

# Abscheidung von Langasit mittels Laserablation zur Herstellung hochtemperaturstabiler piezoelektrischer Sensorschichten

*Li Zhao, René Feder, Holger Fritze*

*TU Clausthal, Institut für Energieforschung und Physikalische Technologien,  
Am Stollen 19 B, 38640 Goslar, Deutschland  
li.zhao.1@tu-clausthal.de*

## Zusammenfassung

Effektive Energiewandlungsprozesse erfordern hohe Temperaturen und damit entsprechend stabile Sensoren. Ein wesentlicher Bestandteil miniaturisierter Hochtemperatur-Sensoren sind piezoelektrische Funktionsschichten. Aus diesem Grund wird die epitaktische Abscheidung von hochtemperaturstabilen, piezoelektrischen Langasitschichten systematisch untersucht. Im Gegensatz zu herkömmlichen Herstellungsverfahren wird Langasit mittels einer Kombination aus gepulster Laserablation und thermischer Behandlung während des Ablationsprozesses epitaktisch auf Langasit (Homoepitaxie) und anderen Substratmaterialien (Heteroepitaxie) abgeschieden. Dabei werden die Qualität der Funktionsschichten und die Temperaturabhängigkeit der elektromechanischen Eigenschaften des Systems aus Schicht und Substrat untersucht. Als Beispiel für einen piezoelektrischen Wandler wird ein monolithischer Dickenerschwinger vorgestellt. Dabei werden Elektroden durch die epitaktische Abscheidung von dotiertem Langasit hergestellt. Die elektrischen und elektromechanischen Eigenschaften des Messelements werden bis zu einer Temperatur von 1000 °C untersucht. Mit diesen Ergebnissen wird die weitere Entwicklung miniaturisierter, piezoelektrischer Bauelemente und Sensoren bei hohen Temperaturen auf der Basis von Langasit vorangetrieben.

**Keywords:** Hochtemperatur-Sensorik, Piezoelektrika, monolithischer Resonator.

## 1. Einleitung und Zielstellung

Piezoelektrische Sensoren und Aktoren für den Einsatz bei hohen Temperaturen (500 – 1000 °C) sind vor allem in der Luft- und Raumfahrt sowie Automobil- und Kraftwerkinindustrie von hoher Bedeutung. Dennoch sind gegenwärtig keine piezoelektrischen Schichten verfügbar, die unter extremen Bedingungen, insbesondere bei Temperaturen oberhalb von 600 °C und in oxidierenden Atmosphären, eingesetzt werden können. Die Ursachen liegen dabei in der mangelnden Oxidationsbeständigkeit und thermischen Stabilität der bisher eingesetzten Schicht- oder Substratmaterialien. Oxidische piezoelektrische Materialien erfüllen grundsätzlich diese Kriterien, so dass deren Abscheidung in Form dünner Schichten auf hochtemperaturstabilen Substraten der Untersuchungsgegenstand ist.

Langasit ( $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ , LGS) ist ein einkristallines piezoelektrisches Material, das meist mittels Czochralski-Züchtung hergestellt wird. Im Vergleich zu Quarz und anderen herkömmli-

chen Piezoelektrika ist Langasit extrem thermisch stabil und praktisch bis zu seinem Schmelzpunkt bei 1470 °C piezoelektrisch anregbar [1]. Aufgrund des hohen elektromechanischen Kopplungsfaktors und der hohen Resonanzgüte lässt sich der Kristall für vielfältige Anwendungen einsetzen.

Daher soll die Frage beantwortet werden, ob Langasit mittels gepulster Laserablation (Pulsed Laser Deposition, PLD) in Kombination mit einer thermischen Behandlung während des Ablationsprozesses epitaktisch abgeschieden werden kann. Die experimentellen Arbeiten lassen sich in die Abscheidung und Charakterisierung homoepitaktischer Schichten, die Abscheidung und Charakterisierung heteroepitaktischer Schichten sowie die Herstellung und Charakterisierung von Demonstratoren unterteilen.

## 2. Ausgangspunkt

### 2.1. Monolithischer Resonator: Messaufbau und Untersuchungsgegenstand

Der nachfolgend beschriebene Demonstrator

nutzt dotierte LGS-Schichten, die eine relativ hohe Leitfähigkeit aufweisen, als monolithische Elektroden (Abb. 1). Derartige LGS-Elektroden ermöglichen eine bessere Hochtemperaturstabilität als konventionelle Platinelektroden, da die Elektroden und der Resonator den gleichen Wärmeausdehnungskoeffizienten aufweisen. An der Außenkante der piezoelektrischen LGS-Scheiben werden kleine Platinkontakte für eine weitere elektrische Verbindung zu den Messinstrumenten aufgebracht. Darüber hinausgehend kann eine Sensorschicht aufgebracht werden und zu einer Frequenzverschiebung durch die Wechselwirkung zwischen der Sensorschicht und der Umgebung führen. Weiterhin sollen heteroepitaktische piezoelektrische Schichten zur Anregung von Biegebalken etc. abgeschieden werden. Dabei werden an den Einsatzbereich angepasste Substrate wie beispielsweise Siliziumkarbid oder Silizium verwendet.

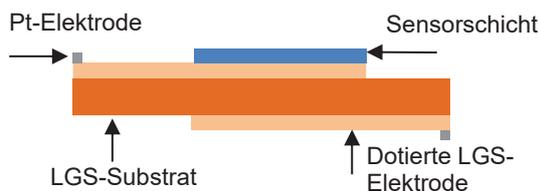


Abb. 1: Monolithischer Resonator bestehend aus einem LGS-Substrat und Elektroden aus dotiertem LGS. Hinzu kommt ggf. eine Sensorschicht, die z. B. Gaszusammensetzungen in Masseänderungen wandelt.

## 2.2. Messprinzip

Ein Resonator kann durch Anlegen einer Wechselspannung zu Scherschwingungen angeregt werden, wobei die Frequenz des Wechselfeldes mit der mechanischen Eigenfrequenz des LGS-Kristalls übereinstimmen muss. Die Eigenfrequenz  $f$  eines solchen Resonators kann durch seine Dicke  $d$  und die Schallgeschwindigkeit der Transversalwelle  $v_{tr}$  berechnet werden.

$$f = \frac{v_{tr}}{2 \cdot d} \quad (1)$$

Wenn die Frequenzverschiebung von der Massenbeladung abhängt, wird der Resonator als Mikrowaage bezeichnet. Wenn die aufgebraute Schicht eine Dicke  $d_s$  und eine Dichte  $\rho_s$  aufweist, so tritt eine Frequenzänderung  $\Delta f$  entsprechend der Sauerbrey-Gleichung (2) auf. Der Wert  $C_f$  bezeichnet dabei die mittlere Massenempfindlichkeit des Resonators:

$$\Delta f = -C_f \rho_s d_s \quad (2)$$

Im Labor wird die Resonanzfrequenz des Dickenschwingers mittels Newerkanalyse bestimmt. Die Resonanzfrequenz kann gleichzeitig einfach mittels eines Frequenzzählers digitalisiert und weiterverarbeitet werden. Darüber hinaus wird der Realteil der Admittanz (Konduktanz) in der Nähe der Resonanzfrequenz durch eine Lorentz-Funktion approximiert [1]. Die Frequenz, bei der sich das Maximum des Konduktanz befindet, wird als Resonanzfrequenz  $f_R$  betrachtet. Abb. 2 zeigt ein Admittanzspektrum des hergestellten monolithischen Resonators bei 300 °C an Luft.

Im Vergleich zu herkömmlichen thermogravimetrischen Anwendungen werden auch neue Sensormessprinzipien ermöglicht. Beispielsweise wird die selektive Bestimmung von H<sub>2</sub> und CO bei hohen Temperaturen durch die Verwendung unterschiedlicher Elektroden- und Sensorschichtgeometrien ermöglicht [2]. Ein weiteres Beispiel ist die Entwicklung eines neuartigen Dünnschichtkalorimeters [3] auf der Basis piezoelektrischer Resonatoren, das die Ermittlung thermodynamischer Eigenschaften dünner Schichten bei hohen Temperaturen erlaubt.

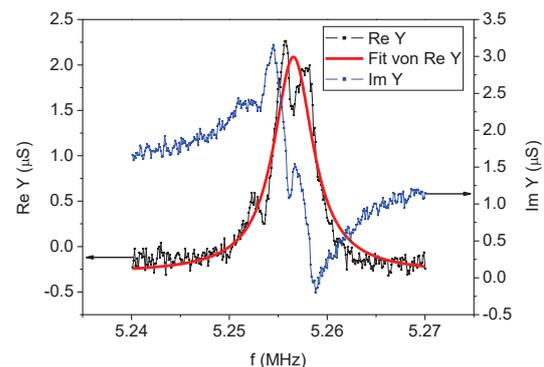


Abb. 2: Real- und Imaginärteil der Admittanz  $Y$  eines piezoelektrischen Resonators bei 300 °C. Um die Resonanzfrequenz zu bestimmen, wird eine Lorentz-Funktion (rote Linie) an den Realteil der Admittanz angefitet.

## 3. Experimentelle Methoden

### 3.1. Abscheidung und Charakterisierung heteroepitaktischer Schichten

PLD-Targets werden nach Mischung von La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-, Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>- und SiO<sub>2</sub>-Pulvern (Reinheit jeweils 99,99 %) gepresst und gesintert. Danach werden undotierte und dotierte LGS-Schichten mittels Laserablation auf einkristalline LGS-Substrate abgeschieden.

Voraussetzung für epitaktisches Wachstum sind zum einen die korrekte Stöchiometrie der schichtbildenden Teilchen und zum anderen

eine hinreichend gute Beweglichkeit der Teilchen, welche maßgeblich von der Teilchenenergie und der Substrattemperatur abhängt. Entsprechend der Ergebnisse aus [4] muss die Substrattemperatur während der Beschichtung im Bereich zwischen 400 °C und 600 °C liegen. Der Einfluss der Substrattemperatur auf die Wachstumsrate der LGS-Schichten wird mittels Profilometrie nachträglich untersucht. Weiterhin wird der Einfluss des Druckes der Atmosphäre während der Abscheidung (Basisdruck der Kammer,  $6 \cdot 10^{-6}$  mbar) und eines erhöhten Sauerstoffpartialdrucks ( $6 \cdot 10^{-4}$  mbar) untersucht. Die Stöchiometrie und die Elementverteilung der abgeschiedenen Schichten werden mittels Sekundär-Neutralteilchen Massenspektrometrie (SNMS) untersucht. Die Signalverhältnisse der einzelnen Elemente werden durch ein LGS-Einkristall-Substrat kalibriert. Die Verhältnisse von La, Ga und Si für drei verschiedene Abscheidungen bei 400 °C, 500 °C und 600 °C werden untersucht. Neben einer Zusammensetzung, die der Stöchiometrie von Langasit entspricht, werden auch Targets mit einem erhöhten Anteil an  $\text{Ga}_2\text{O}_3$  verwendet. Targets mit einem verdoppeltem Anteil an  $\text{Ga}_2\text{O}_3$  (Molverhältnis der binären Oxide von  $\text{La}_2\text{O}_3 : \text{Ga}_2\text{O}_3 : \text{SiO}_2 = 3 : 10 : 2$ ) im Vergleich zur LGS-Stöchiometrie ( $3 : 5 : 2$ ) werden bei der folgenden Diskussion als L(2G)S-Target bezeichnet. Das Target ohne zusätzliches  $\text{Ga}_2\text{O}_3$  wird als LGS-Target benannt. Zur Bestimmung der strukturellen Eigenschaften der abgeschiedenen LGS-Schichten werden Ergebnisse der Röntgen-Diffraktometrie (XRD) an den Proben diskutiert.

### 3.2. Abscheidung und Charakterisierung heteroepitaktischer Schichten

Für die Abscheidung heteroepitaktischer Schichten werden anfänglich Si-Substrate verwendet. Dabei wird die Laserablation ohne zusätzlichen Sauerstoff unter Variation der Substrattemperatur ausgeführt.

Schichten von den LGS- und L(2G)S-Targets werden bei Substrattemperaturen von 500 °C, 550 °C und 600 °C abgeschieden. XRD-Spektren von den abgeschiedenen Schichten und zum Vergleich eines unbeschichteten Si-Substrats werden aufgenommen.

Die Analyse der Stöchiometrie der abgeschiedenen Schichten auf den Si-Substraten wird mittels SNMS durchgeführt.

### 3.3. Herstellung und Charakterisierung monolithischer Resonatoren

Die dotierte Elektrode muss eine hinreichende Leitfähigkeit besitzen, um den Resonator ausreichend anzuregen. In dieser Arbeit werden Sr-dotierte Elektroden verwendet, die ebenfalls

von einem PLD-Target mit erhöhtem Ga-Anteil abgeschieden werden. Zusätzlich wird La-Oxid partiell durch Sr-Oxid ersetzt, um die gewünschte Sr-Dotierkonzentration zu erzielen. Das Molverhältnis der binären Oxide beträgt  $\text{La}_2\text{O}_3 : \text{SrO} : \text{Ga}_2\text{O}_3 : \text{SiO}_2 = 2 : 2 : 15 : 2$ .

Eine ca. 600 µm dicke Sr-dotierte LGS-Schicht wird bei 600 °C und einem Sauerstoffpartialdruck von  $1 \cdot 10^{-4}$  mbar auf ein hochreines Saphir-Substrat abgeschieden. Die Leitfähigkeit wird mit Hilfe von Impedanzmessungen bei unterschiedlichen Temperaturen und Atmosphären bestimmt.

Wie in Abb. 1 zu sehen, werden Sr-dotierte LGS-Elektroden auf der Oberseite und der Unterseite einer 265 µm dicken LGS-Scheibe bei 400 °C und  $1 \cdot 10^{-4}$  mbar abgeschieden. Danach wird der Resonator im Ofen bei 700 °C für 10 Stunden in Luft geglüht. Zum Schluss werden Pt-Außenelektroden durch Siebdruck aufgebracht. Die elektromechanischen Eigenschaften eines solchen monolithischen Resonators werden bei Temperaturen bis 1000 °C mit Hilfe eines Netzwerkanalysators charakterisiert.

## 4. Ergebnisse und Diskussionen

### 4.1. Homoepitaktische Schichten

Abb. 3 zeigt die Wachstumsgeschwindigkeit von nominellen LGS-Schichten auf LGS-Substraten als Funktion der Substrattemperatur. Eine Abnahme der Wachstumsgeschwindigkeit mit steigender Substrattemperatur tritt auf, was auf die Bildung von flüchtigen Suboxiden, hauptsächlich Gallium(I)-Oxid ( $\text{Ga}_2\text{O}$ ), zurückzuführen ist (siehe auch SIMS-Analyse in Abb. 4).

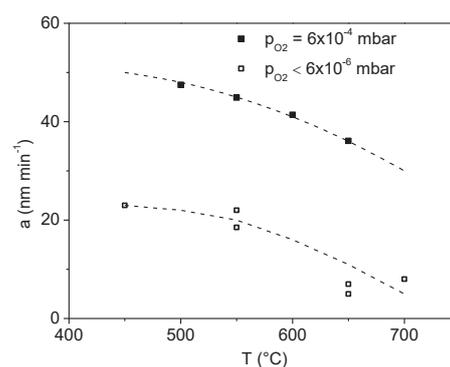


Abb. 3: Wachstumsgeschwindigkeit  $a$  von Schichten (LGS-Target) auf LGS-Substraten als Funktion der Substrattemperatur. Die offenen Symbole stellen die Wachstumsgeschwindigkeit beim Restdruck der Kammer von  $6 \cdot 10^{-6}$  mbar und die geschlossenen Symbole bei einem Sauerstoffpartialdruck von  $6 \cdot 10^{-4}$  mbar dar.

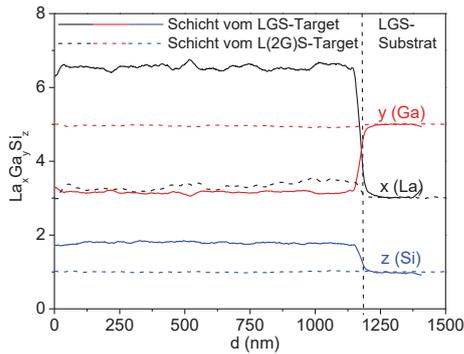


Abb. 4: Verhältnis von La, Ga und Si in zwei abgetrennten Schichten als Funktion der Sputtertiefe  $d$  (SNMS). Die durchgezogenen und gepunkteten Linien stellen die Elementverhältnisse der Schichten vom LGS-Ziel (Restdruck  $6 \cdot 10^{-6}$  mbar) bzw. vom L(2G)S-Ziel ( $p_{O_2} = 4 \cdot 10^{-6}$  mbar) dar.

Oberhalb einer Substrattemperatur von etwa  $500^\circ\text{C}$  beginnt  $\text{Ga}_2\text{O}_3$  im Vakuum zu sublimieren, wodurch die Atomablagerungen verhindert werden und die Wachstumsrate verringert wird. Da die Bildung von  $\text{Ga}_2\text{O}_3$  durch eine Erhöhung des Sauerstoffpartialdrucks ( $p_{O_2}$ ) während der Abscheidung unterdrückt bzw. abgeschwächt werden kann, ermöglicht die Zugabe von Sauerstoff deutlich höhere Wachstumsgeschwindigkeiten.

Ohne die Zugabe von Sauerstoff (Restdruck  $6 \cdot 10^{-6}$  mbar) zeigt die homoepitaktisch abgeschiedene Schicht vom LGS-Ziel ein deutliches Defizit an Gallium (Abb. 4, durchgezogene Linie) im Vergleich zur LGS-Stöchiometrie. Diese Änderung der Zusammensetzung wird an der Grenzfläche zwischen Schicht und Substrat sichtbar. Um die hohen Galliumverluste auszugleichen, wird das L(2G)S-Ziel bei einem erhöhten Sauerstoffpartialdruck ( $6 \cdot 10^{-4}$  mbar) eingesetzt. Es sind kaum Unterschiede der Stöchiometrie (gepunktete Linien) der Schicht vom L(2G)S-Ziel und der des LGS-Substrats erkennbar. Folglich führt die Schichtabscheidung vom überstöchiometrischen Ziel unter erhöhtem Sauerstoffpartialdruck zur angestrebten Stöchiometrie in der LGS-Schicht. In Abb. 5 sind die Diffraktogramme einer LGS-Schicht, die bei einer Substrattemperatur von  $600^\circ\text{C}$  abgeschieden wird, sowie des unbeschichteten LGS-Substrats dargestellt.

Die Schicht vom L(2G)S-Ziel und das einkristalline LGS-Substrat zeigen Reflexe bei  $25,13^\circ$  (020), bei  $38,10^\circ$  (030), bei  $51,59^\circ$  (040) und bei  $65,91^\circ$  (050). Andere Reflexe tauchen weder im Spektrum des Substrats, noch im Spektrum der abgeschiedenen Schicht auf.

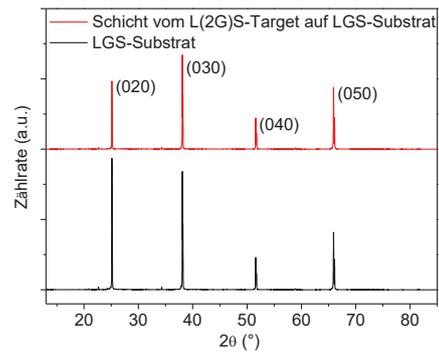


Abb. 5: XRD-Spektrum einer homoepitaktisch aufgewachsenen LGS-Schicht ( $1 \mu\text{m}$ ) und eines unbeschichteten LGS-Substrats. Die Reflexe (0k0) spiegeln die Y-Orientierung des Substrats und der Schicht wider.

## 4.2. Heteroepitaktische Schichten

Abb. 6 zeigt die Röntgen-Diffraktogramme von einem unbeschichteten Si-Substrat und drei Schichten, die bei  $500^\circ\text{C}$ ,  $550^\circ\text{C}$  und  $600^\circ\text{C}$  vom LGS-Ziel abgeschieden werden.

Bei allen abgeschiedenen Schichten vom LGS-Ziel, wird neben dem Si-(004)-Reflex des Substrates der (-121)-Reflex von Langasit bei  $27,13^\circ$  detektiert. Bei einer Temperatur von  $500^\circ\text{C}$  weist die abgeschiedene Schicht nur einen schwach ausgeprägten und stark verbreiterten Reflex auf. Dies spricht für eine erst beginnende Kristallisation, die noch hohe amorphe Anteile aufweist. Bei  $550^\circ\text{C}$  und  $600^\circ\text{C}$  gehen diese amorphen Bereiche verstärkt in den kristallinen Zustand über und der (-121)-Reflex tritt deutlich ausgeprägter in Erscheinung. Außerdem treten bei höheren Temperaturen zusätzliche Reflexe bei  $24,61^\circ$  und  $50,46^\circ$  auf. Diese können dem (110)- bzw. dem (220)-Reflex von  $\text{Ga}_2\text{O}_3$  zugeordnet werden.

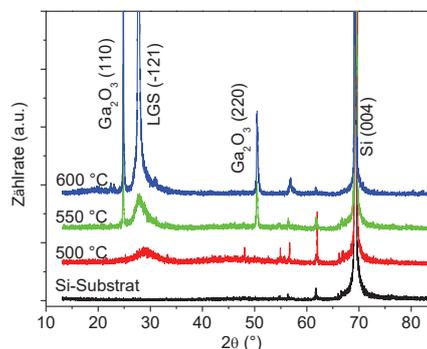


Abb. 6: XRD-Spektren einer Schicht mit Ga-Defizit (LGS-Ziel), die bei verschiedenen Substrattemperaturen auf Si abgeschieden werden. Zur Orientierung sind die wichtigsten Reflexe beschriftet.

Abb. 7 zeigt ein Beispiel für die SNMS-Analyse der bei 600 °C abgeschiedenen Schichten (durchgezogene Linien). Die Zählraten von Ga und La sind als Funktion der Sputterzeit aufgetragen.

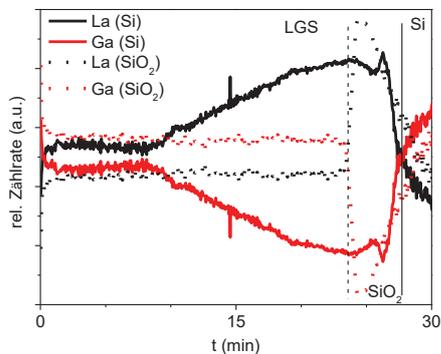


Abb. 7: SNMS-Zählrate von La und Ga als Funktion der Sputterzeit. Beide Schichten sind bei einer Substrattemperatur von 600 °C abgeschieden worden. Die Bezeichnungen (Si) und (SiO<sub>2</sub>) repräsentieren die Zusammensetzung der jeweiligen Substratoberflächen.

Nahe der Oberfläche der LGS-Schicht bis zu einer Sputterzeit von 10 min (entspricht etwa einer Tiefe von 250 nm) ist das Verhältnis von La und Ga nahezu konstant. Danach ist eine deutliche Änderung des Ga- und des La-Anteils erkennbar. Insbesondere nimmt der Ga-Gehalt bis zur Grenzfläche zum Substrat mit zunehmender Sputtertiefe ab. Der Gradient wird bis zur Grenzfläche der Schicht und des Si-Substrates beobachtet. Es wird angenommen, dass eine Oxidationsreaktion an der Oberfläche des Si-Substrats auftritt, da die Substrattemperatur ausreichend hoch ist. Der Sauerstoffverbrauch führt zu einer Zunahme der Bildung von flüchtigen Oxiden (Ga<sub>2</sub>O) und damit zu den Ga-Defekten in der Schicht. Da der Si-Gehalt über die gesamte Dicke (nicht gezeigt) konstant ist, kann der Verdacht, dass Si von dem Substrat in die LGS-Schicht diffundiert, ausgeschlossen werden.

Um die Sauerstoffdiffusion zu unterdrücken, wird eine Sperrschicht (SiO<sub>2</sub>) aufgebracht, indem die Si-Substrate vor der Beschichtung in Luft thermisch voroxidiert werden. Die Schicht vom L(2G)S-Target, die auf voroxidiertem Si abgeschieden ist, weist jedoch nach der Abscheidung keine kristallinen Anteile auf (Abb. 8, rote Kurve). Eine mögliche Ursache dafür ist, dass die LGS-Schicht nur sehr schwer kristallin auf der amorphen SiO<sub>2</sub>-Substratoberfläche aufwachsen kann.

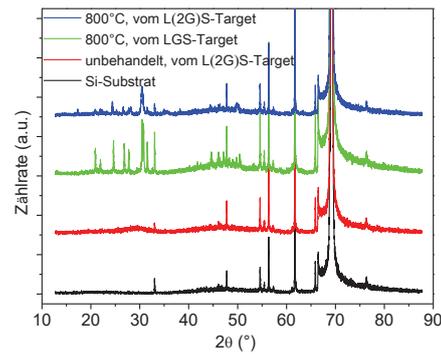


Abb. 8: XRD-Spektren von Schichten, die mit verschiedenen Targets (LGS bzw. L(2G)S), mit oder ohne thermische Nachbehandlung (800 °C) auf voroxidiertem Si abgeschieden sind. Der (021)/(-221)-Reflex von LGS bei 30,7° ist deutlich zu erkennen.

Die blaue Kurve stellt die abgeschiedene Schicht vom L(2G)S-Target mit einer thermischen Nachbehandlung bei einer Temperatur von 800 °C dar. Die grüne Kurve zeigt die abgeschiedene Schicht vom LGS-Target, die ebenfalls bei 800 °C nachbehandelt ist. Bei beiden Schichten dominiert der (021)/(-221)-LGS-Reflex bei 30,70°. Neben diesem Hauptreflex sind noch die LGS-Reflexe (-121) bei 27,93° und (-131) bei 33,46° erkennbar. Die weiteren, kleineren Reflexe können auf La- und Ga-Oxide zurückgeführt werden.

Zur Erzeugung eines kristallinen Anteils in den LGS-Schichten auf voroxidierten Substraten werden neben Änderungen der Schichtstöchiometrie und des Sauerstoffpartialdrucks, zusätzlich andere Abscheidungsparameter wie Pulsrate, Pulsenergie sowie Abstand zwischen Target und Substrat variiert.

### 4.3. Demonstrator

Abb. 9 zeigt die Leitfähigkeiten von LGS für unterschiedliche Dotierungskonzentration an Luft in Abhängigkeit der Temperatur.

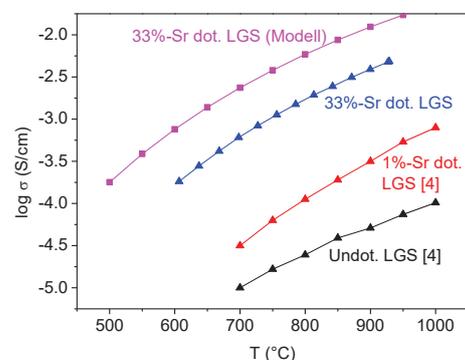


Abb. 9: Leitfähigkeit von Langasit mit/ohne Sr-Dotierung und Leitfähigkeit basierend auf dem Defektmodell aus [5].

Für einen Mischleiter wie LGS tragen ionische und elektronische Anteile zur Leitfähigkeit bei. Beide Anteile hängen von der Temperatur, der Dotierungskonzentration und dem Sauerstoffpartialdruck ab. Für den Sr-dotierten Langasit ist der ionische Anteil dominierend. Hier wird der Ladungstransport durch Sauerstoffleerstellen ermöglicht. Strontium wird als Akzeptor eingebaut und erhöht die Konzentration von Sauerstoffleerstellen deutlich [5].

Eine Vorhersage der Leitfähigkeit eines mit 33 % Strontium (d. h. 1/3 des La-Oxids im Target ersetzt durch Sr-Oxid) dotierten Resonators auf der Basis des Defektmodells in [5] ist mit quadratischen Symbolen dargestellt. Im Vergleich zum undotierten LGS zeigt Sr-dotierter LGS deutlich erhöhte Leitfähigkeiten.

Dotierter, d. h. relativ leitfähiger Langasit, kann zur Realisierung monolithischer Elektroden verwendet werden. Es kann davon ausgegangen werden, dass die gewachsenen monolithischen Elektroden aufgrund des niedrigen Diffusionskoeffizienten von Strontium in Langasit [1] eine sehr hohe Langzeitstabilität zeigen, wenn der Resonator unterhalb von 1000 °C betrieben wird.

Die relativen Änderungen der Resonanzfrequenz eines Resonators mit dotierten LGS-Schichten und einer piezoelektrischen Scheibe in Abhängigkeit der Temperatur sind in Abb. 10 dargestellt (Messung an Luft).

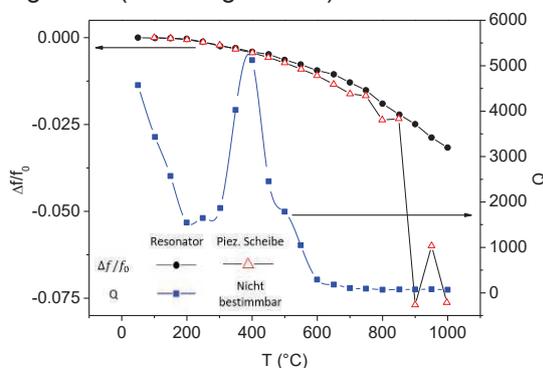


Abb.10: Vergleich der Resonanzfrequenzen eines Resonators mit Sr-dotierten Bereichen als monolithische Elektroden mit einer Referenz ohne dotierte Bereiche in Abhängigkeit von der Temperatur. Weiterhin ist der Gütefaktor  $Q$  des monolithischen Resonators dargestellt.  $f_0$  ist die Resonanzfrequenz bei Raumtemperatur,  $\Delta f$  der Unterschied der Resonanzfrequenz  $f_R(T)$  zu  $f_0$ .

Während das Signal der piezoelektrischen Scheibe erwartungsgemäß schwach und ab 700 °C durch starkes Rauschen nur sehr schwer nachverfolgbar und auswertbar ist, zeigt

die Abbildung für den dotierten Resonator Frequenzen, die bis mindestens 1000 °C messbar sind.

Der Gütefaktor des monolithischen Resonators ist gut messbar und weist für  $T \leq 500$  °C Werte oberhalb von 1500 auf. Die Grafik zeigt, dass der Gütefaktor tendenziell abnimmt und in der Nähe von 400 °C einen Peak aufweist. Der Grund dafür ist noch unbekannt. Die Massensensitivität des monolithischen Resonators liegt bei ca. 0,034 cm<sup>2</sup>Hz/ng. Im Fall der piezoelektrischen Platte lässt sich der Gütefaktor nicht bestimmen.

### Schlussfolgerung

Im Rahmen dieser Arbeit wird die Homoepitaxie und Heteroepitaxie von Langasit auf Langasit- und Si-Substraten untersucht. Durch den Einsatz von XRD und SNMS werden Informationen über die chemische Zusammensetzung und die kristallographische Struktur gewonnen. Der Einfluss von Target-Zusammensetzung und Sauerstoffpartialdruck während der Abscheidung auf die Stöchiometrie der abgeschiedenen Schicht ist aufgezeigt. Eine Erhöhung des Sauerstoffpartialdrucks und des Ga-Anteils kompensieren bzw. unterdrücken die Ga-Verluste. Auf diese Weise werden Schichten mit einer korrekten Langasit-Stöchiometrie erfolgreich abgeschieden. Ebenso gelingt es, diese LGS-Schichten kristallin aufzuwachsen zu lassen. Ein monolithischer Dickenschwinger wird erfolgreich vorgestellt und sein Schwingungsverhalten mit dem einer piezoelektrischen Scheibe in Vergleich gesetzt. Der monolithische Resonator weist gute elektrische und elektromechanische Eigenschaften bis zu einer Temperatur von 1000 °C auf. Die Ergebnisse zeigen, dass dieses neu entwickelte Sensorkonzept unter Hochtemperaturbedingungen einsetzbar ist.

### Literaturnachweis

- [1] J. Sauerwald, D. Richter, E. Ansoerge, B. Schmidt und H. Fritze, *Phys. Status Solidi Appl. Mater. Sci.* 208, 390–403 (2011); doi: 10.1002/pssa.201026639
- [2] D. Richter, T. Schneider, S. Doerner, H. Fritze und P. Hauptmann, *TRANSDUCERS EUROSENSORS '07 – 4th Int. Conf. Solid-State Sensors, Actuators Microsystems*, 991–994 (2007); doi: 10.1109/SENSOR.2007.4300299
- [3] H. Wulfmeier, D. Albrecht, S. Ivanov, J. Fischer, S. Ulrich, A. Bund und H. Fritze, *J. Mater. Sci.* 48, 6585–6596 (2013); doi: 10.1007/s10853-013-7455-x
- [4] W. Zhang, J. Wang, Z. Ji, H. Li, Y. Lou und S. Yao, *J. Rare Earths* 28, 420–423 (2010); doi: 10.1016/S1002-0721(09)60125-3
- [5] H. Seh und H. L. Tuller, *J. Electroceramics* 16, 115–125 (2006); doi: 10.1007/s10832-006-4081-x