

в настоящей работе, может быть распространен на другие срезы кристалла для идентификации доменной структуры как макроскопических, так и микрометровых размеров.

Библиографический список

1. Блистанов, А. А. Кристаллы квантовой и нелинейной оптики / А. А. Блистанов // М.: МИСИС, 2000. – 432 с.
2. Киселев, Д. А. Исследование доменной структуры в монокристаллах LiNbO_3 методом силовой микроскопии пьезоотклика / Д. А. Киселев, А. С. Быков, Р. Н. Жуков, В. В. Антипов, М. Д. Малинкович, Ю. Н. Пархоменко // Кристаллография. – 2012. – Т. 57, № 6. – С. 876.
3. Jungk, T. Contrast mechanisms for the detection of ferroelectric domains with scanning force microscopy / T. Jungk,

A. Hoffmann, E. Soergel // New J. Physics. – 2009. – N 11. – P. 033029.

4. Жуков, Р. Н. Распространение поляризации сегнетоэлектрических зерен в электрически изолированных пленках ниобата лития / Р. Н. Жуков, Д. А. Киселев, М. Д. Малинкович, Ю. Н. Пархоменко, Е. А. Выговская, О. В. Торопова // Изв. вузов. Материалы электрон. техники. – 2011. – № 4. – С. 12.

5. Sorokin, N. G. The regular domain structure in LiNbO_3 and LiTaO_3 / N. G. Sorokin, V. V. Antipov, A. A. Blistanov // Ferroelectrics. – 1995. – V. 167. – P. 267.

6. Antipov, V. V. Formation of bidomain structure in lithium niobate single crystals by electrothermal method / V. V. Antipov, A. S. Bykov, M. D. Malinkovich, Y. N. Parkhomenko // Ferroelectrics. – 2008. – V. 374. – P. 65.

7. Най Дж. Физические свойства кристаллов // Дж. Най – М.: Мир, 1967. – 385 с.

Работа выполнена в рамках проекта «Развитие кооперации российских высших учебных заведений и организаций, реализующих комплексные проекты по созданию высокотехнологичного производства» (госконтракт №13.G36.31.0004) и при финансовой поддержке Минобрнауки России на оборудовании ЦКП «Материаловедение и металлургия» на базе НИТУ «МИСиС».

УДК 535.312:548.7

ПЕРСПЕКТИВНЫЕ МАТЕРИАЛЫ АКУСТОЭЛЕКТРОНИКИ

© 2012 г. Д. В. Рощупкин, Д. В. Иржак, Е. В. Емелин, Р. Р. Фахртдинов, О. А. Бузанов*, С. А. Сахаров*
ФГБУН «Институт проблем технологии микроэлектроники и особо чистых материалов РАН»,
*ОАО «ФОМОС Материалс»

Введение

Развитие современной акустоэлектроники связано с поиском новых перспективных пьезоэлектрических кристаллов, которые обладают хорошими термическими свойствами и имеют высокие значения пьезоэлектрических констант. В последнее десятилетие активно ведется поиск новых пьезоэлектрических материалов из группы лантангаллиевого силиката (лангасита). Кристаллы этой группы обладают точечной группой симметрии 32, как и кристалл пьезокварца SiO_2 , и хорошей термостабильностью [1–4]. Значения коэффициентов электро-механической связи кристаллов этой группы уступают кристаллам LiNbO_3 , но превышают соответствующие значения для кристаллов кварца в несколько раз. Ранее авторами детально были исследованы

акустические свойства кристаллов лангасита $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ (ЛГС) [5–7] и лантангаллиевого танталата (лангатата) $\text{La}_3\text{Ga}_{5,5}\text{Ta}_{0,5}\text{O}_{14}$ (ЛГТ) [8], которые сегодня являются базовыми материалами при создании высокотемпературных датчиков на поверхностных акустических волнах (ПАВ). Следует отметить, что интерес к кристаллам группы ЛГС также связан с отсутствием в этих кристаллах фазовых переходов, вплоть до температуры плавления.

В группе кристаллов ЛГС потенциально могут быть синтезированы более 250 кристаллов. Это не только четырехкомпонентные кристаллы ЛГС и ЛГТ, но и пятикомпонентные кристаллы $\text{La}_3\text{Ga}_{5,5}\text{Ta}_{0,3}\text{Al}_{0,2}\text{O}_{14}$ (ЛГТА) и $\text{Ca}_3\text{TaGa}_3\text{Si}_2\text{O}_{14}$ (КТГС).

Ниже представлены примеры синтеза пятикомпонентного кристалла группы ЛГС методом Чохральского и последующего исследо-

Представлены результаты исследования многокомпонентных пьезоэлектрических кристаллов группы лантангаллиевого силиката (лангасита). Изучены процессы синтеза и структура кристаллов. С использованием методов рентгеновской топографии и дифрактометрии исследованы акустические свойства кристаллов. Продемонстрирована возможность применения этих пьезоэлектрических кристаллов в высокотемпературных сенсорных устройствах на поверхностных акустических волнах.

Ключевые слова: пьезоэлектрические кристаллы, поверхностные акустические волны, объемные акустические волны, рентгеновская топография, рентгеновская дифрактометрия.

вания структурного совершенства и акустических свойств полученных кристаллов на лабораторных и синхротронных источниках рентгеновского излучения с использованием методов высокоразрешающей рентгеновской дифрактометрии и топографии.

Синтез кристаллов группы лантангаллиевого силиката (лангасита)

Температуру плавления кристаллов группы ЛГС в зависимости от состава кристаллов находится в диапазоне 1300—1500 °С. Синтез кристаллов осуществляют методом Чохральского. Исходную шихту для выращивания кристаллов получают методом твердофазного синтеза.

На рис. 1 представлен кристалл ЛГТА, выращенный методом Чохральского с индукционным способом нагрева тигля. В качестве материала тигля был выбран иридий. Тигель имел цилиндрическую форму диаметром, равным высоте тигля. Процесс выращивания кристалла ЛГТА осуществляли в атмосфере чистого аргона, который, к сожалению, не позволяет подавить термическое разложение и испарение оксидов галлия с поверхности расплава. Это приводит к отклонению стехиометрии расплава. Расплавление исходной шихты и рост кристалла проводили в защитной атмосфере аргона с добавлением 0,5 % (об.) кислорода. Затравочный кристалл был ориентирован вдоль кристаллографической оси {11.0}. Скорость вытягивания кристалла из расплава составляла 2 мм/ч при частоте вращения 10—40 об/мин. После окончания процесса роста кристалл был подвергнут высокотемпературному отжигу на воздухе при температуре 1100 °С в течение 42 ч.

Для определения параметров элементарной кристаллической ячейки, как правило, используют метод рентгеновской дифрактометрии и расчет в соответствии с законом Брэгга:

$$2d\sin\Theta_B = n\lambda, \quad (1)$$

где d — межплоскостное расстояние; Θ_B — угол Брэгга для соответствующих отражающих плоскостей; λ — длина волны рентгеновского излучения.

На рис. 2 представлен дифракционный спектр кристалла ЛГТА. На основе измерения угловых положений брэгговских пиков на дифракционном спектре можно легко определить межплоскостные расстояния и параметры элементарной кристаллической ячейки. Учитывая, что кристалл ЛГТА, как уже говорилось выше, обладает пространственной группой симметрии 32 , а элементарная ячейка является гексагональной, получим следующие значения параметров элементарной кристаллической ячейки: $a = b = 0,82764$ нм, $c = 0,52243$ нм.

В процессе синтеза методом Чохральского в кристаллах группы ЛГС формируются ростовые дефекты [9]. Основным дефектом кристаллической

структуры являются полосы роста, природа которых связана с периодической модуляцией состава кристалла.

Следует отметить, что наличие полос роста в кристаллах группы ЛГС не влияет на процесс распространения поверхностных и объемных акустических волн. На рис. 3 представлена рентгеновская топограмма изображения акустически промодули-

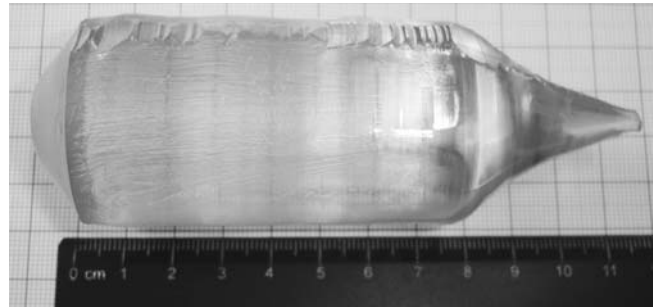


Рис. 1. Кристалл ЛГТА, выращенный методом Чохральского вдоль оси роста {11.0}

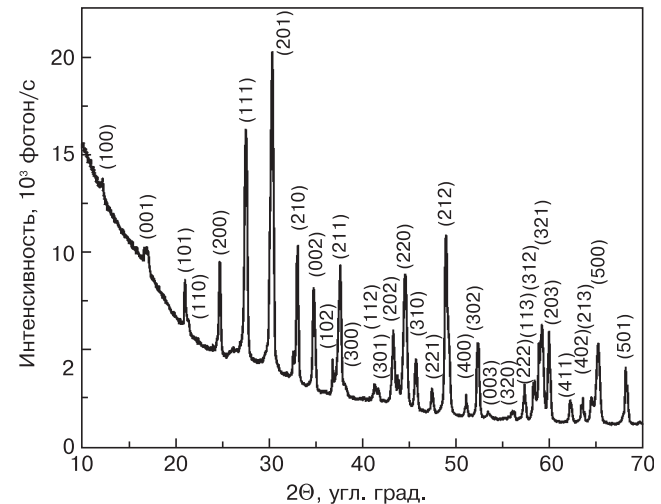


Рис. 2. Дифракционный спектр кристалла ЛГТА

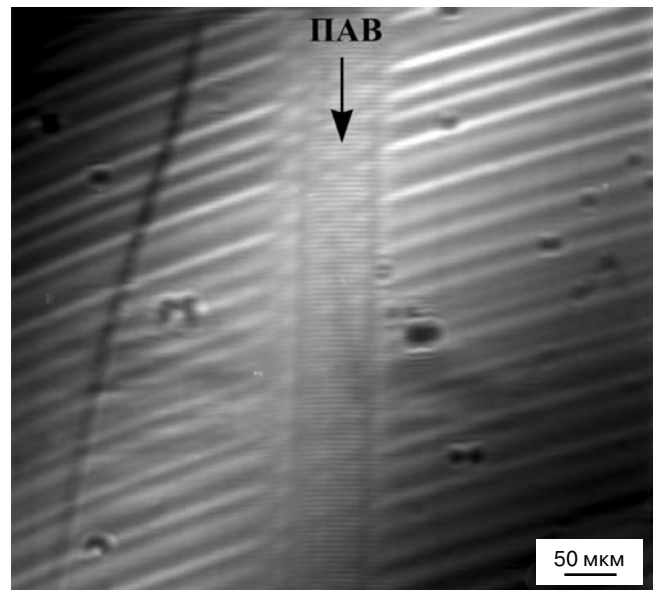


Рис. 3. Рентгеновская топограмма Y-среза кристалла ЛГС, промодулированного ПАВ

рованного Y -среза кристалла ЛГС, полученная на источнике синхротронного излучения ESRF. Изображение было получено на расстоянии 1 м от кристалла. Было использовано отражение от плоскостей (100) при значении угла Брэгга $\Theta_B = 4,175^\circ$. Для экспериментальных исследований на поверхности кристалла для возбуждения ПАВ методом фотолитографии был изготовлен встречно-штыревой преобразователь (ВШП), состоящий из 20 пар электродов с периодом 5 мкм, что соответствует длине волны ПАВ $\Lambda = 10$ мкм. Скорость распространения ПАВ в Y -срезе кристалла ЛГС вдоль направления оси X составляла $V = 2340$ м/с. Эта кристаллографическая ориентация распространения ПАВ в кристалле ЛГС характеризуется отсутствием угла сноса потока акустической энергии, что существенно упрощает проведение исследований. Резонансная частота возбуждения ПАВ с длиной волны $\Lambda = 10$ мкм составляет $f_0 = V/\Lambda = 234$ МГц. Распространение бегущей ПАВ приводит к строго периодической синусоидальной деформации кристаллической решетки. Амплитуда ПАВ может варьироваться от нуля до нескольких десятых нанометра путем изменения высокочастотного входного сигнала на ВШП. На топограмме видны концентрические полосы роста, появление которых связано с процессом выращивания кристалла ЛГС методом Чохральского. В центре можно наблюдать изображение акустического волнового поля ПАВ с прямым изображением акустической волны (можно наблюдать минимумы и максимумы ПАВ). Хорошо видно, что в акустическом пучке отсутствует дифракционная расходимость, которая обычно связана с дифракцией ПАВ на апертуре ВШП. На рентгеновской топограмме (см. рис. 3) хорошо видно, что наличие полос роста в кристалле не влияет на процесс распространения ПАВ и не приводит к искажению акустического волнового фронта. Наличие модуляции дифрагированной рентгеновской интенсивности в акустическом пучке связано с суммированием изображения ПАВ и изображения полос роста в кристалле.

Акустоэлектронные устройства на поверхностных акустических волнах

Отсутствие в кристаллах группы ЛГС фазовых переходов, вплоть до температуры плавления, и относительно высокие пьезоэлектрические константы делают эти кристаллы привлекательными для создания высокотемпературных датчиковых систем на поверхностных и объемных акустических волнах для измерения физических величин (давление, температура, ускорения и др.) при высоких температурах [10]. А относительно высокие значения пьезоэлектрических констант позволяют формировать и беспроводные высокотемпературные датчики. На рис. 4 представлен пример высокотемпературного датчика на ПАВ на основе Y -среза кристалла ЛГС. В качестве датчика температуры был использован

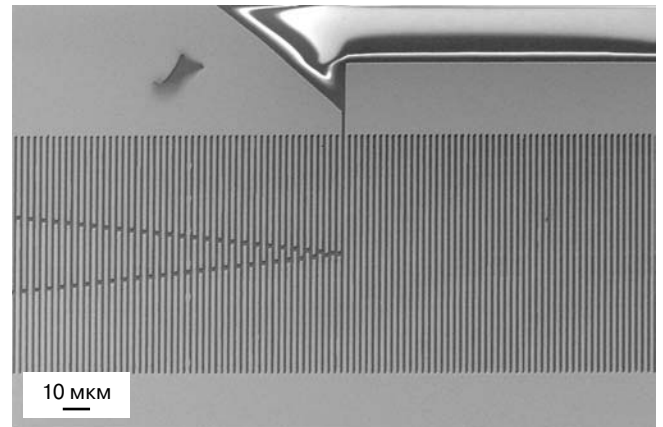


Рис. 4. Структура аподизованного Ir-ВШП высокотемпературного сенсорного устройства на ПАВ

резонатор на ПАВ, состоящий из аподизованного ВШП и двух отражающих решеток. Так как датчик предназначен для работы при температурах выше 600°C , то структура ВШП была изготовлена из Ir. Возможно использование только тугоплавких металлов (Pt, Ir), так как легкоплавкие материалы будут испаряться при температурах вблизи 600°C с поверхности подложки. Для изготовления высокотемпературного датчика на поверхности Y -среза кристалла ЛГС рисунок структуры ПАВ-резонатора был сформирован методом электронно-лучевой литографии. Слой Ir толщиной 100 нм был нанесен на поверхность подложки методом магнетронного напыления. После операции *lift-off* на поверхности подложки остается Ir-ВШП, который при комнатной температуре на резонансной частоте $f = 409$ МГц возбуждает ПАВ с длиной волны $\Lambda = 5,948$ мкм, распространяющуюся в Y -срезе кристалла ЛГС вдоль оси X со скоростью $V = 2432,732$ м/с. Для точности изготовления ВШП с заданной длиной волны $\Lambda = 5,948$ мкм может быть использован только метод электронно-лучевой литографии.

Для изучения процесса возбуждения ПАВ в высокотемпературном датчике (см. рис. 4) был использован метод рентгеновской дифрактометрии, который основан на процессе дифракции рентгеновского излучения на кристаллической решетке, промодулированной ПАВ. Распространение ПАВ в кристалле приводит к строго периодической синусоидальной модуляции кристаллической решетки, что, в свою очередь, обуславливает появление дифракционных сателлитов на кривой качания акустически промодулированного кристалла. Угловая расходимость между дифракционными сателлитами и их амплитуда определяются длиной волны и амплитудой ПАВ соответственно. Угловую расходимость между дифракционными сателлитами можно определить как

$$\delta\Theta_{mRC} = d/\Lambda. \quad (2)$$

На рис. 5 представлена кривая качания Y -среза кристалла ЛГС, промодулированного ПАВ с длиной

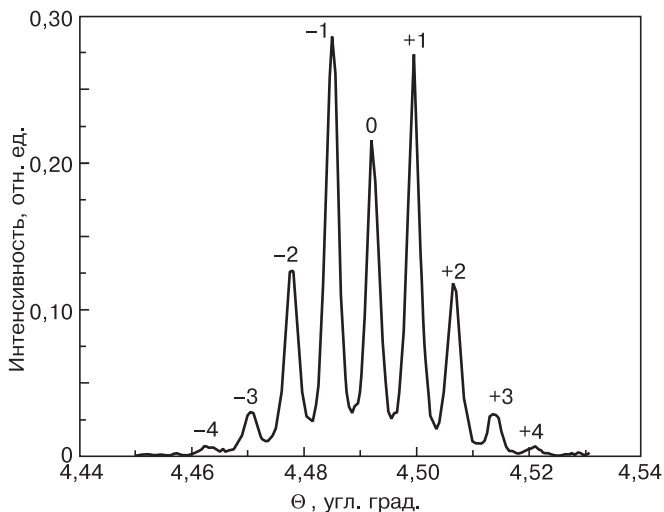


Рис. 5. Кривая качания Y-среза кристалла ЛГС, промодулированного ПАВ с длиной волны $\Lambda = 5,948$ мкм ($f = 409$ МГц)

волны $\Lambda = 5,948$ мкм. Кривая качания была измерена на источнике синхротронного излучения BESSY II при энергии рентгеновского излучения $E = 1$ кэВ, что соответствует длине волны рентгеновского излучения $\lambda = 0,117$ нм. Для измерения кривой качания было использовано отражение от плоскостей (100), параллельных поверхности Y-среза кристалла ЛГС, при значении угла Брэгга $\Theta_B = 4,493^\circ$. Угловая расходимость между дифракционными сателлитами составляет $\delta\Theta_{mRC} = 0,007^\circ$, что соответствует расчетному значению, полученному из выражения (2). Амплитуда ПАВ составляет $h = 0,2$ нм. На кривой качания при данной амплитуде ПАВ можно наблюдать по 4 дифракционных сателлита с двух сторон от нулевого брэгговского пика. Отметим, что интенсивность первых порядков дифракции превышает интенсивность нулевого брэгговского пика. Интенсивности дифракционных сателлитов описываются функциями Бесселя соответствующих порядков [5, 7, 8]. Таким образом, использование метода рентгеновской дифрактометрии позволяет проводить анализ акустических волновых полей в кристаллах, определять длины волн ПАВ и амплитуды акустических колебаний кристаллической решетки.

Заключение

Рассмотрены перспективные материалы акустоэлектроники — кристаллы группы ЛГС. Показано, что основным дефектом кристаллической структуры являются полосы роста. Методом рентгеновской топографии продемонстрировано, что полосы роста не влияют на процесс распространения ПАВ.

Показано, что кристаллы группы ЛГС являются перспективными материалами для высокотемпературных датчиков на ПАВ и объемных акустических волнах и могут успешно функционировать при температурах выше 600°C , практически вплоть до температуры плавления.

Библиографический список

1. **Da Cunda, M. P.** Investigation on recent quartz-like materials for SAW applications / M. P. Da Cunda, S. A. Fagundes // IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control. – 1999. – V. 46. – P. 1583–1594.
2. **Smythe, R. C.** Langasite, langanite, and langatate bulk-wave Y-cut resonators / R. C. Smythe, R. C. Helmbold, G. E. Hague, K. A. Snow // Ibid. – 2000. – V. 47. – P. 355–361.
3. **Fritze, H.** Langasite for high-temperature bulk acoustic wave applications / H. Fritze, H. L. Tuller // Appl. Phys. Lett. – 2001. – V. 78. – P. 976–983.
4. **Naumenko, N.** Optimal cuts of langasite, $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ for SAW devices / N. Naumenko // IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control. – 2001. – V. 48. – P. 530–538.
5. **Roshchupkin, D. V.** X-ray Bragg diffraction from langasite crystal modulated by surface acoustic wave / D. V. Roshchupkin, D. V. Irzhak, R. Tucoulou, O. A. Buzanov // J. Appl. Phys. – 2003. – V. 94. – P. 6692–6692.
6. **Roshchupkin, D. V.** X-ray topography analysis of acoustic wave fields in the SAW-resonators structures / D. V. Roshchupkin, H. D. Roshchupkina, D. V. Irzhak // IEEE Transaction on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control. – 2005. – V. 52. – P. 2081–2087.
7. **Roshchupkin, D.** Diffraction of a focused x-ray beam from $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ crystal modulated by surface acoustic waves / D. Roshchupkin, D. Irzhak, A. Snigirev, I. Snigireva, L. Ortega, A. Sergeev // J. Appl. Phys. – 2011. – V. 110. – P. 124902(7).
8. **Roshchupkin, D. V.** X-ray diffraction analysis of the surface acoustic wave propagation in langatate crystal / D. V. Roshchupkin, A. I. Erko, L. Ortega, D. V. Irzhak // J. Appl. Phys. A. – 2009. – V. 94. – P. 477–485.
9. **Roshchupkin, D. V.** Investigation of structural perfection and acoustic properties of $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ crystals by high resolution x-ray diffraction, topography, and microfluorescence analysis / D. V. Roshchupkin, D. V. Irzhak, E. D. Roshchupkina, O. A. Buzanov // Crystallography Rep. – 2004. – V. 49. – P. S80–S88.
10. **Sakharov, S.** High-temperature sensor based on SAW-modulated langasite crystal / S. Sakharov, D. Roshchupkin, E. Emelin, D. Irzhak, O. Buzanov, A. Zabelin // Proc. Eng. – 2011. – V. 25. – P. 1020–1023.

Исследования по изучению физических свойств кристаллов группы лантангаллиевого силиката (лангасита) выполнены при финансовой поддержке Министерства образования и науки Российской Федерации (ГК 16.513.12.3027).

* * *