

06,08

Диэлектрические свойства гетероэпитаксиальных пленок $\text{SrTiO}_3(111)/\text{Al}_2\text{O}_3(001)$

© А.В. Павленко^{1,2}, А.В. Назаренко¹, Д.В. Стрюков¹, А.А. Молоткин³,
Е.В. Емелин³, Д.В. Чиркова¹, Д.С. Павленко²

¹ Федеральный исследовательский центр Южный научный центр РАН,
Ростов-на-Дону, Россия

² Научно-исследовательский институт физики Южного федерального университета,
Ростов-на-Дону, Россия

³ Институт проблем технологии микроэлектроники и особо чистых материалов РАН,
Черноголовка, Московская область, Россия

E-mail: antvpr@mail.ru

Поступила в Редакцию 2 марта 2026 г.

В окончательной редакции 20 апреля 2026 г.

Принята к публикации 29 апреля 2026 г.

Проведены исследования кристаллической структуры и свойств гетероэпитаксиально выращенных на подложке $\text{Al}_2\text{O}_3(001)$ пленок SrTiO_3 толщиной ~ 600 nm. Установлено, что в пленке SrTiO_3 имеет место сжимающая деформация элементарной ячейки ($\approx 1\%$) в плоскости сопряжения и практически отсутствует деформации в направлении нормали к поверхности подложки. При анализе за счет сформированной встречно-штыревой планарной конденсаторной структуры на поверхности $\text{SrTiO}_3(111)/\text{Al}_2\text{O}_3(001)$ диэлектрических и сегнетоэлектрических характеристик установлено, что в пленке STO наблюдаются аномалии в поведении $\varepsilon(T, f)$ и $\text{tg } \delta(T, f)$ в окрестностях ~ 298 K, ~ 230 K, ~ 182 K и ~ 115 K. Обсуждаются причины выявленных закономерностей.

Ключевые слова: тонкие пленки, диэлектрические характеристики, гетероэпитаксия, STO.

DOI: 10.61011/FTT.2026.04.63322.9184

1. Введение

Нелинейные материалы со структурой типа перовскита ABO_3 являются широко применяемыми материалами в пьезотехнике, сенсорике и СВЧ технике [1,2]. Несмотря на то, что все материалы данного класса имеют общую кристаллическую структуру их свойства существенно зависят от типа катионов, занимающих позиции А и В [3]. Нацеленность на уменьшение размеров функциональных элементов привело к тому, что эти материалы все больше изучаются в виде тонких пленок, выращенных на функциональных подложках MgO , LaAlO_3 , Si и Al_2O_3 [4]. Подложки оксида алюминия (монокристаллические и поликристаллические) благодаря высокому электрическому сопротивлению ($\sim 10^{-12} \Omega \cdot \text{cm}$), низким потерям в СВЧ диапазоне, высоким температурам плавления и качеству подготовки поверхности являются отличной подложкой для микроволновых устройств.

Титанат стронция (SrTiO_3 , STO) является ярким представителем группы материалов со структурой типа перовскита и в настоящее время интересен в виде наноразмерных пленок [5]. В крупнокристаллическом состоянии STO свойственно параэлектрическое состояние вплоть до 0 K, но катионное замещение (например, $\text{Sr} \rightarrow \text{Ba}$) или эпитаксиальные деформации могут привести к стабилизации полярного состояния вплоть до комнатных температур [6]. Последнее хорошо коррелирует с теоретическими работами [7–9], в которых авторы рассмот-

рели фазовые превращения и метастабильные состояния в упруго деформированных пленках STO. Однако стоит признать, что на настоящий момент, например, касательно закономерностей формирования диэлектрических и сегнетоэлектрических характеристик тонких пленок STO, в литературе достаточно часто имеют место противоречия [6–10]. Связано это с одной стороны с тем, что структура STO способна выдерживать значительные эпитаксиальные напряжения, а с другой — простой химический состав и отсутствие примесей (в отличие, например, от PZT и BFO) позволяет использовать широкий спектр технологических подходов для получения пленок. В [11] нами впервые было показано, что с использованием одностадийного метода ВЧ-катодного распыления в атмосфере кислорода на подложке $\text{Al}_2\text{O}_3(001)$ можно вырастить гетероэпитаксиальные пленки STO таким образом, чтобы ось [111] SrTiO_3 была параллельна оси [001] подложки. Данная работа является продолжением [11] и посвящена исследованиям диэлектрических характеристик планарных структур на основе пленок $\text{SrTiO}_3(111)/\text{Al}_2\text{O}_3(001)$.

2. Методы получения и исследования образцов

Напыление тонких пленок SrTiO_3 на предварительно подготовленную под гетероэпитаксиальное осаждение

монокристаллическую подложку Al_2O_3 (001) осуществлялось методом высокочастотного катодного распыления в атмосфере кислорода в одну стадию согласно [11,12]. Начальная температура подложки составляла $\sim 400^\circ\text{C}$, давление чистого кислорода в камере — 67 Па, вводимая ВЧ-мощность — 130 W, расстояние между мишенью и подложкой ~ 12 мм.

Рентгendifракционные исследования (фазовый состав, структурное совершенство пленок, параметры элементарной ячейки и ориентационные соотношения между пленкой и подложкой) осуществлялись на рентгеновском комплексе „РИКОР“ ($\text{CuK}\alpha$ -излучение).

Для диэлектрических измерений на поверхности пленки SrTiO_3 была сформирована встречно-штыревая планарная конденсаторная структура методом электронно-лучевой литографии. Предварительно на подложку методом центрифугирования наносился электронный резист ПММА950К толщиной 700 nm. Затем резист локально облучался фокусированным электронным пучком для создания в резисте маски для последующего напыления металла. Облучение производилось с использованием сканирующего электронного микроскопа JEOL-JSM840A, оборудованного аппаратным комплексом управления электронным пучком „Наномейкер“. Параметры облучения: ускоряющее напряжение электронного пучка $U = 10$ kV, ток пучка $I = 1$ nA, плотность внедренного заряда $D = 40$ $\mu\text{C}/\text{cm}^2$. После проявления на образец методом термического распыления напылялась пленка Al толщиной 100 nm. На заключительном этапе резист удалялся с использованием растворителя диметилформамид.

Контроль линейных параметров встречно-штыревой планарной структуры производился конфокальным методом на оптическом лазерном (408 nm) 3D-сканирующем микроскопе Keyence VK-9700. Итоговое изображение получали путем последовательного сканирования выбранного участка поверхности по глубине $Z = 4.8$ μm с шагом $DZ = 0.02$ μm .

Измерения температурно-частотных зависимостей емкости образца (C_M) и тангенса угла диэлектрических потерь ($\text{tg } \delta$) при $T = 77 \dots 473$ K, а также полевых зависимостей $C_M(U)$ и $\text{tg } \delta(U)$ при фиксированных температурах осуществляли на измерительном комплексе на базе LCR-метра E7-28, криосистемы Linkam THMS600 stage. Коэффициент диэлектрической управляемости (k) рассчитывается по формуле

$$k = (C_M(U = 0 \text{ V}) - C_M(U)) / C_M(U = 0 \text{ V}) \cdot 100\% \quad (1)$$

где $C_M(U = 0 \text{ V})$ и $C_M(U)$ — емкость гетероструктуры, измеренная в отсутствие и в присутствии внешнего смещающего электрического поля.

Измерение вольт-кулонных зависимостей ($Q(U)$) и эффектов усталости при комнатной температуре проводили с помощью измерительного комплекса, в состав которого входили анализатор TFAalyzer2000 и зондовая станция MST-4000A.

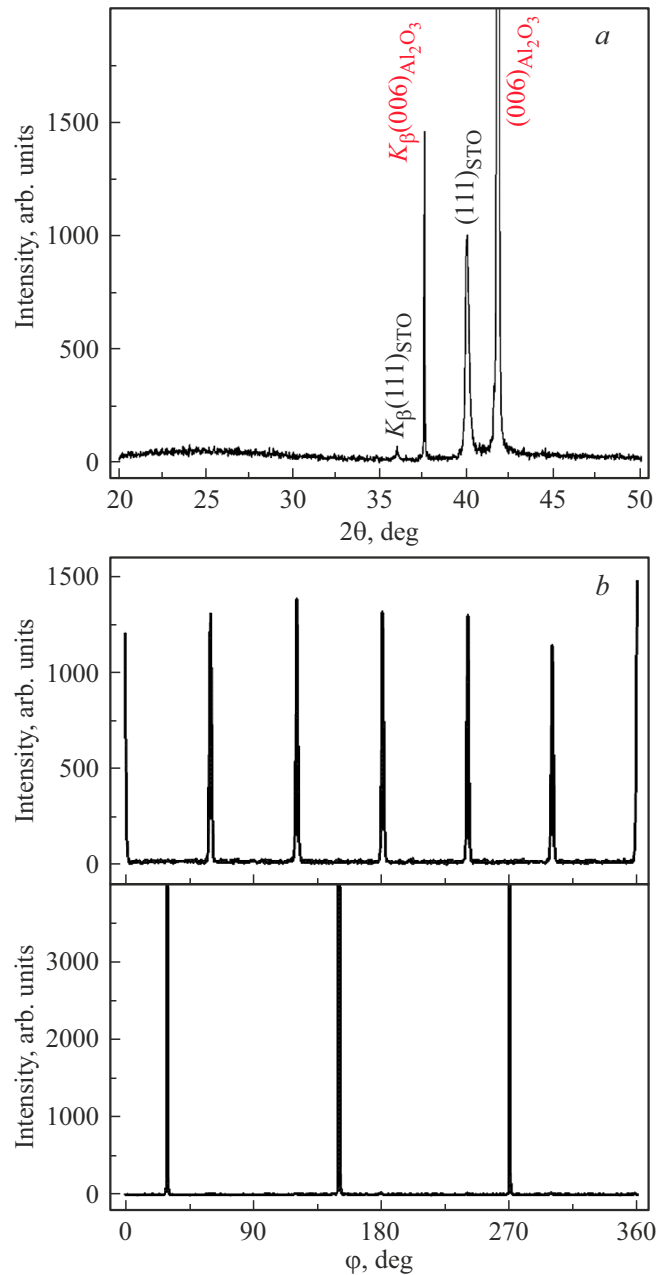


Рис. 1. *a*) θ - 2θ рентгенограмма пленки $\text{STO}/\text{Al}_2\text{O}_3(001)$; *b*) — рентгенограммы рефлексов (110) пленки STO и (104) подложки Al_2O_3 .

3. Экспериментальные результаты и обсуждение

В начале полученная пленка STO на подложке $\text{Al}_2\text{O}_3(001)$ была исследована методом дифракции рентгеновских лучей. Обзорная θ - 2θ рентгенограмма пленки $\text{STO}/\text{Al}_2\text{O}_3(001)$ в интервале углов 2θ от 20° до 50° (рис. 1 *a*) помимо рефлексов подложки Al_2O_3 содержит только отражения от семейства плоскостей (hhh) пленки STO.

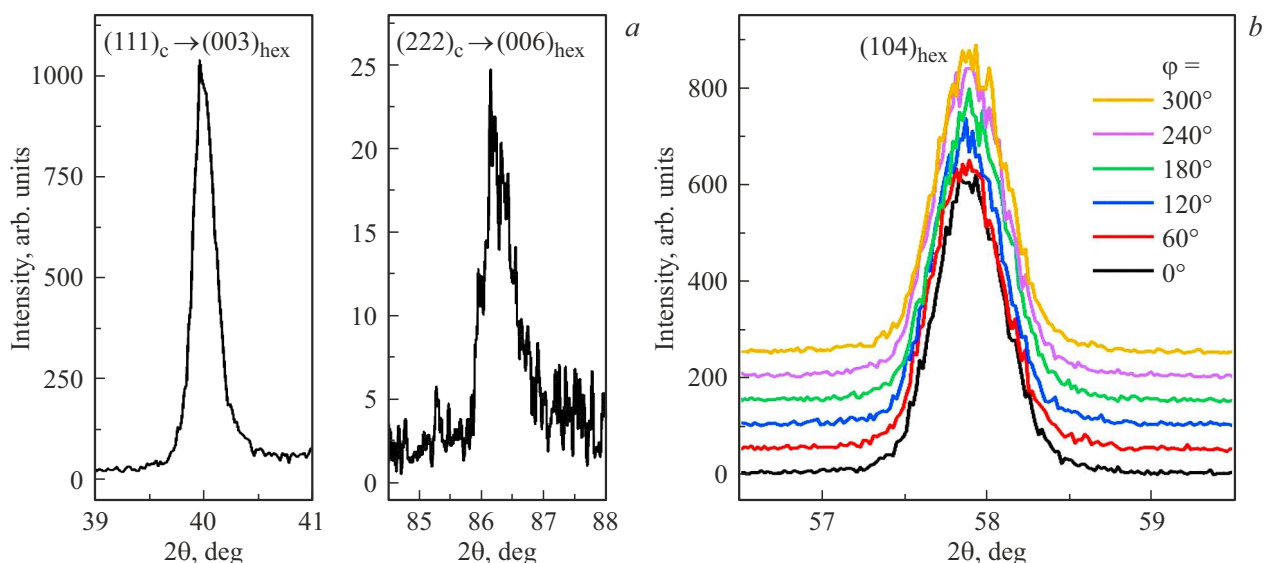


Рис. 2. *a*) θ - 2θ рентгенограммы рефлексов $(003)_{\text{hex}}$ и $(006)_{\text{hex}}$ пленки $\text{STO}/\text{Al}_2\text{O}_3(001)$; *b*) θ - 2θ рентгенограммы рефлексов $(104)_{\text{hex}}$ пленки $\text{STO}/\text{Al}_2\text{O}_3(001)$ при различных углах φ .

Установлено, что пленка STO получена эпитаксиально, при этом φ рентгенограмма взятого для анализа рефлекса (110) содержит 6 максимумов (рис. 1, *b*). Так как подложка Al_2O_3 имеет гексагональную структуру, то в данном случае для STO также уместно перейти к гексагональной ячейке, когда лежащая в направлении нормали к поверхности подложки псевдокубическая ось $[111]_c$ переходит в $[001]_{\text{hex}}$, а в плоскости сопряжения оси $[01-1]_c$ и $[-101]_c$ переходят в $[100]_{\text{hex}}$ и $[010]_{\text{hex}}$. При сравнении полученных φ рентгенограмм пленки и подложки обнаружено, что угловые положения рефлексов $(102)_{\text{hex}}$ пленки STO как и в $[11]$ смещены на 30° относительно рефлексов (104) подложки Al_2O_3 (рис. 1, *b*), что соответствует разориентировке кристаллографических осей пленки и подложки на 30° . Для определения параметров элементарной ячейки получены θ - 2θ рентгенограммы рефлексов $(003)_{\text{hex}}$, $(006)_{\text{hex}}$ и $(104)_{\text{hex}}$ пленки $\text{STO}/\text{Al}_2\text{O}_3(001)$ (рис. 2).

Следует отметить, что при съемке рефлексов (104) пленки STO при различных значениях угла φ положение максимума не изменялось, а следовательно, параметры a и b в плоскости сопряжения с подложкой равны друг другу. Таким образом элементарная ячейка STO_{hex} с параметрами: $c = 6.767 \text{ \AA}$; $a = b = 5.464 \text{ \AA}$, которая в ромбоэдрическом представлении имеет следующие параметры: $a = 3.878 \text{ \AA}$, $\alpha = 89.57^\circ$. По сравнению с элементарной ячейкой объемного STO ($a = 3.9053 \text{ \AA}$, где $d(111) = 6.764 \text{ \AA}$; $d(110) = 5.523 \text{ \AA}$) [13] в пленке наблюдается сжимающие деформации элементарной ячейки ($\approx 1\%$) в плоскости сопряжения и практически отсутствуют деформации в направлении нормали к поверхности подложки. Пленка имеет высокое качество и совершенство кристаллической структуры, что подтверждается очень узкой шириной, равной всего 0.75° ,

для кривой качания рефлекса $(003)_{\text{hex}}$ (рис. 3). Малая интенсивность рефлексов $(111)_c$ и $(222)_c$ характерна для структуры SrTiO_3 и наблюдается на порошковых дифрактограммах объемного SrTiO_3 . Для исследования электрофизических свойств на поверхность гетероструктуры $\text{STO}/\text{Al}_2\text{O}_3(001)$ наносились планарные электроды. Схематичное изображение ориентации электродов и направления приложения поля относительно кристаллографических осей пленки, рассматриваемые в данной работе, представлено на рис. 4. Реальное изображение края встречно-штыревой структуры представлено на рис. 4, *b*. Толщина контактных площадок составила $\sim 30 \text{ nm}$, а

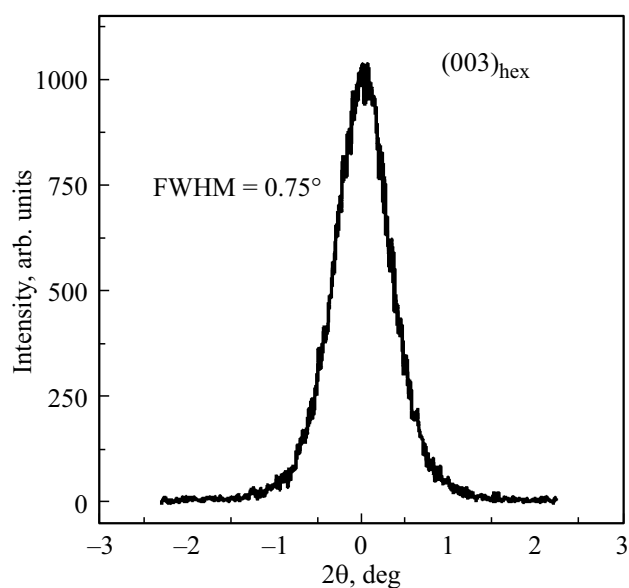


Рис. 3. Кривая качания рефлекса $(003)_{\text{hex}}$ пленки $\text{STO}/\text{Al}_2\text{O}_3(001)$.

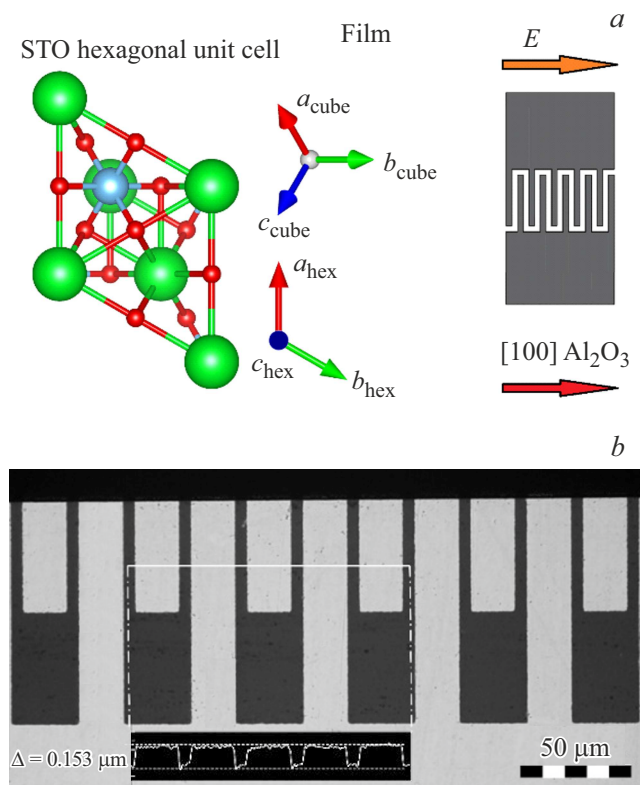


Рис. 4. Схематичное изображение взаимной ориентации планарных электродов и кристаллографических осей пленки $\text{STO}/\text{Al}_2\text{O}_3(001)$. Изображение края встречно-штыревых планарных электродов на поверхности пленки $\text{STO}/\text{Al}_2\text{O}_3(001)$.

штырей — ~ 5 мкм. Период составил ~ 20 мкм. За счет конфокальной съемки и измерения отраженной интенсивности лазерного излучения был просканирован рельеф поверхности и определена глубина литографического травления, которая составила около 150 нм.

Результаты исследования диэлектрических характеристик гетероструктуры $\text{STO}/\text{Al}_2\text{O}_3(001)$ интервале $T = 80 \div 375$ К приведены на рис. 5.

Расчеты величины относительной диэлектрической проницаемости (ϵ) пленки проводили по формуле согласно [14]:

$$\epsilon = \epsilon_s + \left\{ C - \frac{K(1 + \epsilon_s)}{K[1 - \exp(-4.6h/L)]} \right\} \quad (2)$$

где ϵ — диэлектрическая проницаемость пленки, ϵ_s — диэлектрическая проницаемость подложки, h — толщина пленки, L — расстояние между серединами электродов, K — константа, равная 2,793 pF для рассматриваемой геометрической конфигурации. C — емкость на единицу длины электрода, рассчитываемая по формуле $C = C_M/A(2P - 1)$, C_M — измеренная экспериментально емкость образца, A — длина штыря электрода, P — количество пар электродов, нанесенных на пленку.

По мере снижения температуры в пленках титаната стронция наблюдается монотонное увеличение относительной диэлектрической проницаемости на фоне

немонотонного снижения величин тангенса диэлектрических потерь (рис. 5, а). Дисперсия $\epsilon(f)$ в пленке STO проявилась только при $T < 120$ К (см. вставка на рис. 5, а), а при остальных температурах практически отсутствует. В случае $\text{tg } \delta$ при $T < 120$ К дисперсия наоборот практически исчезает, а его немонотонное снижение при $T = 120\text{--}373$ К сменяется его ростом. Аналогичное по характеру поведение диэлектрических параметров наблюдалось, например, в [15], где авторами изучались трехслойные гетероструктуры $\text{SrRuO}_3/\text{SrTiO}_3/\text{SrRuO}_3$ на подложках LSATO . Однако детальное рассмотрение зависимости $1/\epsilon(T)$ в нашем случае позволяет выделить четыре линейных участка (рис. 5, б) и сделать предложения о том, что в полученной пленке $\text{STO}(111)/\text{Al}_2\text{O}_3(001)$ происходит цепочка фазовых превращений (ФП): в окрестностях ~ 298 К (T_1), ~ 230 К (T_2), ~ 182 К (T_3) и 115 К (T_4), соответственно.

Высокое качество аттестуемых пленок STO проявилось при анализе $\epsilon(U)$ и $\text{tg } \delta(U)$ для различных температур, представленных на рис. 6. Хорошо видно, что во всех случаях регистрируются симметричные полевые зависимости, при этом при увеличении амплитуды U наблюдается снижение ϵ и $\text{tg } \delta$. Гистерезисные зависимости $\epsilon(U)$ и $\text{tg } \delta(U)$ в форме „бабочек“ (т.е. появление двух пиков на указанных зависимостях при прямом и обратном изменении U) обнаружены только при температурах 83 К и 113 К, что свидетельствует о наличии в пленке STO при этих T переключаемой в данной геометрии электродов спонтанной поляризации.

В тонких пленках STO возникающая при синтезе деформация элементарной ячейки может привести к сильному смещению температуры фазового перехода параэлектрик \rightarrow сегнетоэлектрик (ПЭ \rightarrow СЭ) в сторону комнатных температур [7–9,15]. Отсутствие максимумов на зависимости $\epsilon(T)$ на фоне роста температуры, представленные на рис. 5, б и 6 (результаты измерений), позволяют в комплексе говорить о том, что в изготовленных пленках STO фазовый переход ПЭ \rightarrow СЭ размыт и начинается происходящий начиная с T_4 . Именно благодаря этому наблюдается значительное увеличение коэффициента диэлектрической управляемости k с 14.07% ($T = 298$ К) до 37.2% ($T = 113$ К) и 46.74% ($T = 83$ К).

Отметим, что фазовые диаграммы для однодоменных тонких пленок STO при одноосном внешнем давлении приведены, например, в [7,9]. Если в монокристаллах STO наблюдается всего один структурный фазовый переход в районе 106 К, то в тонких пленках при увеличении температуры в случае сжимающей деформации ожидается два фазовых перехода: из сегнетоэлектрической тетрагональной фазы в тетрагональную неполярную и затем в высокотемпературную тетрагональную. Для деформации в 1% температуры переходов равны 165 К и 195 К, соответственно. Обнаруженные нами ФП при 115 К и 182 К согласуются с феноменологической моделью для 0.8% деформации сжатия, однако аномалии

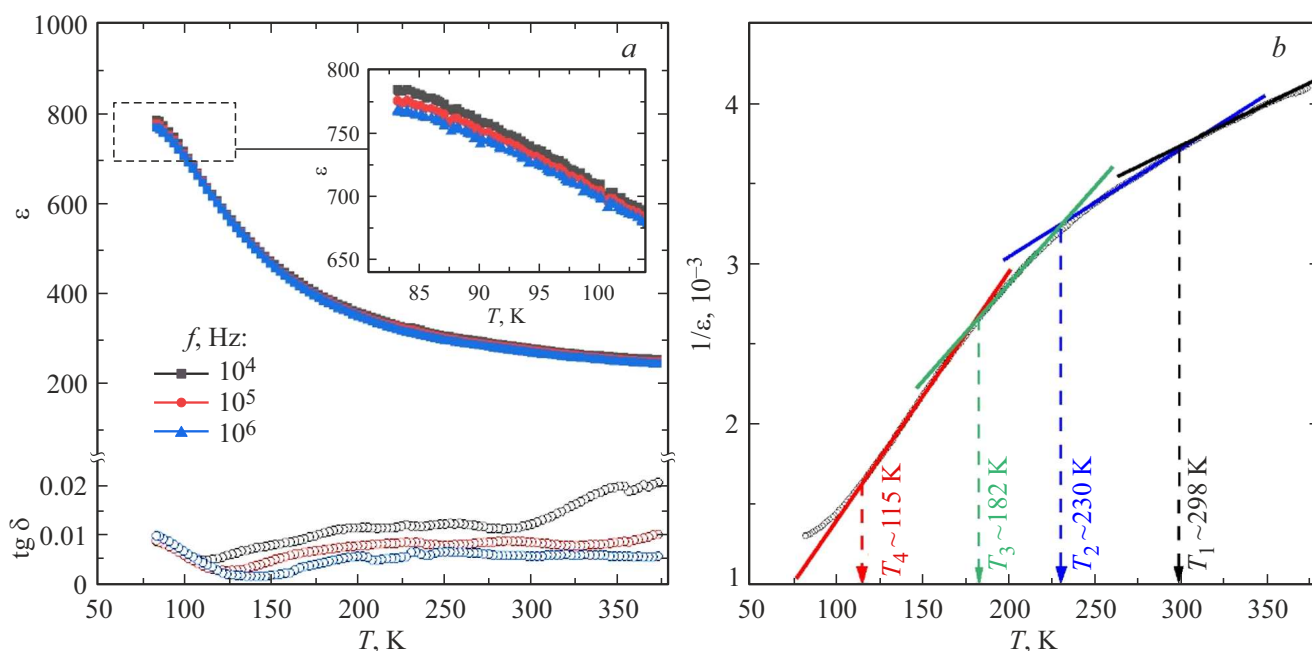


Рис. 5. а) Зависимости $\epsilon(T)$ и $\text{tg } \delta(T)$ гетероструктуры STO/Al₂O₃(001) интервале $T = 80 \div 375$ К на частотах 10^4 , 10^5 и 10^6 Hz. б) — зависимость $1/\epsilon(T, f = 10^6 \text{ Hz})$.

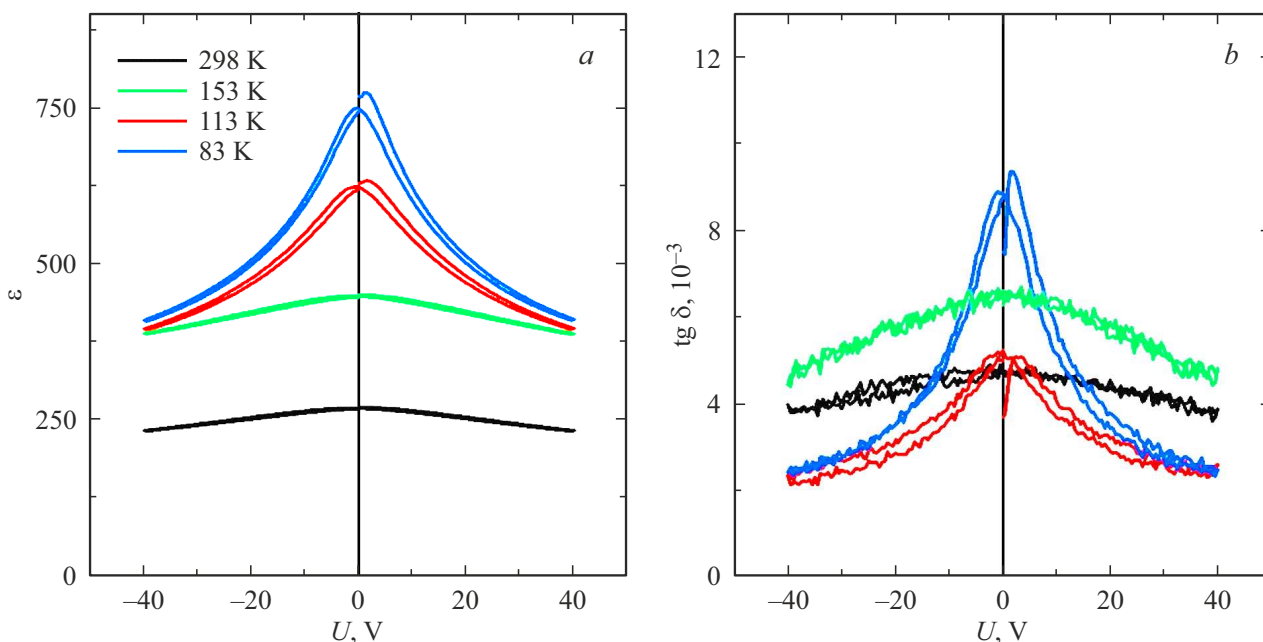


Рис. 6. Зависимости $\epsilon(U)$ и $\text{tg } \delta(U)$ гетероструктуры STO/Al₂O₃(001) при температурах 83 К, 113 К, 153 К и 298 К на частоте 1 МГц в интервале $U = 0 \pm 40$ В.

при 230 К и 298 К не объясняются теоретическими моделями [7]. Согласно [8] конкуренция неустойчивостей (сегнетоэлектрической и структурной) в STO приводит к тому, что в напряженных пленках SrTiO₃ могут обнаруживаться метастабильные фазы и ФП между ними, и для описания полной картины ФП в SrTiO₃ в рамках феноменологического подхода требуется учет инвариантов

более высокой степени в разложении Ландау, чем в [7,9], что требует продолжения как экспериментальных, так и теоретических работ в данном направлении.

Представленный набор характеристик позволяет говорить о том, что полученные нами пленки титаната стронция являются перспективными материалами для криогенных применений. С целью исследования элек-

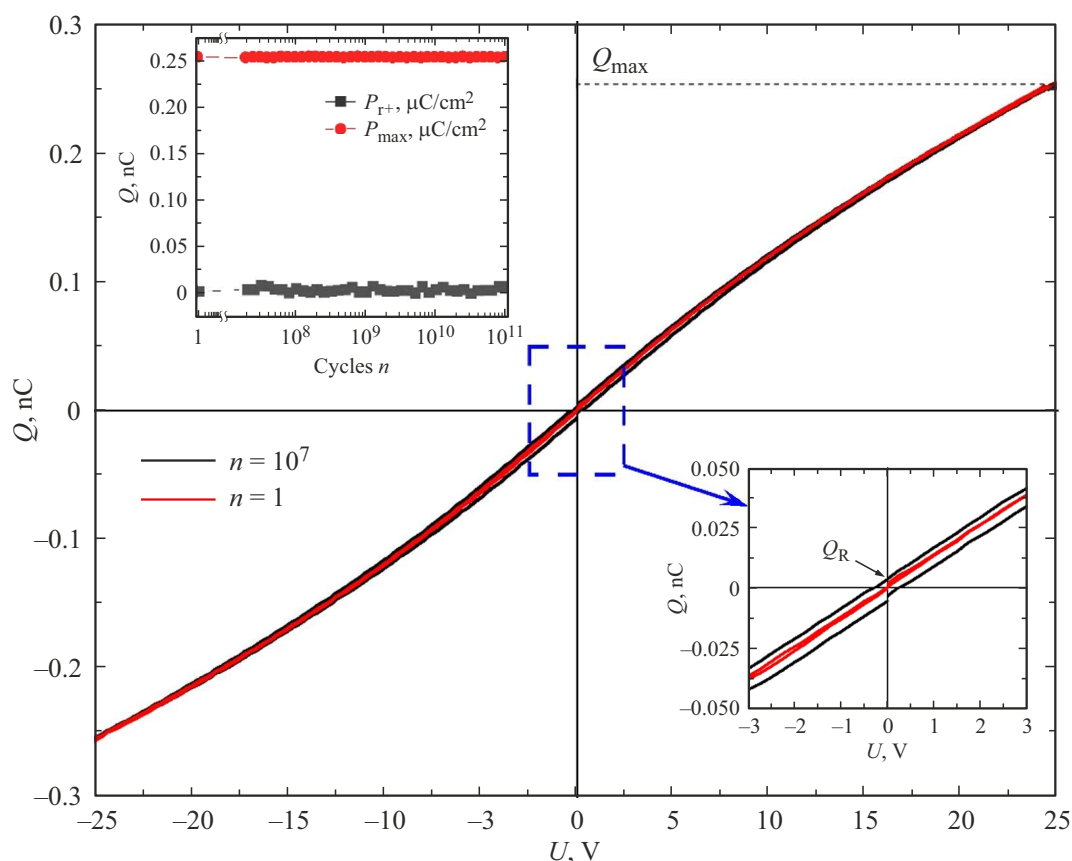


Рис. 7. Зависимости $Q(U)$ гетероструктуры Pt/STO/Pt(111)/Al₂O₃(001) при $f = 1$ kHz. Циклирование осуществлялось на частоте 10^7 Hz при комнатной температуре.

трической деградации пленки титаната стронция были проведены измерения зависимостей $Q(U)$ для гетероструктуры Pt/STO/Pt(111)/Al₂O₃(001), результаты которых приведены на рис. 7.

При комнатной температуре зависимость $Q(U)$ гетероструктуры Pt/STO/Pt(111)/Al₂O₃(001) при величинах $U = \pm 25$ V имела безгистерезисную форму, свойственную СЭ материалам в параэлектрической фазе, что коррелирует с результатами на рис. 6. Q_{\max} оставалась неизменной вплоть до 10^{11} циклов переключения, однако уже после 10^7 циклов на зависимости $Q(U)$ появлялся слабый гистерезис, обусловленный, вероятнее всего, инжекцией зарядов из электродов и их закреплением на ловушках на границе раздела пленка/электрод.

4. Выводы и заключение

Методом ВЧ-катодного распыления в одну стадию были получены пленки STO толщиной ~ 600 nm на подложке Al₂O₃(001). Показано, что пленка выращена эпитакциально, при этом по сравнению с объемным STO в ней имеют место сжимающие деформации элементарной ячейки ($\approx 1\%$) в плоскости сопряжения с

подложкой и практически отсутствуют деформации в направлении нормали к поверхности подложки.

С использованием метода электронно-лучевой литографии была сформирована встречно-штыревая планарная конденсаторная структура, которая позволила изучить свойства пленки STO в направлении [11-2]_c (направление подложки [100] Al₂O₃) при температурах при $T = 77 \dots 473$ K. Показано, что по мере уменьшения температуры в гетероструктуре наблюдаются связанные с фазовыми превращениями различной природы аномалии в поведении $\varepsilon(T)$, снижаются диэлектрические потери на фоне роста k с 14.07% до 46.74%. Многократное циклирование переменным электрическим полем при комнатной температуре не выявило деградации характеристик пленок вплоть до 10^{11} циклов.

Высокое структурное совершенство выращенных на подложке Al₂O₃(001) пленок STO ориентации (111) в совокупности с высокими величинами ε и k на фоне низких значений $\text{tg } \delta$ свидетельствует об их перспективности в микроэлектронике и СВЧ технике в качестве конденсаторов с переменной емкостью, изоляционных слоев. В дальнейших работах мы планируем более детально изучить как анизотропные свойства пленок STO в плоскости сопряжения с подложкой (это требует нанесения иных геометрий расположения электродов),

так и влияние толщины пленок на их структурные параметры и физические характеристики.

Учитывая, что метод высокочастотного катодного распыления позволяет формировать многослойные структуры на основе тонких пленок различного состава, гетероструктуры STO/Al₂O₃(001) с нашей точки зрения могут выступать как „псевдоподложки“ для роста пленок высокотемпературных сверхпроводников (YBCO), широко применяемого при научных исследованиях рутената стронция, а также высокотемпературного мультиферроика BiFeO₃.

Благодарности

Авторы благодарят ЦКП Объединенный центр научно-технологического оборудования ЮНЦ РАН (исследование разработка апробация) (<https://ckp-rf.ru/catalog/ckp/501994/>) за предоставленное оборудование для проведения исследований.

Финансирование работы

Публикация подготовлена в рамках реализации ГЗ ЮНЦ РАН № гр. Проекта 125011400232-3.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] H. Wei, C. Yang, Y. Wu, B. Cao, M. Lorenz, M. Grundmann. *Journal of Materials Chemistry C* **8**, 44, 15575 (2020).
- [2] L.W. Martin, A.M. Rappe. *Nature Reviews Materials* **2**, 2, 16087 (2016)
- [3] Е.Г. Фесенко. Семейство перовскита и сегнетоэлектричество. Атомиздат, М. (1972). 248 с.
- [4] К.А. Воротилов, В.М. Мухортов, А.С. Сигов. Интегрированные сегнетоэлектрические устройства. Энергоатомиздат, М. (2011). 175 с.
- [5] A. Fernandez, M. Acharya, H-G. Lee, J. Schimpf, Y. Jiang, D. Lou, Z. Tian, and L.W. Martin. *Advanced materials* **34**, 30, 2108841 (2022).
- [6] J.H. Haeni, P. Irvin, W. Chang, R. Uecker, P. Reiche, Y.L. Li, S. Choudhury, W. Tian, M.E. Hawley, B. Craigo, A.K. Tagantsev, X.Q. Pan, S.K. Streiffer, L.Q. Chen, S.W. Kirchoefer, J. Levy, D.G. Schlom. *Nature* **430**, 758 (2004).
- [7] В.Б. Широков, Ю.И. Юзюк, В.В. Леманов. Феноменологическое описание тонких пленок SrTiO₃. *Физика твердого тела* **51**, 5, 972 (2009).
- [8] А.И. Лебедев. Фазовые переходы и метастабильные состояния в напряженных пленках SrTiO₃. *Физика твердого тела* **58**, 2, 291 (2016).
- [9] N.A. Pertsev, A.K. Tagantsev, N. Setter. *Physical Review B* **61**, 2, R825 (2000).
- [10] C.P. Anderson, G. Scuri, A. Chan, S. Eun, A.D. White, G.H. Ahn, C. Jilly, A. Safavi-Naeini, K. Van Gasse, J. Vučković. *Science* **390**, 6771, 394 (2025).

- [11] А.В. Павленко, Д.В. Стрюков, К.М. Жидель, Я.Ю. Матяш, П.А. Шишкина, М.С. Чумак. *Журнал технической физики* **94**, 10, 1695 (2024).
- [12] А.В. Павленко, С.П. Зинченко, Д.В. Стрюков, А.П. Ковтун. Наноразмерные пленки ниобата бария-стронция: особенности получения в плазме высокочастотного разряда, структура и физические свойства. Издательство ЮНЦ РАН, Ростов-на-Дону (2022). 242 с.
- [13] R. Mitchell, A. Chakhmouradian, P. Woodward. *Phys Chem Min* **27**, 583 (2000).
- [14] H.N. AL-Shareef, D. Dimos, M.V. Raymond, R.W. Schwartz. *Journal of Electroceramics* **1**, 2, 145 (1997).
- [15] Ю.А. Бойков, В.А. Данилов. *Физика твердого тела* **61**, 3, 594 (2019).

Редактор Т.Н. Василевская