

面向可调谐微波应用的  $\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{TiO}_3$  铁电薄膜材料与器件研究进展沈德坤<sup>1</sup>, 杨溜涵<sup>1,2</sup>, 郭沛源<sup>1</sup>, 赵梦玲<sup>1</sup>, 葛 健<sup>1</sup>, 邓功勋<sup>1</sup>, 王爱记<sup>1</sup>

(1. 北京师范大学多尺度自旋物理教育部重点实验室, 北京师范大学物理学系, 北京 100875;

2. 中国科学院物理研究所, 北京 100190)

**摘 要:** 可调谐微波器件是相控阵雷达和现代移动通信技术的重要技术核心, 具有广阔的应用前景和市场需求。 $\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{TiO}_3$  铁电薄膜材料因其高介电可调性和快速的场响应而被认为是可调谐微波器件最有前途的材料之一。目前, 人们对该材料降低介质损耗和提升介电可调性方面的研究取得了众多进展。综述了近年来国内外有关  $\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{TiO}_3$  铁电薄膜的介电性能研究以及其在可调谐微波器件的发展现状, 并探讨了其研究中所存在的主要问题及未来研究重点。

**关键词:** 钛酸锶钡; 薄膜; 介电性能; 可调谐微波器件

中图分类号: TB34 文献标志码: A 文章编号: 0454-5648(2024)01-0229-11

网络出版时间: 2023-11-20



微波电子系统正向宽频带、高容量、体积更加小型化的方向发展, 对集成化、高性能微波元器件的需求日益迫切<sup>[1]</sup>。传统的金属谐振腔和金属波导体积质量过大, 限制了微波集成电路的发展, 若采用微波介质材料的谐振器与微波管、微带线等构成微波混合集成电路, 可使器件尺寸达到毫米量级, 因此微波介质材料是实现微波控制功能的基础和关键材料<sup>[2]</sup>, 尤其能够推动相控阵雷达技术的高速发展, 相控阵雷达是由多天线单元构成的阵列天线及其馈线系统, 富集大量无源与有源微波器件。故而先进成熟的微波技术将直接影响相控阵雷达的发展<sup>[3]</sup>。此外, 随着人们对现代微波通信技术的不断探索, 微波设备的调谐、多频和多模式性将面临诸多机遇和挑战。由此可见, 可调谐微波器件在移相器、滤波器、可调天线等方面发挥着巨大的作用<sup>[4]</sup>。

$\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{TiO}_3$  (BST)材料具有高介电可调性、低介电损耗正切以及合适的介电常数水平, 已经成为微波应用领域的研究热点之一。与块体材料相比, 薄膜器件的优势在于工作电压低, 响应速率快, 能够与微带线电路技术和半导体技术集成<sup>[1]</sup>, 因此被选用的 BST 薄膜材料多用于进行此类研究。根据以往的研究, 高可调性总是伴随着介电损耗的

增加<sup>[5-7]</sup>。一般来说, 通常使用优值(FOM)来评价可调谐材料的质量, 其定义为 FOM 等于可调谐度/介电损耗<sup>[8-10]</sup>。FOM 越高, 表明介电可调谐材料质量越好<sup>[11-12]</sup>。BST 薄膜材料具备高介电可调性和低介电损耗的发展潜力, 但是 BST 薄膜材料在实际应用中依然面临了诸多问题。例如: 可调谐度及介电损耗会出现同时变大或同时变小的现象, 从而得不到协同优化, 导致不能满足商业应用的要求, 此外, BST 薄膜介电常数与温度密切相关, 尤其是在 Curie 温度附近, 介电常数随温度的变化曲线存在 1 个尖锐的峰值, 这使得其在应用中无法适应于宽温域环境。这些问题严重限制了 BST 在微波领域中的广泛应用。为了优化 BST 铁电薄膜的介电性能, 期望同时得到高介电可调谐性、高品质因子  $Q$  以及良好的温度稳定性, 科研人员通过改进薄膜制备工艺<sup>[2, 13-15]</sup>, 退火改性<sup>[16-19]</sup>, 改善薄膜与衬底间的特性(选取合适衬底调节应变<sup>[20-21]</sup>、制备缓冲层减小薄膜和衬底之间的晶格失配<sup>[22]</sup>), 调控 BST 组分比<sup>[23]</sup>, 掺杂改性<sup>[24-28]</sup>, 以及制备多层膜、异质结<sup>[5, 29-32]</sup>等诸多手段来调控 BST 薄膜材料的介电性能。在优化材料性能基础上, 基于 BST 薄膜的微波器件设计和制备也得到了迅速发展。

收稿日期: 2023-07-22。 修订日期: 2023-08-27。

基金项目: 国家重点研发计划(2021YFA0718700)。

第一作者: 沈德坤(2002—), 男, 本科生。

通信作者: 王爱记(1989—), 男, 博士, 工程师。

Received date: 2023-07-22. Revised date: 2023-08-27.

First author: SHEN Dekun (2002—), male, Undergraduate.

E-mail: 202011140034@mail.bnu.edu.cn

Correspondent author: WANG Aiji (1989—), male, Ph.D., Engineer.

E-mail: aijiwang@bnu.edu.cn

本文将对 BST 薄膜介电性能以及其在微波器件领域 2 个方面的研究现状进行综述。

## 1 BST 薄膜介电性能研究现状

在微波可调谐器件应用材料研究中, 相对于 BST 陶瓷材料, BST 薄膜材料面临着介电可调率低、介电损耗大、漏电流大等问题。主要是由以下因素造成的: 1) 薄膜的织构和表面形貌; 2) BST 组分比; 3) 界面效应。为了解决上述问题, 国内外学者展开了深入研究, 主要概括为以下几个方面: 优化生长工艺(使用不同的生长制备方法、优化生长参数、对薄膜进行后处理), 掺杂改性以及制备多层膜和异质结。

### 1.1 BST 薄膜制备工艺的优化

**1.1.1 退火和生长气氛调控** BST 薄膜织构影响介电性能与薄膜组成, 高性能的优质薄膜需要超细、均匀和致密的微观结构, 因此对其生长工艺进行优化对于提高介电性能有着重要意义。热退火工艺有助于晶格缺陷的修复, 改善表面形貌和晶粒生长状况。早在 1999 年, Chang 等<sup>[33]</sup>发现 BST 薄膜的介电常数和介电损耗经过高温(1 050~1 250 °C)退火后均有所下降。他将退火前后介电性能的变化归因于薄膜晶格的收缩和薄膜应力的变化。当薄膜退火时, 由于薄膜松弛, 薄膜的晶格常数收缩, 从而产生薄膜应变。而生长气氛调控主要在于不同氧压下对薄膜织构和表面形貌所产生的影响。Cukauskas 等<sup>[34]</sup>也研究了 900 °C 到 1 300 °C 不同的热退火温度对 BST 薄膜性能的影响, 其表明 1 140 °C 是 BST 薄膜的最佳热处理温度。而在生长气氛方面的研究, Cheng 等<sup>[35]</sup>研究了脉冲激光沉积技术中生长氧压对薄膜晶格参数、取向、表面形貌和沉积速率的影响, 表明氧压是影响薄膜生长的重要因素。随着氧压的增大, 薄膜表面粗糙度先减小后增大, 并且当氧压为  $10^{-1}$  Pa 时, 薄膜表面最为平整<sup>[34]</sup>。Abdel-Motaleb 等<sup>[36]</sup>分析了不同生长氧压下的 BST 薄膜, 发现低氧环境下沉积的 BST 薄膜为晶界尖锐的多晶膜, 而高氧环境下沉积的 BST 薄膜具有增强的横向生长和扩散晶界, 进一步论证了氧压在 BST 薄膜生长中起着重要作用。Im 等<sup>[23]</sup>报道了在磁控溅射过程中, 通过改变 Ar/O<sub>2</sub> 压强, 表面形貌产生明显的差异, 且 BST 薄膜的(Ba+Sr)/Ti 摩尔比可以从 0.73 调整到 0.98。该系列实验利用优化生长参数的 BST 薄膜制备了低介质损耗(0.004 7)的电容器, 同时仍然保持适合设备应用的可调性(50%)。通过退火和生长气氛

调控有助于显著改善薄膜的织构和表面形貌, 有效改善介电损耗大和可调率低的问题。

**1.1.2 应力调控** Kim 等<sup>[37–38]</sup>实验发现在小拉伸应变下, BST 薄膜的相对介电常数和可调性有所提高。因此为了提高 BST 薄膜的介电性能, 可以通过选用合适衬底或插入缓冲层来调控应力进而优化晶体结构和薄膜介电性能。Liu 等<sup>[20]</sup>利用射频磁控溅射技术在近晶格匹配 DyScO<sub>3</sub> 衬底上沉积了 BST 薄膜。设计了三步沉积法(在成核层 1 068 K 高温沉积后, BST 夹层 873 K 相对低温沉积和顶部 1 068 K 高温沉积), 降低了衬底带来的残余应变, 提高了薄膜的介电性能, 在 10 GHz 频率下, 优化后的薄膜在 60 kV/cm 的电场作用下达到了 47.9% 的高介电可调性。诸多研究表明在薄膜和电极间或者薄膜与衬底间增加一层缓冲层可以减小晶格失配、缓解薄膜应变从而达到降低薄膜漏电流和介电损耗的目的。Jun 等<sup>[27, 39]</sup>报道了氧化钇稳定氧化锆(YSZ)薄缓冲层会影响外延 BST 层的应力状态, 从而影响 BST 层的生长行为, 即外延质量。Zhang 等<sup>[40–41]</sup>也报道了 YSZ 缓冲层对应力的调控, 使得 BST 薄膜的漏电流密度降低 2 个数量级, 提高了 BST 薄膜的介电性能。赵冬月等<sup>[42]</sup>在 Pt/Ti/SiO<sub>2</sub>/Si(001)衬底上生长了具有超薄非晶 Ti–Al 过渡层的 Ba<sub>0.6</sub>Sr<sub>0.4</sub>TiO<sub>3</sub> 薄膜, 实验表明 Ti–Al 过渡层的存在有助于阻止 Pt/BST 界面之间的扩散, 从而使得薄膜介电常数增大, 介电损耗由 0.09 减小至 0.03。Zhu 等<sup>[43]</sup>在 BST 薄膜和底电极间生长了 1 层 MgO 作为缓冲层, 1 MHz 下介电可调率为 30%, 介电损耗为 0.009。诸多研究表明, 通过改进沉积技术和增加缓冲层实现应力调控, 优化晶体结构, 对于减小漏电流、降低介电损耗有着重要意义。

**1.1.3 组分调控** BST 材料中内部组分 Ba、Sr、Ti 元素的化学计量比能显著影响薄膜的铁电–介电性能和 Curie 温度, 所以合适化学计量比有利于 BST 薄膜实现高可调率和低损耗。Park 等<sup>[37]</sup>在单晶 MgO 衬底上沉积了 BST( $0 \leq x \leq 1$ )薄膜, 发现可调性在  $x=0.2$  显示出最大值, 优值 FOM 在  $x=0.4$  达到最大值, 进一步表明在给定工作温度下 BST 薄膜组分调控的重要性。Kim 等<sup>[38]</sup>的研究表明 BST 薄膜的高介电损耗源于化学计量比控制不良, 在不匹配衬底上生长导致的扩展缺陷和高能沉积导致的点缺陷。氧化物分子束外延(MBE)是一种高纯度、低能量沉积技术。随着薄膜沉积技术的发展, MBE 技术因其出色的化学计量控制和低点缺陷密度被应用于高质量 BST 薄膜生长。

Mikheev 等<sup>[44]</sup>利用 MBE 技术在  $\text{Pt}/\text{SrTiO}_3$  衬底上外延生长了一系列不同 Ba 浓度的 260 nm 到 300 nm 厚的  $\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{TiO}_3$  薄膜, 并于此薄膜上制备了平行板电容器研究其介电性能。混合 MBE 提供的化学计量控制和低点缺陷密度, 允许可调谐 BST 薄膜的高品质因子, 其中, 在 1 MHz 下 0.46 组分的 BST 薄膜可以获得大于 60% 的可调率和 100 左右的品质因子。为了得到化学组分与目标组分更一致的 BST 薄膜, Meyers 等<sup>[45]</sup>报道了采用改进的 MBE 技术在

$\text{LaAlO}_3$  (LAO) 衬底上外延生长了 150 nm 和 300 nm 的  $\text{Ba}_{0.29}\text{Sr}_{0.71}\text{TiO}_3$  薄膜。对于 300 nm 厚的样品, 品质因子  $Q$  在 1 GHz 的测试频率下接近 200, 介电可调率优于 56%。如图 1 所示, 薄膜和厚膜的质量因子( $Q$ )与电压响应结果则呈现相反的趋势。这表明 MBE 生长薄膜中的损耗主要是由于内部损耗机制, 而不是由缺陷或晶界引起的外部损耗, 并认为这种差异性表明存在某些未知的高阶材料本征性质影响了材料损耗和调谐特性, 进一步原因有待深入研究。

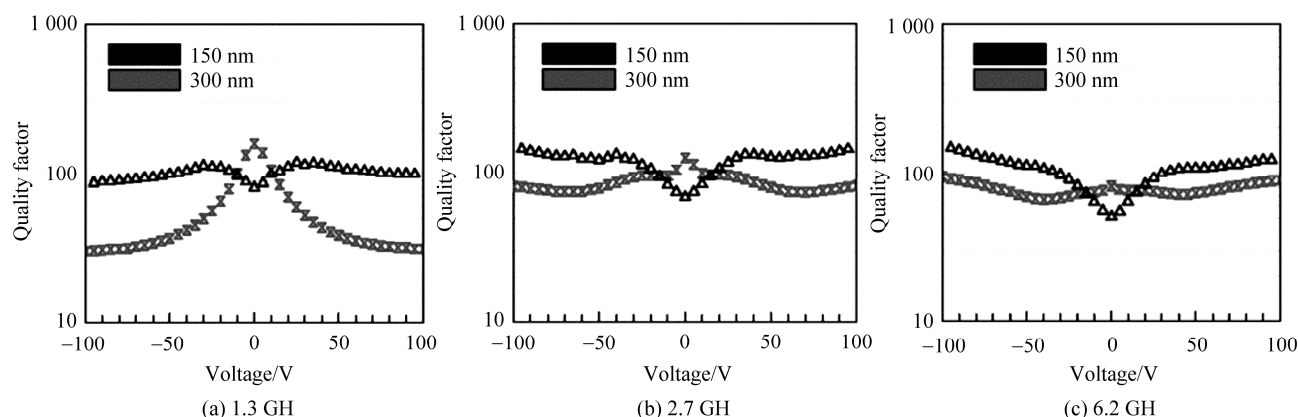


图 1 在 1.3、2.7 GHz 和 6.2 GHz 时, 150 nm ( $\Delta$ ) 和 300 nm (X) BST 薄膜上制备的智能分散控制系统(IDC)质量因子  $Q$  与电压的响应关系<sup>[45]</sup>

Fig. 1 Quality factor vs voltage response at 1.3, 2.7 GHz, and 6.2 GHz for intelligent distributed control system (IDCs) fabricated on 150 nm ( $\Delta$ ) and 300 nm (X)  $\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{TiO}_3$  (BST) films<sup>[45]</sup>

## 1.2 BST 薄膜的掺杂改性调控

掺杂可以改变 BST 薄膜的晶格参数和离子间的相互作用, 是一种调控薄膜介电性能的有效手段。BST 是  $\text{ABO}_3$  型钙钛矿氧化物, 掺杂改性包括受主(B 位)掺杂、施主(A 位)掺杂和多元掺杂等。

受主掺杂能接受电子, 中和氧空位, 降低薄膜系统的电子浓度, 增大电极界面的 Schottky 势垒高度和耗尽层宽度。受主掺杂离子还可以抑制  $\text{Ti}^{4+}$  与  $\text{Ti}^{3+}$  之间的电子跃迁, 降低薄膜介电损耗。Chang 等<sup>[46]</sup>报道镁离子作为受主掺杂离子可以取代 B 位  $\text{Ti}^{4+}$ , 接受电子并在价带中形成带正电的空穴, 使得 Fermi 能级降低, 从而显著地减少了 BST 薄膜的介电损耗, 提高了薄膜的品质因子。Gao 等<sup>[25]</sup>研究发现 BST 薄膜的微观结构、介电性能、铁电性能、铁磁性能与 Co 的掺杂浓度之间有很强的相关性, 在 100 kHz 的频率、500 kV/cm 直流电场作用下, 5% (摩尔分数) Co 掺杂的薄膜有最佳的介电性能, 介电损耗为 0.013 以下, 介电可调率为 45%。Kim 等<sup>[47]</sup>采用溶胶-凝胶法在  $\text{Pt}/\text{Ti}/\text{SiO}_2/\text{Si}$  衬底上制备了 Cr 掺杂 BST 介电薄膜, 并分析表明增加 Cr 掺杂率会导致晶粒尺寸增大, 有效改善薄膜的介电常数和漏电流特

性, 当 Cr 掺杂量为 5% (摩尔分数) 时, 在 100 kHz 测试频率下, 薄膜介电损耗为 0.006 5, 可调率 47.7% (100 kV/cm)。

施主掺杂能释放出电子, 形成不能移动的、离子化的正电荷中心。施主掺杂离子的引入, 能抑制氧空位的产生和减小晶粒尺寸, 从而可以达到降低漏电流及介电损耗的目的。Sekhar 等<sup>[48]</sup>利用脉冲激光沉积技术制备了一系列掺杂 K 浓度不同的 BST 铁电薄膜, 其研究表明 K 离子掺杂水平对薄膜的晶体应变、晶粒尺寸、介电性能和可调性能都有很大影响。7.5% (摩尔分数) K 掺杂的 BST 薄膜在 100 kHz 的频率下介电可调率高达 77% (400 kV/cm), 介电损耗为 0.012 左右。应变的松弛、小的晶粒以及更光滑的表面, 被认为是提高性能的原因。Luo<sup>[49]</sup>首次报道了 Rb 掺杂对 BST 薄膜表面形貌和介电性能的影响。当 BST 薄膜掺杂 4% (摩尔分数) Rb 时, 在 2 MHz 频率, 377 kV/cm 的电场强度下可调谐性、介电常数最高, 分别为 63.37% 和 486, 但是该薄膜的介质损耗略高于未掺杂的 BST 薄膜。

为了进一步提高 BST 薄膜的介电性能, 近年来研究人员由单一元素掺杂转为采用交替掺杂、多元

复合掺杂等方法, 选择不同离子进行多元掺杂实现性质优势互补, 提高薄膜材料的可调谐率、降低材料的介电损耗。Huang 等<sup>[50]</sup>的报道显示 Mg 掺杂使 BST 薄膜表面结构最好, K 掺杂使表面结构最差, 而当 K、Mg 交替掺杂的 BST 薄膜介电损耗比 K 掺杂低, 可调性比 Mg 掺杂高, 克服了 K 和 Mg 单一掺杂的缺点。Yang 等<sup>[51]</sup>采用改进的溶胶–凝胶法制备了 Mn、Y 交替掺杂的 BST 薄膜, 显示出更光滑、更致密的形态, 随着掺杂浓度的增加, 粗糙度降低, 晶格参数先增大后减小, 掺杂机制由施主掺杂变为受主掺杂, 再变为施主掺杂。Emadi 等<sup>[21]</sup>报道了 Ni/C 交替掺杂的 BST 薄膜, 结果表明: Ni 和 C 的加入分别导致  $\text{Ti}^{4+}$ – $\text{Ni}^{2+}$  和  $\text{Ti}^{4+}$ – $\text{C}^{4+}$  的离子取代, 这些替换导致材料带隙能量增加, 介电损耗显著减小。Liao 等<sup>[52]</sup>利用溶胶–凝胶法制备了二元共掺杂的 Ce/Mn–BST 薄膜, 生长过程中对薄膜预热处理能促进  $\text{Ce}^{3+}$  和  $\text{Mn}^{4+}$  进入 B 位取代  $\text{Ti}^{4+}$ , 相对于 Ce 或 Mn 单一掺杂, 有效减少了电荷载流子的浓度, 使 Fermi 能级下降, 从而降低了漏电流和介电损耗, 提高了薄膜的调谐率, 薄膜介电性能达到 56% 的可调性, 0.003 7~0.009 1 的介电损耗。Liu 等<sup>[53]</sup>采用传统固相反应法制备了 La/Fe 共掺杂的  $\text{Ba}_{0.65}\text{Sr}_{0.35}\text{TiO}_3$  薄膜, 采用受主掺杂的  $\text{Fe}^{3+}$  降低介电损耗和施主掺杂的  $\text{La}^{3+}$  提高介电可调性, 其中在  $x=0.002\ 5$  时, 介质可调性为 78.8%, 介质损耗为 0.004, 可调性最佳, 并且 FOM 提高到 197, 大约是纯 BST 的 5 倍。突出的可调谐性能使 La/Fe 共掺杂 BST 在可调谐器件应用中具有吸引力。对于多元离子掺杂改性, 目前需要明确各种掺杂离子对 BST 薄膜微观结构和介电性能的影响, 探索不同离子之间是否存在优势互补效应, 进一步提升介电调谐性能。

### 1.3 多层膜或超晶格结构的 BST

其他物质复合用以改善材料性能是当前的研究热点之一。Tabata 等<sup>[54]</sup>最早发现  $\text{BaTiO}_3/\text{SrTiO}_3$  超晶格薄膜材料比相同厚度的  $\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{TiO}_3$  (BST5) 单层膜介电常数增强了 1 倍, 且不同薄膜对复合介电常数均有贡献, 并把这种现象归结于复合薄膜间晶格失配引起的超晶格层间的应变效果, STO 层和 BTO 层界面处的超晶格结构和应力对介电常数的提高起着重要的作用。自此, 一些采用多层薄膜或超晶格来提升薄膜介电性能的方法受到研究者的青睐。

Fu 等<sup>[55]</sup>将  $\text{Bi}_{1.5}\text{Zn}_{1.0}\text{Nb}_{1.5}\text{O}_7$  与 BST 复合制备成

双层膜, 可以将介电损耗降低到 0.005 以下, 且在  $-60\sim 60\ ^\circ\text{C}$  温度范围内, 复合薄膜介电性能稳定。如图 2 所示, Wang 等<sup>[56]</sup>报道的 Zn/Mg 交替掺杂且具有 ZBST/MBST/ZBST (ZMZ) 超晶格结构相对其他多层膜具有更好的综合介电性能。1 MHz 下, 具有高达 46% (30 V) 的可调谐率以及 0.007 左右的介电损耗, 同时薄膜还具有相对高的频率稳定性。紧接着, Liu 等<sup>[30–31]</sup>设计了一种新型钛酸锶(ST)与掺钾 BST (KBST) 复合材料, 其结构为 ST/KBST/ST 夹层型, 主要沿(110)晶面生长, 平均晶粒尺寸小于 20 nm, 且随着膜厚的增加, BST 相与 ST 相比值逐渐减小。在 1 GHz 下实现了稳定优良的介电性能, 介电损耗低至 0.004。此外, Jiao 等<sup>[5]</sup>利用化学溶液沉积法制备了  $\text{LiFe}_5\text{O}_8/\text{Ba}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{TiO}_3$  (LFO/BST) 复合薄膜。在偏置场作用下, LFO 层的离子脱插效应可在薄膜内部形成内电场, 实现了复合薄膜的高介电可调性和低损耗。由于复合薄膜中的耦合效应, 高频时介电常数保持不变, 介电损耗降低到 0.008。此外 LFO/BST 薄膜在偏置电场  $-340\ \text{kV/cm}$  下的可调率达到了 71.30%。如图 3 所示, LFO/BST 复合薄膜的介电常数对偏置场的响应特征表现为不对称的蝴蝶曲线<sup>[5]</sup>。在  $+340\ \text{kV/cm}$  和  $-340\ \text{kV/cm}$  的直流偏置场下, LFO/BST 复合薄膜在 1 MHz 下的介电可调性分别为 19.30% 和 71.30%。研究认为这些现象可以用偏压作用下薄膜内部产生的内电场来解释<sup>[5]</sup>。而后在三元复合薄膜介电性能上, Liu 等<sup>[30]</sup>采用了改良的溶胶–凝胶法制备了 ST/MnBST/YBST...MnBST/YBST/ST (ST 为缓冲层, MnBST 为锰掺杂的 BST, YBST 为钇掺杂的 BST) 多层膜, 在 100 kHz 时介电损耗为 0.003~0.004 左右, 在 1 GHz 时介电损耗约为 0.018<sup>[30]</sup>。综上, 多层膜或超晶格结构在调谐器件的应用方面具有良好的潜力, 但目前仅针对这种复合薄膜的性能研究, 对内在机理缺乏一定的认识, 还需要进行长期的研究工作。

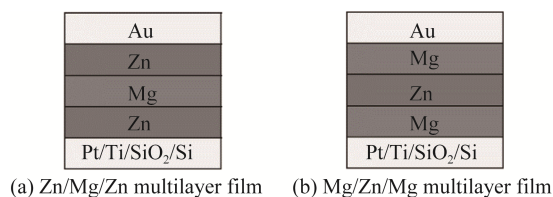


图 2 交替掺杂 BST 薄膜变容器示意图<sup>[56]</sup>

Fig. 2 Schematic diagram of the alternately doped BST film varactors<sup>[56]</sup>

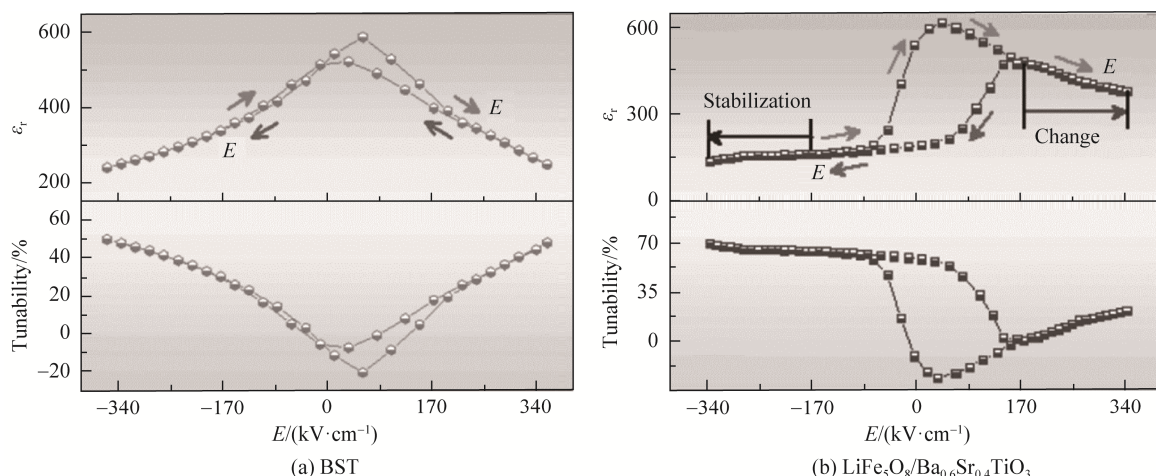


图 3 测试频率为 20 kHz 时薄膜介电常数和可调率与偏压电场强度的依赖关系<sup>[5]</sup>  
Fig. 3 Dielectric constant ( $\epsilon_r$ ) and tunability of the film to bias electric field at 20 kHz<sup>[5]</sup>

## 2 BST 薄膜基可调谐微波器件研究现状

铁电材料具有介电常数随外加电场变化而变化的非线性特性, 在微波可调谐器件中具有广阔的应用前景, 如可调振荡器、移相器、滤波器和变容器等。高的介电可调率、低的介电损耗和合适的介电常数大小是微波应用的基本要求。

### 2.1 BST 薄膜基可变电容器

目前, 基于 BST 多层膜的可变电容器表现出了优异的介电调谐性能<sup>[30-31]</sup>, 在低频下(小于 1 MHz), 保持 40% 以上的介电调谐率的同时品质因子可达到 100 以上。据文献[57]报道, 加拿大 Gennum 公司所报道的 BST 变容管在 1 MHz 下的  $Q$  值为 100, 已经实现产品化。Victor 等<sup>[58]</sup>制备的 BST 变容管在同样频率下  $Q$  值可以达到 200 左右。

BST 薄膜更高频应用下器件品质因子的提升成为众多研究者关注的焦点。李汝冠<sup>[59]</sup>设计并研制了 BZN/BST 薄膜变容管, 该变容管在 100 MHz 时保持高的介电可调率(大于 40%)的同时  $Q$  值可以达到 150。Liu 等<sup>[31]</sup>制备了一种新型钛酸锶(STO)和掺钾 BST (KBST)复合材料, 基于此材料的可变电容器在 1 GHz 下, 具有高达 200 以上的品质因子, 在高频微波器件应用方面潜力巨大。

变容器电极材料的适当选取在高频应用中提升介电调谐性能意义重大。在过去几十年的研究中, 人们通常选用贵金属材料作为电容器底电极来降低器件损耗, 但是高频(GHz)下, 金属-绝缘体-金属(MIM)结构变容器中的声学共振会大大降低器件质量<sup>[60]</sup>。

如图 4 所示, 在高频(4 GHz 以上)下, 这些谐振严重降低了基于 Pt 底电极变容器的性能<sup>[61]</sup>。高导电

性的氧化物电极的引入很好的解决了这个问题,  $\text{SrMoO}_3$ (SMO)和 BST 晶格匹配度高(晶格失配低于 0.5%), 声波在 BST/SMO 界面的反射比在 Pt/BST 界面上小。因此, 使用氧化物底电极可以降低由于声波反射引起的损耗<sup>[61]</sup>。

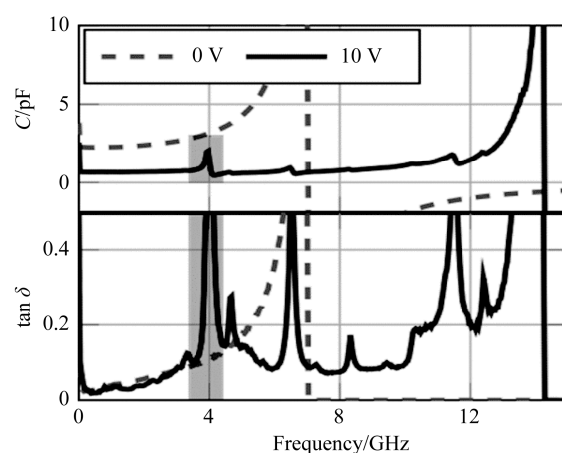
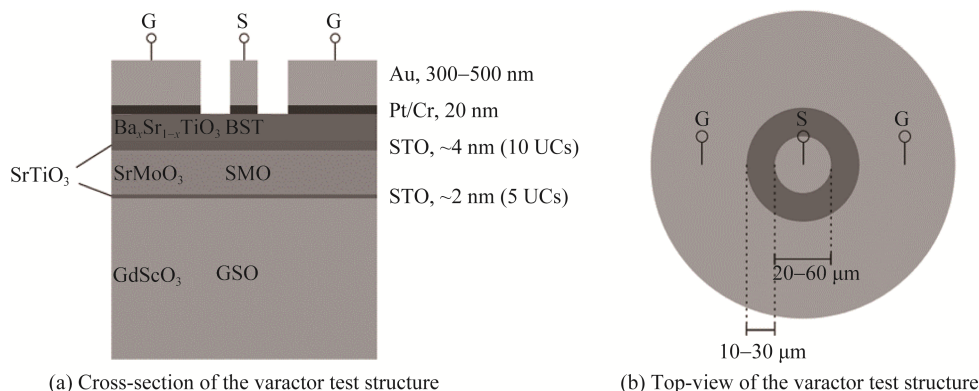


图 4 商用 BST 薄膜变容器(STPTIC-12)的电容和损耗正切随频率的变化<sup>[61]</sup>

Fig. 4 Capacitance ( $C$ ) and loss tangent ( $\tan\delta$ ) of a commercial BST thin-film varactor (STPTIC-12, the first acoustic resonance is highlighted in grey)<sup>[61]</sup>

如图 5 所示, Walk 等<sup>[62]</sup>用 SMO 氧化物作为底电极设计可变电容器, 该变容器的介电材料是 80 nm 厚度 BST 薄膜, 底电极 SMO 厚度为 650~700 nm, 顶电极为 Au/Pt。在 1 GHz 的频率下有高达 70% 的介电可调率和 45 左右的品质因子。如图 6 所示<sup>[61]</sup>, 该团队通过模型模拟对比了 Pt 和 SMO 为底电极的 BST 薄膜的介电性能, 结果表明氧化物底电极结构的 BST 薄膜电容器具有完全抑制声学共振的潜力, 对于提高器件质量有着重要意义。



UC is unit cell.

图5 变容器结构<sup>[62]</sup>

Fig. 5 Varactor test structure<sup>[62]</sup>

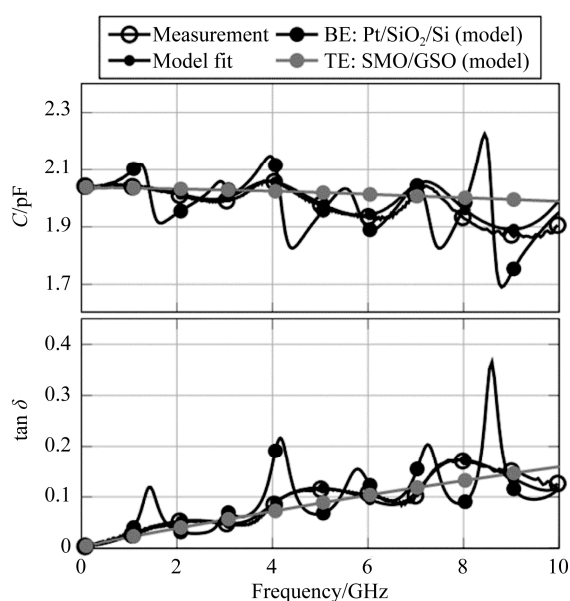


图6 不同电极结构下, 薄膜厚度为 81 nm 测试样品的电容、介电损耗随频率变化的模型模拟对比图<sup>[61]</sup>

Fig. 6 Model-wise comparison of various layer systems in terms of  $C$  and  $\tan \delta$  vs. frequency based on the measured sample with film thickness 81 nm<sup>[61]</sup>

## 2.2 BST 薄膜基滤波器

现代宽带无线通信对射频前端中电子信号分离带来了巨大挑战, 滤波器可以对输入信号进行预处理, 排除无用的干扰信号。采用单一的铁电可调谐滤波器替代多个传统滤波器组成的滤波器组, 更加符合现代雷达和通讯领域对器件小型化和集成化的发展要求。在过去的 20 多年中, 美国 Paratek 微波公司已经实现 2 种 BST 可调谐滤波器的商业化, 包括在 2 GHz 工作的混合微带线谐振滤波器<sup>[63]</sup>以及工作在 22.5 GHz 和 38.5 GHz 的鳍线结构波导谐振滤波器<sup>[64]</sup>。前者在 200 V 偏压下通带插入损耗为 7.7 dB, 中心频率从 2.16 GHz 移动到 2.36 GHz (调

谐率 9.3%)。后者中心频率为 22.5 GHz 下三极鳍线波导谐振滤波器, 最大插损只有 2 dB, 300 V 电压下调谐带宽为 2.2%; 中心频率为 38.5 GHz 的两极鳍线滤波器, 插损为 3 dB, 200 V 下调谐带宽为 1%。

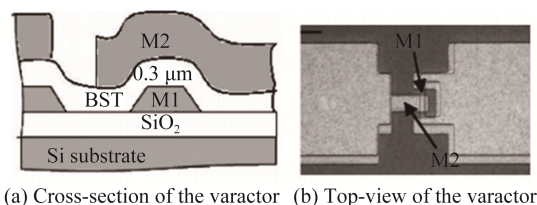
目前, 王文君<sup>[65]</sup>设计了中心频率为 870 MHz 的 5 阶梳状线微带通可调滤波器和中心频率为 7.8 GHz 的 4 阶半波长开环带通可调滤波器, 由于没考虑 BST 薄膜介电损耗随偏压的变化, 实际器件插入损耗高达 10 dB。王宏哲<sup>[66]</sup>报道了二元交替掺杂 BST 薄膜, 薄膜在 10 MHz、100 kHz 时的品质因子  $Q$  值分别为 111.3 和 108.6, 表现出较好的频率稳定性。基于该薄膜制作的四阶“抽头型”梳状线可调带通滤波器成功实现了调频特性, 但是插入损耗很高。如何降低器件的插入损耗依然是 BST 基微波器件应用面临的一个大的问题。

## 2.3 BST 薄膜基移相器

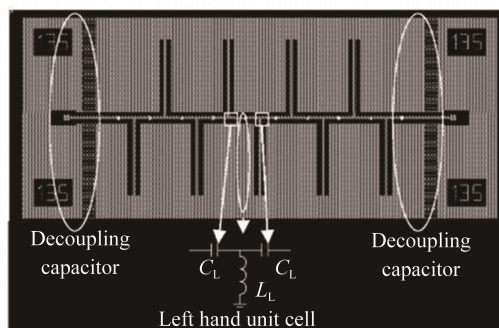
移相器是相控阵天线的核心组件, 移相器的性能决定了相控阵天线的扫描范围和扫描精度。移相器的性能优劣对于未来相控阵天线、单片雷达等多种电子与通讯系统的发展起着至关重要的作用。设计出满足其要求且与之匹配性能良好的实用型移相器是综合多个不同领域的共同研究课题。移相器按材料划分可以分为铁氧体移相器、PIN 二极管移相器、射频 MEMS 移相器和铁电移相器。目前大多采用铁氧体、PIN 二极管移相器, 但是二者在高频微波领域的应用上依然面临着成本高、体积大、相位调节速度慢和插入损耗大等问题。BST 铁电材料因其具有快速的反应速率, 低的介电损耗, 高的可调谐率, 是用于新一代高频微波移相器的有力候选者。

如图 7 所示, Kuylensstierna 等<sup>[67]</sup>提出了一种 Left-Hand 移相器结构, 工作频带为 8.7~10.9 GHz,

相移量为  $250^\circ$ , 优值因子(等于相移量/出插入损耗)为  $30^\circ/\text{dB}$ 。Sazegar 等<sup>[68]</sup>在通过丝网打印技术制备的 BST 厚薄膜上实现一种紧凑型的移相器。该移相器在  $8\sim 10\text{ GHz}$  的测试频段下具有  $360^\circ$ 连续可调的移相能力, 优值因子为  $51^\circ/\text{dB}$ 。Mahmud 等<sup>[69]</sup>报道了基于 BST 薄膜变容器的移相器。在  $1\text{ GHz}$  时, 施加  $4.8\sim 12.8\text{ V}$  的控制电压相位变化约为  $100^\circ$ , 增益变化约  $0.6\text{ dB}$ , 优值因子约  $160^\circ/\text{dB}$ 。



(a) Cross-section of the varactor (b) Top-view of the varactor



(c) Layout of phase shifter

图 7 变容器结构和移相器布局<sup>[67]</sup>

Fig. 7 Structure of the varactor and the layout of phase shifter<sup>[67]</sup>

国内李汝冠<sup>[59]</sup>制备了低损耗、高可调和低漏电的 BZN/BST 复合薄膜材料, 在此基础上研制了采用周期性负载电容结构的 X 波段传输型移相器。在  $12\text{ GHz}$  时的回波损耗优于  $-13\text{ dB}$ , 最大插入损耗为  $-4\text{ dB}$ , 能够提供  $0$  至  $65^\circ$ 连续变化的相移量。宁希<sup>[70]</sup>采用分布电容拓扑结构, 设计并实现了工作频率达  $0.1\text{ THz}$  的超宽带低损耗移相器, 在  $75\sim 100\text{ GHz}$  测试频率下, 基本结构分布移相器插入损耗在  $4.2\sim 5.7\text{ dB}$ , 在  $25\text{ V}$  偏置电压下相移度为  $60^\circ$ , 优值因子为  $10.5^\circ/\text{dB}$ 。Li 等<sup>[71]</sup>基于 BZN/BST 多层膜研制共面波导传输线分布式移相器, 该电路在  $1\sim 12\text{ GHz}$  的回波损耗优于  $-13\text{ dB}$ , 在  $12\text{ GHz}$  提供  $65^\circ$ 相移, 插入损耗为  $-4\text{ dB}$ 。郑立方等<sup>[72]</sup>设计了一种加载 BST 铁电薄膜移相器的天线阵, 仿真结果实现了天线阵辐射方向性  $+10^\circ$ 转向及相控天线阵的移相特性。吴大俊等<sup>[73]</sup>也设计出了基于 BST 薄膜移相器的可扫描端射阵列天线系统, 该天线系统加载了  $4$  个 BST 薄膜移相器, 通过在各个移相器上加载不同的电压可实现天线波束端扫描。雷达与天线系统的发展推

动移相器技术的不断革新, 同时移相器移相机理与结构设计的创新从另一方面也在促使天线、雷达等通讯系统朝着更加成熟的方向迈进。

## 2.4 BST 薄膜基振荡器

微波振荡器是微波信号发生器的核心部件。BST 薄膜具备介电可调特性, 满足压控振荡器(VCO)对调谐带宽的要求, 此外 BST 薄膜具备较低的介电损耗, 可提高整个器件的  $Q$  值, 降低 VCO 相位噪声, 同时适中的电容值, 可满足高频应用的要求。

Victor 等<sup>[74]</sup>报道了一种采用 BST 薄膜作为调谐元件的  $1.6\text{ GHz}$  功率振荡器, 在  $100\text{ kHz}$  偏置时, 振荡器相位噪声最大为  $-81.4\text{ dBHz}$ 。Kong 等<sup>[75]</sup>提出了一种采用 BST 变容器的单片 AlGaIn/GaN 高电子迁移率晶体管 VCO。图 8 为制作的单片微波集成电路(MMIC)VCO 照片, 尺寸为  $1.6\text{ mm}\times 1.2\text{ mm}$ 。当 BST 变容电压从  $0\text{ V}$  变为  $20\text{ V}$  时, VCO 的中心频率为  $6.42\text{ GHz}$ , 带宽为  $500\text{ MHz}$  可调, 相位噪声为  $-75\text{ dB/Hz}$  ( $100\text{ kHz}$ )和  $-110\text{ dB/Hz}$  ( $1\text{ MHz}$ )。

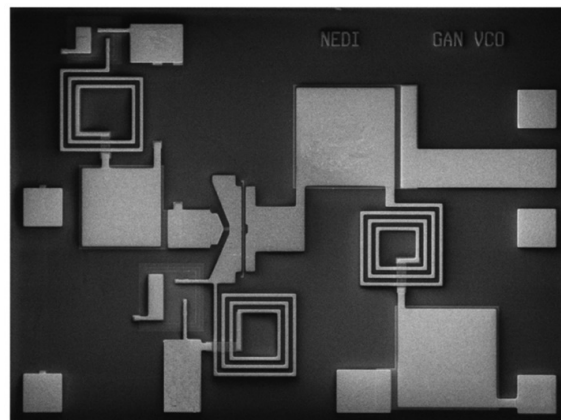


图 8 微波集成电路压控振荡器(MMIC VCO)芯片的照片<sup>[75]</sup>  
Fig. 8 Photograph of the fabricated microwave integrated circuit voltage controlled oscillator chip<sup>[75]</sup>

## 3 结论

BST 铁电薄膜由于其适中的介电常数、高的介电可调率和相对较低的介电损耗是新一代微波可调谐器件的有力候选者之一。国内外在薄膜制备和微波应用方面都有相关的报道。

在薄膜生长方面, 国内研究人员们通过一系列手段对 BST 薄膜的介电性能进行了优化, 介电损耗明显减小。但是, 这个过程中依然面临许多待解决的问题。一方面, 未能完全厘清薄膜的介电性能的物理机制, 尤其是介电可调率和介电损耗物理机理的解耦也待解决。铁电薄膜的诸多生长条件、以及薄膜厚度、衬底或下电极材料都会严重影响薄膜质

量<sup>[76]</sup>；另一方面，为了满足薄膜在高频段微波应用的需求，高频段薄膜介电性能的测试和提取的优化也迫在眉睫。

在微波器件方面，国外早已出现了系列化、产品化的器件甚至系统。国内和国外差距较大，还停留在实验室阶段。这要求研究者在提升薄膜介电性能的同时，在微波器件设计、仿真、制备和测试方面投入更多的精力。比如优化可变电容器的电极结构、改进微波器件设计和优化微加工工艺等。

总之，BST 铁电薄膜基可调谐微波器件要走向商业化还需要研究者更进一步理解薄膜介电性能的物理机理，优化生长条件、制备工艺，实现薄膜介电可调率和介电损耗的协同优化，获得高品质的薄膜。在此基础上，得到具有应用前景和市场需求的可调谐微波器件。

#### 参考文献:

- [1] 蒋书文, 李汝冠, 王鲁豫, 等. 介电可调薄膜材料及压控微波器件研究[J]. 电子科技大学学报, 2009, 38(5): 609–617.  
JIANG Shuwen, LI Ruguan, WANG Luyu, et al. J Univ Electron Sci Technol China, 2009, 38(5): 609–617.
- [2] 王耿, 傅邱云, 张芦, 等. 钽铌钛系高介低损耗微波介质陶瓷研究进展[J]. 材料导报, 2019, 33(13): 2151–2158.  
WANG Geng, FU Qiuyun, ZHANG Lu, et al. Mater Rep, 2019, 33(13): 2151–2158.
- [3] 张光义. 微波技术在先进相控阵雷达中的应用[J]. 现代雷达, 1996, 18(4): 1–7.  
ZHANG Guangyi. Mod Radar, 1996, 18(4): 1–7.
- [4] 秦杨晓, 李卓, 梁文学, 等. 钛酸锶铁电陶瓷介电调谐性能研究进展[J]. 压电与声光, 2018, 40(1): 95–100.  
QIN Yangxiao, LI Zhuo, LIANG Wenxue, et al. Piezoelectrics Acoustooptics, 2018, 40(1): 95–100.
- [5] JIAO T J, YOU C Y, TIAN N, et al. High tunability and low loss via establishing an internal electric field in  $\text{LiFe}_5\text{O}_8/\text{Ba}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{TiO}_3$  composite films using chemical solution deposition method[J]. Appl Surf Sci, 2022, 590: 153112.
- [6] GU Z Q, PANDYA S, SAMANTA A, et al. Resonant domain-wall-enhanced tunable microwave ferroelectrics[J]. Nature, 2018, 560(7720): 622–627.
- [7] WANG W, XIN L, REN L C, et al. Enhanced dielectric properties in median-temperature sintered  $\text{Ba}_{0.4}\text{Sr}_{0.6}\text{TiO}_3\text{--CuGa}_2\text{O}_4$  composite ceramics[J]. J Alloys Compd, 2020, 837: 155553.
- [8] FETEIRA A, SINCLAIR D C, REANEY I M, et al.  $\text{BaTiO}_3$ -based ceramics for tunable microwave applications[J]. J Am Ceram Soc, 2004, 87(6): 1082–1087.
- [9] KUO Y L, WU J M. Tunable dielectric properties of lead barium zirconate niobate films[J]. Appl Phys Lett, 2006, 89(13): 132911.
- [10] LIU C, LIU P. Microstructure and dielectric properties of BST ceramics derived from high-energy ball-milling[J]. J Alloys Compd, 2014, 584: 114–118.
- [11] CHEN C, WEI A Q, LI Y H, et al. Improved tunable properties of Co doped  $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3$  thin films prepared by sol–gel method[J]. J Alloys Compd, 2017, 692: 204–211.
- [12] SHEN S T, XIN L, REN L C, et al. Effects of vacancy defects caused by non-stoichiometric ratio on dielectric properties of  $\text{ABO}_3$  perovskite ( $\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{TiO}_3$ ) ceramics[J]. Ceram Int, 2020, 46(8): 11943–11949.
- [13] 黄歆, 樊青青, 翟禹光, 等. BST 铁电薄膜的制备及介电性能研究[J]. 压电与声光, 2020, 42(3): 340–344.  
HUANG Xin, FAN Qingqing, ZHAI Yuguang, et al. Piezoelectrics Acoustooptics, 2020, 42(3): 340–344.
- [14] 张雪峰, 李会容, 武昭好. 快速热处理对  $\text{BaSrTiO}_3$  薄膜微结构的影响[J]. 材料工程, 2009, 37(9): 16–19.  
ZHANG Xuefeng, LI Huirong, WU Zhaoyu. J Mater Eng, 2009, 37(9): 16–19.
- [15] LU S G, ZHU X H, MAK C L, et al. High tunability in compositionally graded epitaxial barium strontium titanate thin films by pulsed-laser deposition[J]. Appl Phys Lett, 2003, 82(17): 2877–2879.
- [16] COLE M W, NGO E, HIRSCH S, et al. The fabrication and material properties of compositionally multilayered  $\text{Ba}_{1-x}\text{Sr}_x\text{TiO}_3$  thin films for realization of temperature insensitive tunable phase shifter devices[J]. J Appl Phys, 2007, 102(3): 034104.
- [17] ABDUL KHALID M F, HOLLAND A S, GHORBANI K. Influence of post-annealing on the performance of BST thin film varactors[C]//2014 Asia-Pacific Microwave Conference. Sendai, Japan. IEEE, 2015: 309–311.
- [18] 张勤勇, 蒋书文, 李言荣. 快速热处理对  $(\text{Ba}, \text{Sr})\text{TiO}_3$  薄膜晶化行为的影响[J]. 材料导报, 2006, 20(11): 115–118.  
ZHANG Qinyong, JIANG Shuwen, LI Yanrong. Mater Rev, 2006, 20(11): 115–118.
- [19] LIAO J X, YANG C R, ZHANG J H, et al. The interfacial structures of  $(\text{Ba}, \text{Sr})\text{TiO}_3$  films deposited by radio frequency magnetron sputtering[J]. Appl Surf Sci, 2006, 252(20): 7407–7414.
- [20] LIU H R, AVRUTIN V, ZHU C Y, et al. Enhanced microwave dielectric tunability of  $\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{TiO}_3$  thin films grown with reduced strain on  $\text{DyScO}_3$  substrates by three-step technique[J]. J Appl Phys, 2013, 113(4): 044108.
- [21] EMADI F, NEMATI A, HINTERSTEIN M, et al. Microstructural, optical, and electrical characteristics of Ni/C doped BST thin films[J]. Ceram Int, 2019, 45(5): 5503–5510.
- [22] CHONG K B, KONG L B, CHEN L F, et al. Improvement of dielectric loss tangent of  $\text{Al}_2\text{O}_3$  doped  $\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{TiO}_3$  thin films for tunable microwave devices[J]. J Appl Phys, 2004, 95(3): 1416–1419.
- [23] IM J, AUCIELLO O, BAUMANN P K, et al. Composition-control of magnetron-sputter-deposited  $(\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x})\text{Ti}_{1+y}\text{O}_{3+z}$  thin films for voltage tunable devices[J]. Appl Phys Lett, 2000, 76(5): 625–627.
- [24] GAO L B, GUAN Z P, HUANG S X, et al. Enhanced dielectric properties of barium strontium titanate thin films by doping modification[J]. J Mater Sci Mater Electron, 2019, 30(14): 12821–12839.
- [25] GAO L N, ZHAI J W, YAO X. The influence of Co doping on the dielectric, ferroelectric and ferromagnetic properties of  $\text{Ba}_{0.70}\text{Sr}_{0.30}\text{TiO}_3$  thin films[J]. Appl Surf Sci, 2009, 255(8): 4521–4525.
- [26] JOSHI P C, COLE M W. Mg-doped  $\text{Ba}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{TiO}_3$  thin films for tunable microwave applications[J]. Appl Phys Lett, 2000, 77(2): 289–291.
- [27] JUN S, KIM Y S, LEE J, et al. Dielectric properties of strained  $(\text{Ba}, \text{Sr})\text{TiO}_3$  thin films epitaxially grown on Si with thin yttria-stabilized zirconia buffer layer[J]. Appl Phys Lett, 2001, 78(17): 2542–2544.
- [28] LIU W L, LIAO J X, WANG S Z, et al. Significant reduction of

- dielectric loss of  $\text{Ba}_{0.51}\text{Sr}_{0.34}\text{TiO}_3$  film modified by Y/Mn alternate doping and preheating[J]. *Ceram Int*, 2018, 44(13): 15653–15659.
- [29] GEVORGIAN S, PETROV P K, IVANOV Z, et al. Tailoring the temperature coefficient of capacitance in ferroelectric varactors[J]. *Appl Phys Lett*, 2001, 79(12): 1861–1863.
- [30] LIU W L, LEI Y J, FENG W, et al. Comprehensive dielectric performance of alternately doped BST multilayer films coated with strontium titanate thin layers[J]. *J Mater Res Technol*, 2021, 13: 385–396.
- [31] LIU W L, TAO L, FENG W, et al. Sandwich-type composite multilayer films of strontium titanate and Barium strontium titanate and their controllable dielectric properties[J]. *J Mater Sci Technol*, 2021, 85: 245–254.
- [32] VILARINHO P M, FU Z, KINGON A I, et al. Low loss tunable dielectric  $\text{BaNd}_2\text{Ti}_5\text{O}_{14}$ –( $\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}$ ) $\text{TiO}_3$  composite thick films[J]. *Scr Mater*, 2018, 155: 160–163.
- [33] CHANG W, HORWITZ J S, CARTER A C, et al. The effect of annealing on the microwave properties of  $\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{TiO}_3$  thin films[J]. *Appl Phys Lett*, 1999, 74(7): 1033–1035.
- [34] CUKAUSKAS E J, KIRCHOEFER S W, CHANG W. Morphology and dielectric properties of  $\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{TiO}_3$  thin films on annealed (1 0 0)  $\text{MgO}$ [J]. *J Cryst Growth*, 2002, 236(1–3): 239–247.
- [35] CHENG B L, WANG S Y, LU H B, et al. Effects of oxygen pressure on lattice parameter, orientation, surface morphology and deposition rate of ( $\text{Ba}_{0.02}\text{Sr}_{0.98}$ ) $\text{TiO}_3$  thin films grown on  $\text{MgO}$  substrate by pulsed laser deposition[J]. *Thin Solid Films*, 2005, 485(1–2): 82–89.
- [36] ABDEL-MOTALEB I, AKULA B, LEEDY K, et al. Oxygen effects on Barium strontium titanate morphology and MOS device performance[J]. *Mater Lett*, 2013, 92: 389–392.
- [37] PARK B H, JIA Q X. Enhanced dielectric properties of (Ba, Sr) $\text{TiO}_3$  thin films applicable to tunable microwave devices[J]. *Jpn J Appl Phys*, 2002, 41(Part 1, No. 11B): 7222–7225.
- [38] KIM W J, WU H D, CHANG W, et al. Microwave dielectric properties of strained ( $\text{Ba}_{0.4}\text{Sr}_{0.6}$ ) $\text{TiO}_3$  thin films[J]. *J Appl Phys*, 2000, 88(9): 5448–5451.
- [39] JUN S, LEE J. Growth of epitaxial ( $\text{Ba}_{0.5}, \text{Sr}_{0.5}$ ) $\text{TiO}_3$  thin films on silicon with a thin buffer layer[J]. *Ferroelectrics*, 2002, 271(1): 21–26.
- [40] WANG J, ZHANG T J, XIA H Y, et al. Influence of YSZ buffer layer on the electric properties of compositionally graded (Ba, Sr) $\text{TiO}_3$  thin film[J]. *J Sol Gel Sci Technol*, 2008, 47(1): 102–106.
- [41] ZHANG T J, WANG J Z, ZHANG B S, et al. The influence of YSZ interlayer on microstructures and dielectric properties of BST thin films prepared by RF magnetron sputtering[J]. *J Mater Sci Mater Electron*, 2007, 18(8): 877–882.
- [42] 赵冬月, 刘保亭, 郭哲, 等. 非晶 Ti–Al 过渡层对  $\text{Pt}/\text{Ba}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{TiO}_3/\text{Pt}$  电容器结构和性能的影响[J]. *人工晶体学报*, 2011, 40(1): 161–165.
- ZHAO Dongyue, LIU Baoting, GUO Zhe, et al. *J Synth Cryst*, 2011, 40(1): 161–165.
- [43] ZHU W C, CHENG J R, YU S W, et al. Enhanced tunable properties of  $\text{Ba}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{TiO}_3$  thin films grown on  $\text{Pt}/\text{Ti}/\text{SiO}_2/\text{Si}$  substrates using  $\text{MgO}$  buffer layers[J]. *Appl Phys Lett*, 2007, 90(3): 032907.
- [44] MIKHEEV E, KAJDOS A P, HAUSER A J, et al. Electric field-tunable  $\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{TiO}_3$  films with high figures of merit grown by molecular beam epitaxy[J]. *Appl Phys Lett*, 2012, 101(25): 252906.
- [45] MEYERS C J G, FREEZE C R, STEMMER S, et al. Effect of BST film thickness on the performance of tunable interdigital capacitors grown by MBE[J]. *Appl Phys Lett*, 2017, 111(26): 262903.
- [46] CHANG W, SENGUPTA L.  $\text{MgO}$ -mixed  $\text{Ba}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{TiO}_3$  bulk ceramics and thin films for tunable microwave applications[J]. *J Appl Phys*, 2002, 92(7): 3941–3946.
- [47] KIM K T, KIM C I. The effect of Cr doping on the microstructural and dielectric properties of ( $\text{Ba}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}$ ) $\text{TiO}_3$  thin films[J]. *Thin Solid Films*, 2005, 472(1–2): 26–30.
- [48] SEKHAR K C, HONG K P, KEY S H, et al. Enhanced dielectric and tunable characteristics of K-doped  $\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{TiO}_3$  thin films prepared by pulsed laser deposition[J]. *Thin Solid Films*, 2013, 527: 267–272.
- [49] LUO W, CHEN X Y, FAN J W, et al. Effect of Rb-doping on the dielectric and tunable properties of  $\text{Ba}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{TiO}_3$  thin films prepared by sol–gel[J]. *Ceram Int*, 2016, 42(15): 17229–17236.
- [50] HUANG J Q, LIAO J X, ZHANG W F, et al. Structures and dielectric properties of K and Mg alternately doped BST films[J]. *Integr Ferroelectr*, 2015, 162(1): 94–101.
- [51] YANG H Y, LIAO J X, FENG T T, et al. Dielectric properties of improved Y and Mn alternately doped BST films[J]. *Integr Ferroelectr*, 2016, 171(1): 108–114.
- [52] LIAO J X, XU Z Q, WEI X B, et al. Influence of preheating on crystallization and growing behavior of Ce and Mn doped  $\text{Ba}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{TiO}_3$  film by sol–gel method[J]. *Surf Coat Technol*, 2012, 206(22): 4518–4524.
- [53] LIU W F, ZHAO Y, JIN Y H, et al. Enhanced dielectric tunability and reduced dielectric loss in the La/Fe co-doped  $\text{Ba}_{0.65}\text{Sr}_{0.35}\text{TiO}_3$  ceramics[J]. *J Alloys Compd*, 2022, 901: 163642.
- [54] TABATA H, TANAKA H, KAWAI T. Formation of artificial  $\text{BaTiO}_3/\text{SrTiO}_3$  superlattices using pulsed laser deposition and their dielectric properties[J]. *Appl Phys Lett*, 1994, 65(15): 1970–1972.
- [55] FU W Y, WANG H, CAO L Z, et al.  $\text{Bi}_{1.5}\text{Zn}_{1.0}\text{Nb}_{1.5}\text{O}_7/\text{Mn}$ -doped  $\text{Ba}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{TiO}_3$  heterolayered thin films with enhanced tunable performance[J]. *Appl Phys Lett*, 2008, 92(18): 182910.
- [56] WANG H Z, DONG Y X, WANG Z M. High tunable dielectric properties of Zn and Mg alternately doped  $\text{Ba}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{TiO}_3$  film varactors[J]. *J Alloys Compd*, 2018, 745: 651–658.
- [57] KOUTSAROFF I P, BERNACKI T, ZELNER M, et al. Microwave properties of parallel plate capacitors based on (Ba, Sr) $\text{TiO}_3$  thin films grown on  $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$  substrates[J]. *MRS Online Proc Libr*, 2004, 784(1): 581–587.
- [58] VICTOR A, NATH J, GHOSH D, et al. A voltage controlled oscillator using Barium strontium titanate (BST) thin film varactor[C]//Proceedings of 2004 IEEE Radio and Wireless Conference (IEEE Cat. No.04TH8746). Atlanta, GA, USA. IEEE, 2005: 91–94.
- [59] 李汝冠. 低损耗 BZN/BST 介电薄膜及微波变容管技术研究[D]. 成都: 电子科技大学, 2013.
- LI Ruguan. Investigation of low loss BZN/BST thin films and varactor technologies[D]. Chengdu: University of Electronic Science and Technology of China, 2013.
- [60] WALK D, KIENEMUND D, SALG P, et al. Highly accurate analytic modeling of dispersive field distributions in MIM capacitances with electrodes thinner than skin depth[J]. *IEEE Trans Microw Theory Tech*, 2019, 67(12): 4665–4673.
- [61] WALK D, KIENEMUND D, AGRAWAL P, et al. Suppression of acoustic resonances in all-oxide varactors[C]//2020 IEEE/MTT-S International Microwave Symposium (IMS). Los Angeles, CA, USA. IEEE, 2020: 139–142.
- [62] WALK D, SALG P, KIENEMUND D, et al. Characterization and

- modeling of epitaxially grown BST on a conducting oxide electrode[C]//2018 48th European Microwave Conference (EuMC). Madrid, Spain. IEEE, 2018: 563–566.
- [63] LIANG X P, ZHU Y F. Hybrid resonator microstrip line electrically tunable filter[C]//2001 IEEE MTT-S International Microwave Symposium Digest (Cat. No.01CH37157). Phoenix, AZ. IEEE, 2002: 1457–1460.
- [64] XU J, LIANG X P, SHAMSAIFAR K. Full wave analysis and design of RF tunable filters[C]//2001 IEEE MTT-S International Microwave Symposium Digest (Cat. No.01CH37157). Phoenix, AZ. IEEE, 2002: 1449–1452.
- [65] 王文君. 基于 BST 薄膜的可调微波滤波器设计[D]. 成都: 电子科技大学, 2013.
- WANG Wenjun. Design of tunable microwave filter based on BST thin film[D]. Chengdu: University of Electronic Science and Technology of China, 2013.
- [66] 王宏哲. 交替掺杂对  $\text{Ba}_{1-x}\text{Sr}_x\text{TiO}_3$  薄膜介电调谐性能的作用机理及其在滤波器中仿真研究[D]. 南京: 东南大学, 2020.
- WANG Hongzhe. Mechanism of alternating doping on dielectric tuning properties of  $\text{Ba}_{1-x}\text{Sr}_x\text{TiO}_3$  thin films and its simulation in filters[D]. Nanjing: Southeast University, 2020.
- [67] KUYLENTIERN D, ASH E, VOROBIEV A, et al. X-band left handed phase shifter using thin film  $\text{Ba}_{0.25}\text{Sr}_{0.75}\text{TiO}_3$  ferroelectric varactors[C]//2006 European Microwave Conference. Manchester, UK. IEEE, 2007: 847–850.
- [68] SAZEGAR M, ZHENG Y L, MAUNE H, et al. Low-cost phased-array antenna using compact tunable phase shifters based on ferroelectric ceramics[J]. IEEE Trans Microw Theory Tech, 2011, 59(5): 1265–1273.
- [69] MAHMUD A, KALKUR T S, JAMIL A, et al. A 1-GHz active phase shifter with a ferroelectric varactor[J]. IEEE Microw Wirel Compon Lett, 2006, 16(5): 261–263.
- [70] 宁希. 硅基铁电薄膜太赫兹信号移相器研制[D]. 长沙: 国防科学技术大学, 2016.
- NING Xi. Research on silicon integrated ferroelectric thin film phase shifters at tera-hertz[D]. Changsha: National University of Defense Technology, 2016.
- [71] LI R G, JIANG S W, GAO L B, et al. A distributed phase shifter using  $\text{Bi}_{1.5}\text{Zn}_{1.0}\text{Nb}_{1.5}\text{O}_7/\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{TiO}_3$  thin films[J]. Chin Phys Lett, 2013, 30(7): 078503.
- [72] 郑立方, 金杰, 李茜, 等. BST 铁电薄膜移相器应用于天线阵的研究[J]. 南开大学学报(自然科学版), 2020, 53(1): 81–84.
- ZHENG Lifang, JIN Jie, LI Xi, et al. Acta Sci Nat Univ Nankaiensis, 2020, 53(1): 81–84.
- [73] 吴大俊, 戴建明, 陶兴东, 等. 基于 BST 薄膜移相器的可扫描端射阵列天线[P]. CN102593588A. 2012–07–18.
- DAJUN Wu, JIANMING Dai, XINGDONG Tao, et al. Scanning end-fire array antenna based on boundary scan test (BST) film phase shifter (in Chinese). CN102593588A. 2012–07–18.
- [74] VICTOR A, NATH J, GHOSH D, et al. Voltage controlled GaN-on-Si HFET power oscillator using thin-film ferroelectric varactor tuning[C]//2006 European Microwave Conference. Manchester, UK. IEEE, 2007: 87–90.
- [75] KONG C, LI H, JIANG S W, et al. A monolithic AlGaN/GaN HEMT VCO using BST film varactor[C]//2011 IEEE International Symposium on Radio-Frequency Integration Technology. Beijing, China. IEEE, 2012: 197–200.
- [76] 王旭, 李娜, 孙亮, 等. 高温超导/铁电薄膜可调谐微波器件应用研究简介[J]. 真空电子技术, 2012(3): 33–38.
- WANG Xu, LI Na, SUN Liang, et al. Vac Electron, 2012(3): 33–38.

## Research Progress on $\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{TiO}_3$ Ferroelectric Thin Film Materials and Devices for Tunable Microwave Applications

SHEN Dekun<sup>1,2</sup>, YANG Zihan<sup>1,2</sup>, GUO Peiyuan<sup>1</sup>, ZHAO Mengling<sup>1</sup>, GE Jian<sup>1</sup>, DENG Gongxun<sup>1</sup>, WANG Aiji<sup>1</sup>

(1. Key Laboratory of Multiscale Spin Physics, Ministry of Education, Beijing Normal University, Beijing 100865, China)

(2. Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China)

### Extended Abstract

Conventional metal materials affect the development of microwave integrated circuits, while the use of microwave electric materials can achieve the miniaturization and high-performance requirements. With the continuous exploration of modern microwave communication technology, microwave devices will face some opportunities and challenges like multi-frequency, and multi-mode capabilities. Tunable microwave devices are also an essential core of phased array radar and modern mobile technology, with the broad application prospects.

$\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{TiO}_3$  (BST) film material is considered as one of the most materials for tunable microwave devices due to its high dielectric tunability and low dielectric loss with a high figure of merit (FOM). However, BST thin film material still has some problems in applications, such as the synergistic optimization of tunability and dielectric loss, as well as temperature stability. To optimize the performance of films, the dielectric properties are adjusted through the improved preparation processes, annealing modification, controlled composition ratio, and doping modification as well. These optimization measures provide some opportunities for the design and preparation of microwave devices based on the BST films.

To investigate the dielectric properties of BST thin film, high-annealing in the preparation process can repair defects and improve grain growth, while controlling growth atmosphere can optimize the surface roughness and grain boundary characteristics of the film. Selecting appropriate substrates or inserting buffer to control stress can optimize the film

structure and improve the dielectric performance. In addition, the Ba/Sr/Ti molar ratio regulation has a significant impact on the ferro-dielectric properties (*i.e.*, the Curie temperature) of the film. The use of oxide molecular beam epitaxy (MBE) can achieve a better stoichiometric control and a low defect density. Doping regulation can change the lattice parameters and ion interactions of BST films. Some methods such as acceptor doping donor doping, and multicomponent doping are used. For instance, the FOM of La/Fe co-doped  $\text{Ba}_{0.65}\text{Sr}_{0.35}\text{TiO}_3$  films prepared by a solid-phase reaction is increase by 5 times, compared to pure BST. The super lattice structures prepared by alternate doping and the multilayer films prepared by different material combinations indicate better comprehensive dielectric properties.

The BST thin film materials have nonlinear characteristics, in which the dielectric constant changes with the applied electric field, and these dielectric properties play an important role as parameter indicators in microwaveable devices. It is indicated that the oxide bottom electrode is of great significance to improve the performance of BST thin film variable capacitors in high-frequency applications. The BST film capacitors with  $\text{SrMoO}_3$  (SMO) oxide was designed as a bottom electrode instead of conventional precious metal electrode materials, which avoids an acoustic resonance at high frequencies. Using the BST tunable filters instead of conventional filters composed of multiple filters is more in line with the needs of miniaturized and integrated devices in radar and communication fields. However, current research is limited due to the high insertion losses in practical devices, and reducing the insertion losses remains an important issue for BST-based microwave devices. Some phase shifters made using BST films were reported, demonstrating a large phase shift range and a high figure-of-merit, and achieving continuous tunable phase shift capability at different frequency ranges. Film phase shifters are applied in antenna arrays and end-fire arrays, realizing radiation directionality steering and linear beam scanning, thus promoting the development of radar and antenna systems. The power oscillators using BST films and single-chip AlGaIn/GaN high electron mobility transistors voltage controlled oscillator were reported, showing the potential of BST films in the field of microwave oscillators.

**Summary and prospects** The dielectric properties were reduced *via* optimizing film growth conditions. However, some related problems were not solved, *i.e.*, decoupling the physical mechanism of dielectric tunability and dielectric loss, and the optimization of high-frequency film dielectric performance testing and extraction. In terms of microwave devices, more efforts need to be made in microwave device design, simulation, preparation, and testing. In summary, to commercialize ferroelectric thin film-based tunable microwave devices, we need to clarify the physical mechanisms of thin film dielectric properties, optimize the growth conditions preparation processes (*i.e.*, synergistic optimization of dielectric tunability and dielectric loss), and obtain high-quality films, thus laying a foundation for the application prospects of tunable microwave devices.

**Keywords** barium strontium titanate; thin film; dielectric properties; tunable microwave device