сигналы и учитывая данные рентгендифрактометрии, можно отметить некоторые особенности. С учетом рис. 1 в пленке

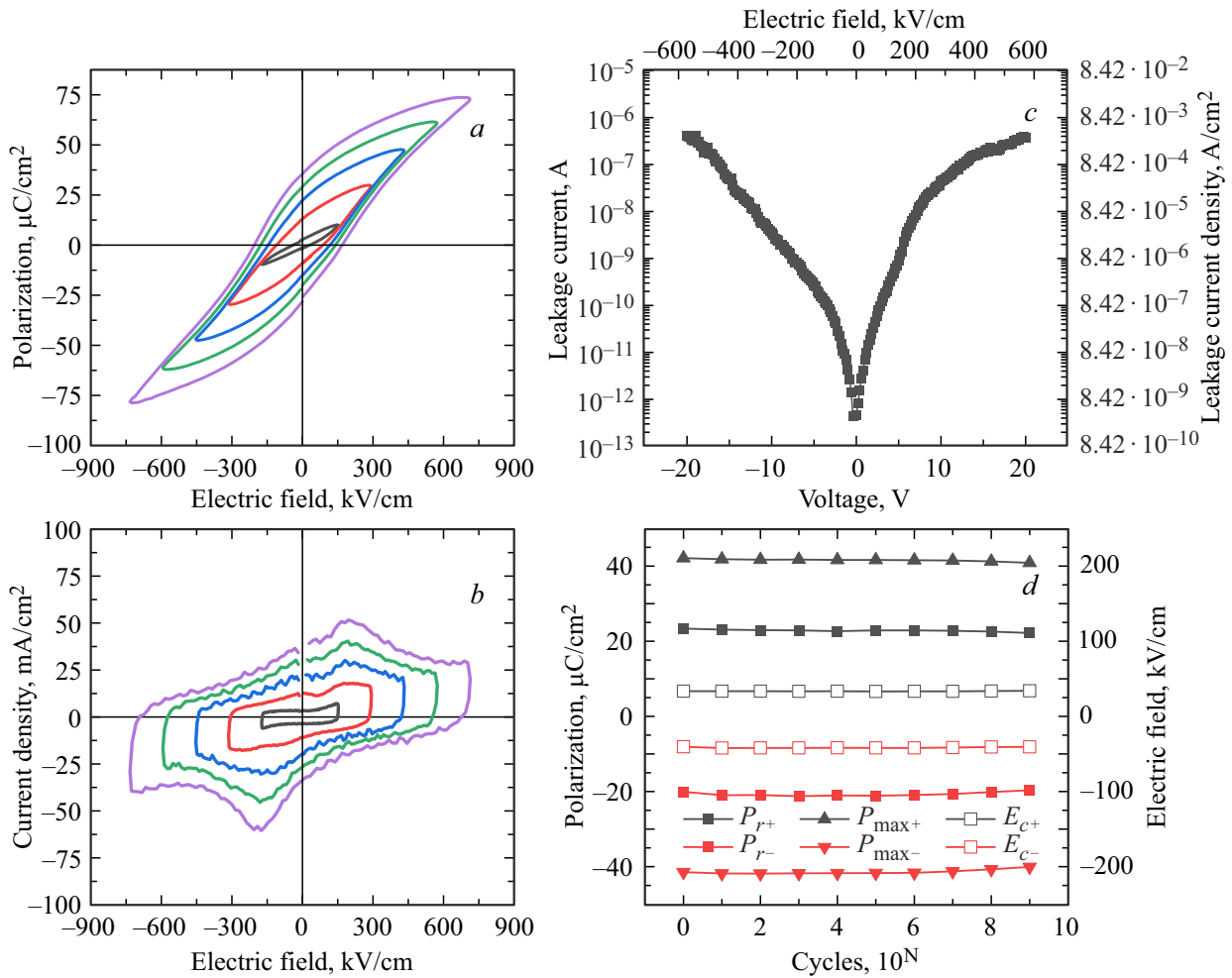


Рис. 3. Зависимости $P(E)$ (a) и $I(E)$ (b) гетероструктуры Pt/BFO/STO/Pt/Al₂O₃ при комнатной температуре. (c) Вольт-амперная характеристика гетероструктуры Pt/BFO/STO/Pt/Al₂O₃. (d) Зависимости параметров петли P_r , $P_{\max}$ и E_c от количества циклов переключения.

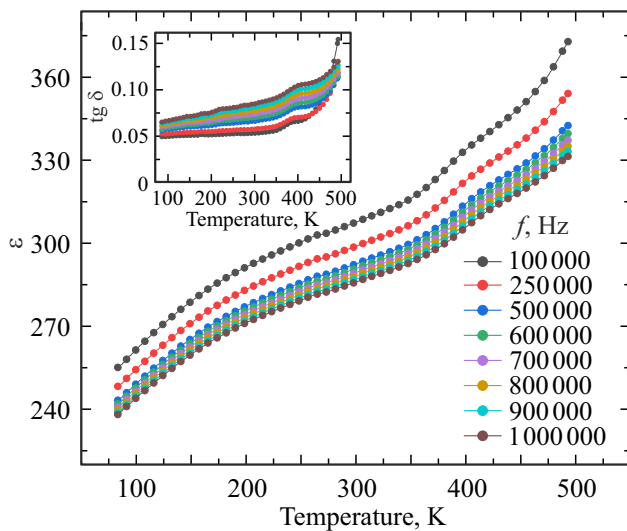


Рис. 4. Зависимости $\epsilon(T, f)$ и $\text{tg}\delta(T, f)$ гетероструктуры Pt/BFO/STO/Pt/Al₂O₃ при $T = 83\text{--}493$ K и $f = 10^5\text{--}10^6$ Hz.

BFO фиксируются кристаллиты двух ориентаций [001] и [111], причем ориентация [111] является преимущественной. Согласно [26,27] в тонких слоях BFO могут формироваться домены с различными направлениями поляризации так, что между ними возникают 71° , 109° и 180° доменные стенки. Учитывая, что в BFO, вероятнее всего, сохраняется ромбоэдрическая структура, мы ожидаем появления на сканах СМП одновременно 71° и 109° , а также 180° доменов. Для малочисленных кристаллитов [001] на сканах вертикального пьезоотклика ожидается значительный отклик от 180° доменов, и при этом малый на сканах латерального пьезоотклика. В случае кристаллитов [111] ситуация обратная: слабый сигнал вертикального пьезоотклика и сильный латерального. На основе сканов рис. 5, b, d были построены гистограммы распределения сигналов амплитуды пьезоотклика (рис. 5, e). Видно, что распределение латеральной компоненты амплитуды пьезоотклика представлено на первый взгляд довольно узким пиком, тогда как распределение вертикальной компоненты зна-

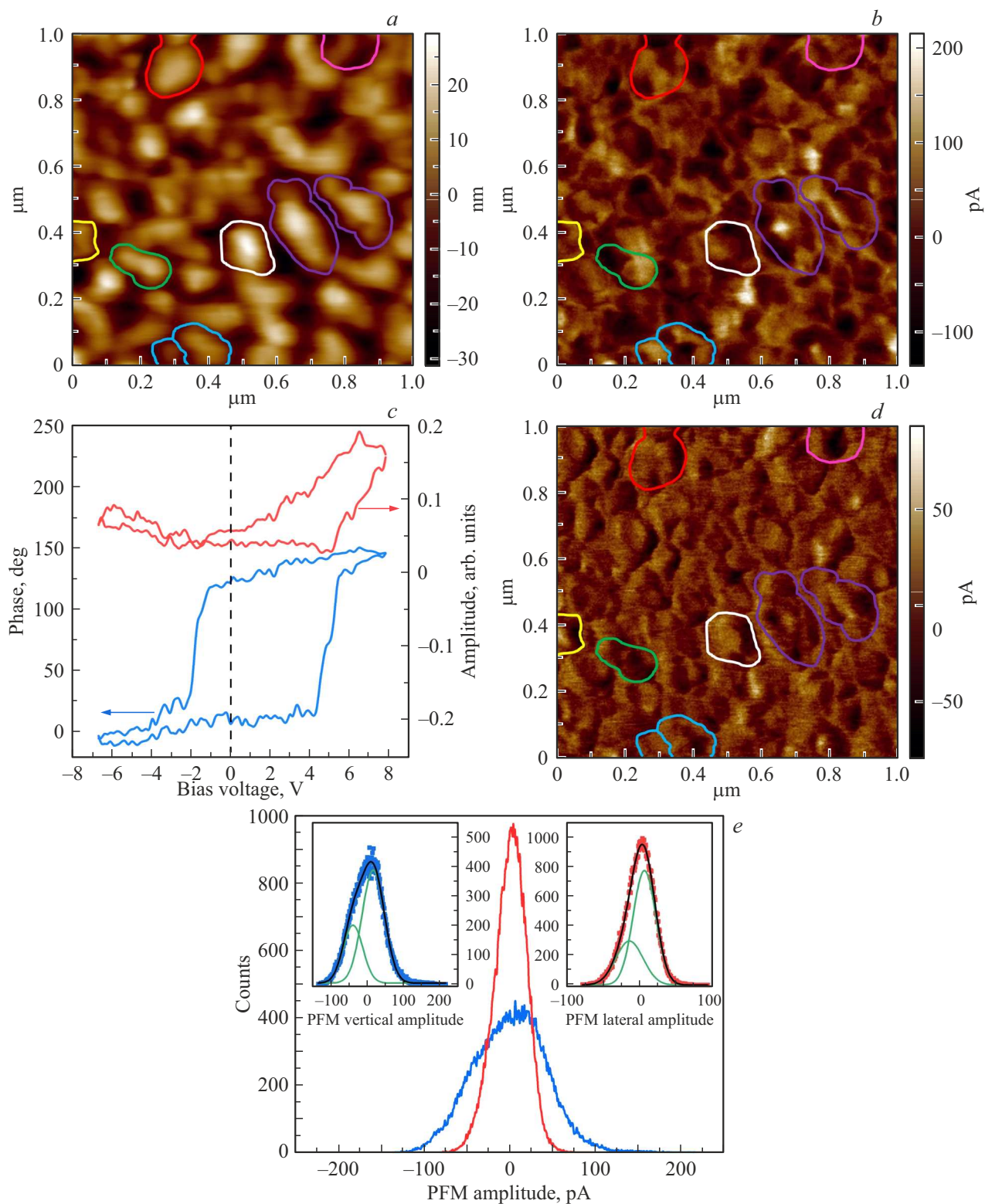


Рис. 5. Топография поверхности (a), изображения амплитуды вертикального (b) и латерального (d) пьезооткликов, зависимости амплитуды и фазы локального пьезоотклика (c). Гистограммы распределения сигналов амплитуды вертикального и латерального пьезоотклика (e).

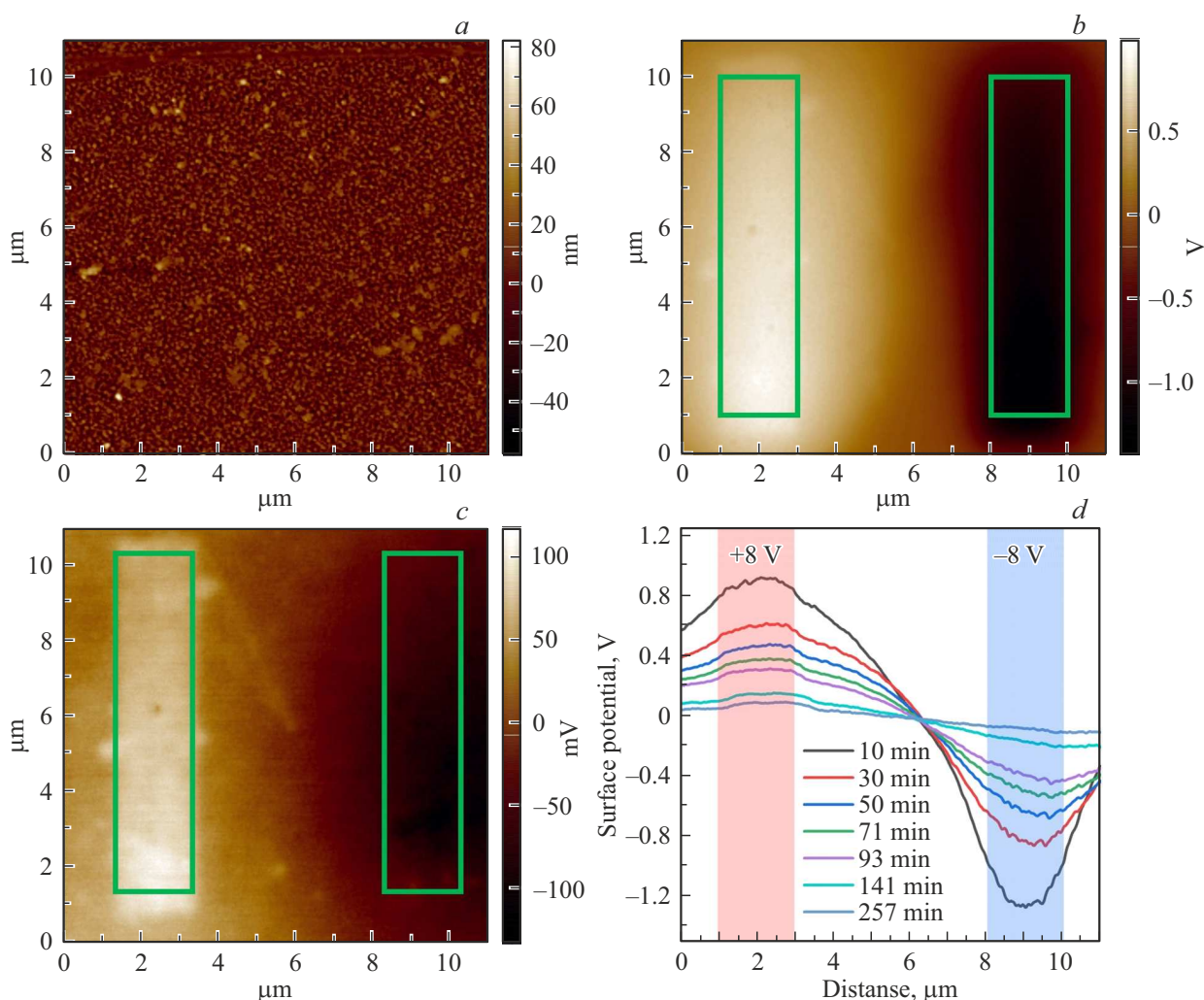


Рис. 6. Топография поверхности (a), поверхностный потенциал поляризованной пленки, зафиксированный через 10 min после поляризации (b) (светлый прямоугольник: 8 V, темный: -8 V) и после 257 min (c). Профили сигнала поверхностного потенциала, проведенные посередине сканов МЗК (d).

чительно шире, показывает явную асимметрию. Однако оба распределения можно разложить на две гауссовские компоненты. На распределениях мы не видим четких симметричных пиков, указывающих на наличие доменов с поляризацией только лишь вне/в плоскости гетероструктуры. Вероятнее всего, в нашем случае имеет место сложная доменная структура, поляризация которой направлена под наклоном, характерная для BFO. Также сегнетоэлектрические свойства образца проявились при измерении зависимостей амплитуды и фазы локального пьезоотклика (рис. 5, c). Были получены классические для СЭ „петля“ фазы и „бабочка“ амплитуды локального пьезоотклика с насыщением в полях ± 8 V, сдвинутые в область положительных напряжений.

С учетом приведенных выше данных на фрагменте поверхности гетероструктуры постоянным напряжением (± 8 V) были заполяризованы прямоугольные области, релаксация которых затем исследовалась в режиме МЗК (рис. 6).

Процесс поляризации, осуществляемый в контактном режиме, не приводит к каким-либо изменениям в рельефе поверхности образца. На рис. 6, b, c представлены сканы сигнала поверхностного потенциала, полученные через 10 и 257 min после поляризации. Можно заметить, что индуцированные постоянным напряжением области остаются видимыми более 4 часов, при этом релаксация проходит достаточно равномерно, асимметрии для положительно и отрицательно поляризованных областей, которая достаточно часто проявляется в аналогичного рода экспериментах, не наблюдается.

4. Выводы и заключение

С использованием метода ВЧ катодного напыления изготовлена двухслойная гетероструктура BFO/STO/Pt/ $\text{Al}_2\text{O}_3(001)$, в которой слои BFO и STO выращены поликристаллическими с преимущественной ориента-

цией в направлении кристаллографической оси [111], параллельной нормали к подложке. Согласно данным АСМ несмотря на установленную поликристаллическую структуру пленки BFO ее поверхность характеризуется малой шероховатостью поверхности.

При анализе диэлектрических и сегнетоэлектрических характеристик конденсаторной структуры Pt/BFO/STO/Pt/Al₂O₃ (001) установлено, что:

– гетероструктуре свойственны малые токами утечки ($I = 3\text{--}3.5\text{ мА/см}^2$ при $U = 20\text{ В}$), высокие величины поляризации ($P_r \approx 35\text{ мкС/см}^2$, $P_{\max} \approx 78\text{ мкС/см}^2$ при $U = 30\text{ В}$);

– в сравнении с однослойными пленками BFO вплоть до 10^8 циклов переключения деградации СЭ характеристик не наблюдается;

– величины ε в диапазоне $T = 83\text{--}493\text{ К}$ составляют 250–320 и имеют место достаточно низкие $\tan \delta$ (0.05–0.1).

Исследования локального пьезоэлектрического отклика гетероструктуры показали, что пленке BFO соответствует сложная доменная структура с вектором спонтанной поляризации, направленным под наклоном к плоскости подложки, что нашло отражение на зависимостях амплитуды и фазы локального пьезоотклика. Релаксация индуцированных постоянным напряжением областей проходила достаточно равномерно, при этом области оставались видимыми более 4 часов.

Благодарности

Использовано оборудование ЦКП „Объединенный центр научно-технологического оборудования ЮНЦ РАН (исследование, разработка, апробация)“. Авторы благодарят к.ф.-м.н., с.н.с. Стрюкова Д.В. за помощь в интерпретации данных рентгенографических исследований.

Финансирование работы

Работа выполнена при поддержке Министерства науки и высшего образования Российской Федерации в рамках проектов государственного задания ЮНЦ РАН (№ государственной регистрации 125011400232-3).

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] G. Catalan, J.F. Scott. *Adv. Mater.* **21**, 24, 2463 (2009).
- [2] N. Wang, X. Luo, L. Han, Z. Zhang, R. Zhang, H. Olin, Y. Yang. *Nano-Micro Lett.* **12**, 1, 81 (2020).
- [3] P. Laohana, W. Limphirat, K. Srisom, P. Janphuang, W. Meevasana, W. Saenrang. *Appl. Phys. Lett.* **124**, 24, 241601 (2024).
- [4] T.-M. Pan, Z.-Y. Chen, W.-C. Weng, J.-L. Her. *Phys. B Condens. Matter* **689**, 416219 (2024).
- [5] J. Zhang, J.-Q. Dai, G.-C. Zhang, X.-J. Zhu. *Ceram. Int.* **50**, 16, 28449 (2024).
- [6] J.P. Cao, Z.L. Lv, H.W. Wang, J.K. Wu, K. Lin, Q. Li, X. Chen, X.H. Li, Q.H. Li, Y.L. Cao, J.X. Deng, J. Miao. *Mater. Today Commun.* **37**, 107337 (2023).
- [7] J. Wang, J.B. Neaton, H. Zheng, V. Nagarajan, S.B. Ogale, B. Liu, D. Viehland, V. Vaithyanathan, D.G. Schlom, U.V. Waghmare, N.A. Spaldin, K.M. Rabe, M. Wuttig, R. Ramesh. *Science*. **299**, 5613, 1719 (2003).
- [8] J.X. Zhang, Q. He, M. Trassin, W. Luo, D. Yi, M.D. Rossell, P. Yu, L. You, C.H. Wang, C.Y. Kuo, J.T. Heron, Z. Hu, R.J. Zeches, H.J. Lin, A. Tanaka, C.T. Chen, L.H. Tjeng, Y.-H. Chu, R. Ramesh. *Phys. Rev. Lett.* **107**, 14, 147602 (2011).
- [9] Y.H. Chu, L.W. Martin, Q. Zhan, P.L. Yang, M.P. Cruz, K. Lee, M. Barry, S.Y. Yang, R. Ramesh. *Ferroelectrics* **354**, 1, 167 (2007).
- [10] D. Sando, A. Barthélémy, M. Bibes. *J. Phys. Condens. Matter* **26**, 47, 473201 (2014).
- [11] A.V. Plokhikh, I.A. Karateev, M. Falmbigl, A.L. Vasiliev, J. Lapano, R. Engel-Herbert, J.E. Spanier. *J. Phys. Chem. C* **123**, 19, 12203 (2019).
- [12] W.B. Luo, J. Zhu, H.Z. Zeng, X.W. Liao, H. Chen, W.L. Zhang, Y.R. Li. *J. Appl. Phys.* **109**, 10, 104108 (2011).
- [13] С.В. Кара-Мурза, К.М. Жидель, Н.В. Корчикова, А.Г. Сильчева, Ю.В. Техтелев, Р.Г. Чижов, А.В. Павленко. *Опт. и спектр.* **130**, 7, 1037 (2022).
- [14] А.В. Павленко, Д.В. Стрюков, Ю.А. Кудрявцев, Я.Ю. Матяш, Н.В. Маломыжева. *ФТТ* **64**, 12, 1954 (2022). [A.V. Pavlenko, D.V. Stryukov, Yu.A. Kudryavtsev, Ya.Yu. Matyash, N.V. Malomyzheva. *Phys. Solid State* **64**, 12, 1923 (2022)].
- [15] Н.В. Макинян, А.В. Павленко. Программа для ЭВМ „LeakMeas“, RU 2024680791, (заявл. 13.05.2024; опубл. 03.09.2024).
- [16] А.В. Павленко, Я.Ю. Матяш, Д.В. Стрюков, Н.В. Маломыжева. *Неорган. материалы* **59**, 7, 814 (2023).
- [17] R. Ranjith, W. Prellier, J.W. Cheah, J. Wang, T.Wu. *Appl. Phys. Lett.* **92**, 23, 222905 (2008).
- [18] S.K. Singh, H. Ishiwara, K. Maruyama. *J. Appl. Phys.* **100**, 6, 064102 (2006).
- [19] H. Yang, M. Jain, N.A. Suvorova, H. Zhou, H.M. Luo, D.M. Feldmann, P.C. Dowden, R.F. DePaula, S.R. Foltyn, Q.X. Jia. *Appl. Phys. Lett.* **91**, 7, 072911 (2007).
- [20] G.W. Pabst, L.W. Martin, Y.-H. Chu, R. Ramesh. *Appl. Phys. Lett.* **90**, 7, 072902 (2007).
- [21] A.Z. Simões, L.S. Cavalcante, C.S. Riccardi, J.A. Varela, E. Longo. *Curr. Appl. Phys.* **9**, 2, 520 (2009).
- [22] D. Chen, X. Tan, Y. Zhang, J. Jiang. *ACS Appl. Mater. Interfaces* **17**, 15, 22974 (2025).
- [23] Q. Ke, A. Kumar, X. Lou, Y.P. Feng, K. Zeng, Y. Cai, J. Wang. *Acta Mater.* **82**, 190 (2015).
- [24] J. Wu, J. Wang, D. Xiao, J. Zhu. *J. Am. Ceram. Soc.* **94**, 12, 4291 (2011).
- [25] X. Zou, L. You, W. Chen, H. Ding, D. Wu, T. Wu, L. Chen, J. Wang. *ACS Nano* **6**, 10, 8997 (2012).
- [26] S.-H. Baek, S. Choi, T.L. Kim, H.W. Jang. *Curr. Appl. Phys.* **17**, 5, 688 (2017).
- [27] D. Misiurev, P. Kaspar, D. Sobola, N. Papež, S.H. Fawaceer, V. Holcman. *Materials (Basel)*. **16**, 8, 3203 (2023).

Редактор Ю.Э. Кутаев