

05:07:08

## Поляризационный эффект в кристаллах лангасита

© И.А. Андреев

Всероссийский научный центр „Государственный оптический институт им. С.И. Вавилова“,  
199034 Санкт-Петербург, Россия  
e-mail: andi.17@bk.ru

(Поступило в Редакцию 31 января 2005 г. В окончательной редакции 23 мая 2005 г.)

Изменение частоты резонанса пьезоэлектрических резонаторов, вызванное приложенным постоянным электрическим полем, изучено на продольных колебаниях стержней кристалла лангасита  $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$  в интервале температур от 60 до  $+80^\circ\text{C}$ . Для стержней с направлением длины, составляющей угол  $\alpha$  с кристаллографической осью  $[10\bar{1}0]$  в плоскости осей  $[10\bar{1}0]$  и  $[0001]$ , изменение частоты пропорционально напряженности поля и зависит от угла  $\alpha$ . При поле  $\pm 1 \cdot 10^6$  В/м и угле  $+15^\circ$  относительное изменение частоты равно  $\pm 120 \cdot 10^{-6}$ . Показано, что по совокупности физических параметров кристаллы  $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$  являются наиболее эффективным материалом для создания акустоэлектронных устройств, управляемых электрическим полем или работающих на эффекте нелинейного взаимодействия акустических волн.

PACS: 72.20.Jv

### Введение

Влияние постоянного электрического поля на частоту резонансных колебаний или фазовую скорость упругих волн в пьезоэлектрических кристаллах позволяет определить нелинейные свойства кристаллов и используется в различных пьезо- и акустоэлектронных устройствах — резонаторах и линиях задержки с перестройкой параметров, генераторах гармоник, смесителях, фазовращателях, параметрических усилителях и датчиках [1,2].

Приоритет в обнаружении поляризационного эффекта — влияния поля на резонансную частоту пьезоэлектрических кварцевых резонаторов контурных колебаний  $GT$ -среза принадлежит Толману [3]. Хрушка первый исследовал эффект на кварцевых резонаторах продольных колебаний различных ориентаций и пришел к выводу, что эффект нельзя объяснить изменением линейных размеров резонаторов за счет обратного пьезоэффекта и электрострикции, но необходимо учитывать изменение от поля упругих постоянных кристалла за счет нелинейного пьезоэффекта [4].

Поиск новых пьезоэлектрических монокристаллов, сочетающих в себе сильную зависимость упругости от электрического поля, малые акустические потери и слабую зависимость упругости от температуры, является актуальным направлением акусто- и пьезоэлектроники.

К 1986 г. было исследовано более десяти пьезокристаллов [5–11], но ни один кристалл не обладал совокупностью указанных свойств. Кристаллы имели большие акустические потери ( $\text{ADP}$ ,  $\text{KDP}$ ,  $\text{LiIO}_3$ ) или сильную зависимость упругости от температуры ( $\text{LiNbO}_3$ ,  $\text{Cd}_2(\text{MoO}_4)_3$ ,  $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$ ,  $\text{Bi}_{12}\text{GeO}_{20}$ ), либо слабую зависимость упругости от электрического поля ( $\alpha$ -кварц,  $\text{LiTaO}_3$ ).

После обнаружения автором в 1983 г. термостабильных упругих свойств кристалла лангасита  $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$  (ЛГС) [12] и высокой акустической добротности тол-

щинно-сдвиговых резонаторов  $Y$ -срезов лангасита до 100 тыс. [13], в 1986 г. было обнаружено влияние постоянного электрического поля на частоту резонансных продольных колебаний резонаторов  $XY_s/\alpha$ -срезов ЛГС [14,15].

### Интерпретация поляризационного эффекта

При приложении постоянного (поляризующего) поля  $\vec{E}_3$  к возбуждающим электродам сдвиг резонансной частоты механических продольных колебаний пьезоэлектрического резонатора в виде бруска обусловлен изменением размеров образца за счет обратного пьезоэффекта и изменением эффективной упругой податливости за счет нелинейного пьезоэффекта. В системе координат, связанной с ребрами бруска (рис. 1), относительное изменение резонансной частоты  $\Delta f/f$  имеет вид [4]

$$\frac{\Delta f}{f} = \frac{1}{2} \left[ (d'_{322} + d'_{333} - d'_{111}) - \frac{g'_{11113}}{s'_{1111}} \right] \cdot \vec{E}_3, \quad (1)$$

где  $d'_{ijk}$  — пьезомодули,  $s'_{1111}$  — упругая податливость в направлении длины кристалла,  $g'_{11113}$  — коэффициент поляризационной поправки, компонента тензора пятого ранга, симметричного по двум парам индексов и по перестановке пар.

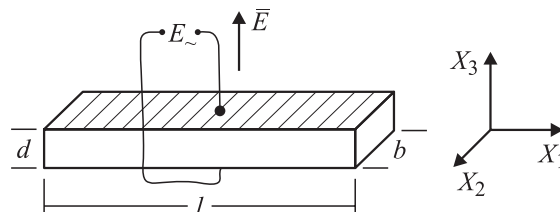


Рис. 1. Установка пьезоэлектрического резонатора в системе координат, связанной с ребрами стержня.

Позже было показано [16], что коэффициенты  $g'$ , представляющие изменения упругой податливости, обусловленные геометрической нелинейностью среды, не подчиняются материальной симметрии компонент тензора пятого ранга. Для получения точной ориентационной зависимости поляризационного эффекта необходимо учитывать не только влияние физической нелинейности, но и геометрическую нелинейность как следствие статически деформированного состояния кристалла.

При термодинамическом рассмотрении поперечного поляризационного эффекта уравнение состояния пьезоэлектрического резонатора в слабом возбуждающем переменном поле как механической системы имеет вид [8]

$$\begin{aligned}\eta'_1 &= s_{11}^{\prime eff} \tau'_1 + d_{31}^{\prime eff} \tilde{E}'_3, \\ \tilde{D}'_3 &= d_{31}^{\prime eff} \tau'_1 + \varepsilon_{33}^{\prime eff} \tilde{E}'_3,\end{aligned}\quad (2)$$

где

$$\begin{aligned}s_{11}^{\prime eff} &= s_{11}^{\prime E} \left( 1 + \frac{d'_{311}}{s_{11}^{\prime E}} \cdot \tilde{E}'_3 \right), \\ d_{31}^{\prime eff} &= d_{31}' \left( 1 + \frac{Q'_{31}}{d'_{31}} \cdot \tilde{E}'_3 \right), \\ \varepsilon_{33}^{\prime eff} &= \varepsilon_{33}' \left( 1 + \frac{\varepsilon'_{333}}{\varepsilon_{33}'} \cdot \tilde{E}'_3 \right)\end{aligned}$$

— эффективная упругая податливость, пьезомодуль и диэлектрическая проницаемость кристалла,  $d'_{311}$ ,  $\varepsilon'_{333}$  и  $Q'_{31}$  — нелинейные пьезоэлектрические, диэлектрические и электрострикционные коэффициенты;  $\eta$ ,  $D$  и  $\tau$  — деформация, индукция и механическое напряжение.

Фазовая скорость  $v$  продольных волн вдоль длины элемента пьезорезонатора может быть записана в виде

$$V^2(\tilde{E}) = 1/\rho s_{11}^{\prime eff}, \quad (3)$$

где плотность кристалла  $\rho = \rho_0[1 - (d'_{31} + d'_{32} + d'_{33})\tilde{E}'_3]$ , а  $\rho_0$  — плотность кристалла при  $E = 0$ . Тогда уравнение движения стержня может быть записано в виде

$$\ddot{U} - V^2(\tilde{E}) \cdot \tilde{U}'_1 = 0, \quad (4)$$

где  $\tilde{U}'_1$  — гармоническая составляющая механического смещения, а  $V^2(\tilde{E}) = V^2[1 + (d'_{31} + d'_{32} + d'_{33} - d'_{311}/s_{11}^{\prime E})\tilde{E}'_3]$ .

Из (4) видно, что частота механического резонанса  $f$  стержня зависит от поля  $\tilde{E}'_3$

$$\begin{aligned}f(\tilde{E}'_3) &= f_0 \left[ 1 + \left( \frac{d'_{32} + d'_{33} - d'_{31}}{2} - \frac{1}{2} \cdot \frac{d'_{311}}{s_{11}^{\prime E}} \right) \tilde{E}'_3 \right] \\ &= f_0 (1 + \gamma \tilde{E}'_3),\end{aligned}\quad (5)$$

где  $\gamma$  — коэффициент электростатического управления частотой резонатора.

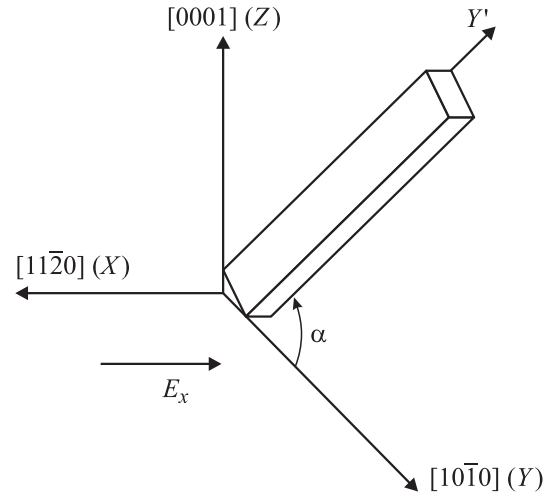


Рис. 2. Форма и кристаллографическая ориентация исследуемых образцов ЛГС.

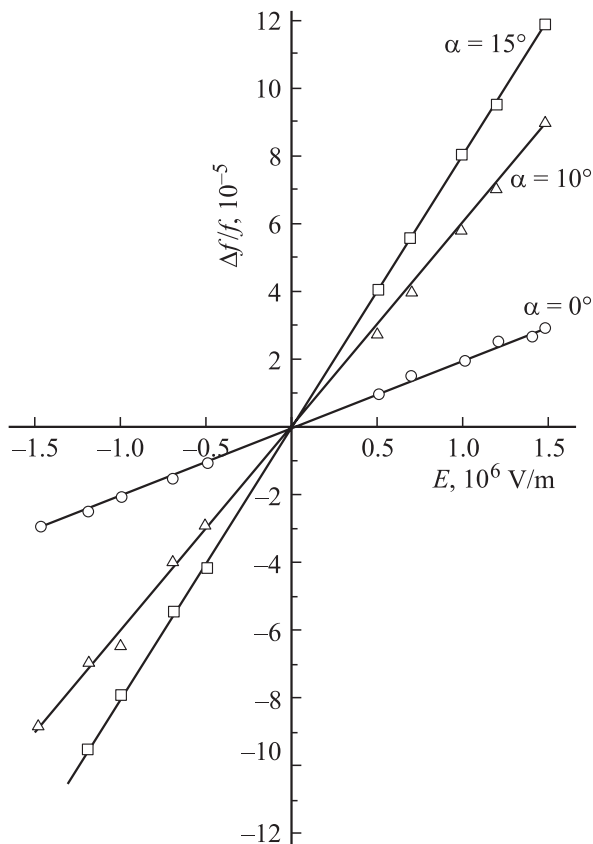
## Эксперимент

В данной работе исследовалась зависимость частоты последовательного резонанса резонаторов ЛГС от внешнего приложенного поля  $E$ . Изучался поперечный поляризационный эффект (т.е. направление приложенного поля совпадало с направлением слабого возбуждающего переменного поля и было перпендикулярно направлению длины пьезоэлектрического резонатора). Исследовались 15 резонаторов ЛГС трех ориентаций: XYs/0, XYs/+10° и XYs/+15°. Резонаторы имели частоту продольных колебаний  $\sim 115$  kHz при размерах 20 mm по оси  $Y'$  (направление  $[10\bar{1}0]$ ); 3.5 mm по оси  $Z'$  (направление  $[0001]$ ) и 0.5 mm по оси  $X$  (направление  $[11\bar{2}0]$ ) (рис. 2). Погрешность геометрии образцов не более  $\pm 10^{-2}$  mm, погрешность ориентации не более 15 угловых минут. При металлизации YZ-граней пластин никелем резонаторы имели механическую добротность не менее  $3 \cdot 10^4$ . Образцы ЛГС включались в схему технологического генератора ТГК-1, работающего в режиме последовательного резонанса, через разделительные конденсаторы по  $4 \mu\text{F}$  для защиты генератора от высоких напряжений до  $\pm 750$  V. Измерения проводились в интервале температур от 60 до  $+80^\circ\text{C}$ . Чувствительность к относительному изменению частоты составляла  $10^{-6}$  при времени измерения 10 с. Мощность переменного возбуждающего сигнала, рассеиваемая на резонаторах, не превышала 0.1 mW.

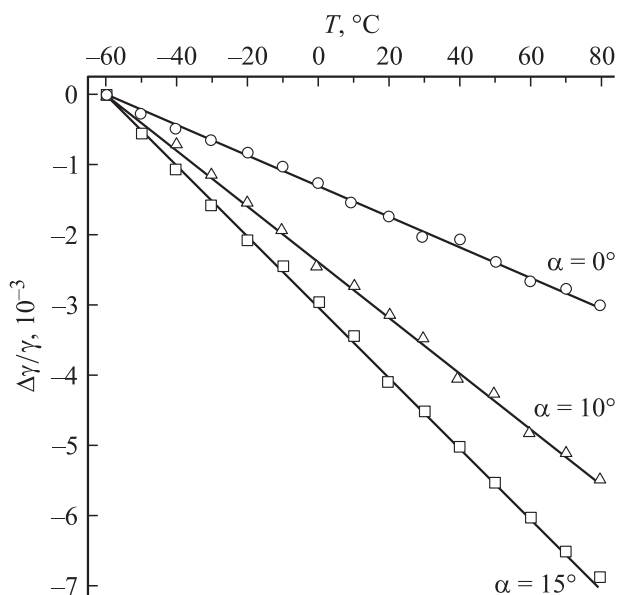
## Результаты

1. Поляризационный эффект в резонаторах ЛГС при температуре  $+20^\circ\text{C}$

Обнаружено, что изменение частоты продольных колебаний в тонких пьезоэлектрических стержнях кристаллов ЛГС является линейной функцией прило-



**Рис. 3.** Линейная зависимость относительного изменения частоты  $\Delta f/f$  в постоянном электрическом поле напряженностью  $E_*$  для трех ориентаций стержней ЛГС, совершающих колебания сжатия-растяжения по длине.



**Рис. 4.** Линейная зависимость относительного изменения коэффициента управления частотой  $\Delta\gamma/\gamma$  в интервале температур для трех ориентаций  $XYs/0$ ,  $XYs/+10^\circ$  и  $XYs/+15^\circ$ .

женного постоянного поля. Эффект достаточно велик и при напряжении на электродах стержней до  $\pm 750$  В (т.е. в электрических полях напряженностью до  $\pm 1.5 \cdot 10^6$  В/м) достигает значения  $\pm 120 \cdot 10^{-6}$  для стержней с ориентацией  $XYs/+15^\circ$  (рис. 3). Ориентационная зависимость поляризационного эффекта продольной моды в стержнях ЛГС выражена значительно — изменение направления распространения продольной моды на  $15^\circ$  вызывает увеличение поперечного поляризационного эффекта  $\gamma = \frac{1}{E} \cdot \frac{\Delta f}{f}$  в 4 раза, от  $\pm 20 \cdot 10^{-12}$  м/В до  $\pm 80 \cdot 10^{-12}$  м/В.

2. Влияние температуры на поляризационный эффект в резонаторах ЛГС

Обнаружено, что изменение температуры резонаторов в интервале от  $-60$  до  $+80^\circ\text{C}$  приводит к изменению величины поляризационного эффекта различного для стержней с разной ориентацией (рис. 4).

Температурная зависимость поляризационного эффекта, определяемая коэффициентом  $\beta = \frac{1}{\Delta T} \cdot \frac{\Delta\gamma}{\gamma}$ , достаточно мала и в зависимости от угла  $\alpha$  принимает значения от  $-2$  до  $-5 \cdot 10^{-5}$ .

Наблюдаемая линейная зависимость поляризационного эффекта в ЛГС от температуры является доказательством того, что в эффект кроме зависимости эффективной упругой податливости от поля вносят вклад и зависимости от поля пьезомодулей и диэлектрической проницаемости. В частности, в стержнях  $XYs/0 - +15^\circ$  температурная зависимость частоты продольной моды не является линейной, а описывается параболой второго порядка с экстремумом при  $10-30^\circ\text{C}$  [15].

Подобное изменение с температурой коэффициента управляемости частотой, пропорционального эффективному нелинейному пьезомодулю

$$d'_{ijk} = 2(s_{11}^E)' \left[ d'_{31} - \frac{1}{f} \cdot \frac{\Delta f}{\Delta E_3} \right]$$

наблюдалось ранее для продольной моды в кристаллах KDP и  $\text{NaNH}_4\text{SeO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$  [18], но температурная зависимость поляризационного эффекта в исследованных кристаллах выражена на порядки сильнее, чем в кристаллах ЛГС.

### Эффективность ЛГС в управляемых и нелинейных устройствах акустоэлектроники

Проведенные исследования позволяют сделать следующие выводы: обнаруженная сильная зависимость упругих свойств ЛГС от поля вместе с малым внутренним трением и наличием кристаллографических ориентаций ЛГС с нулевым ТКЧ для продольных и толщинных мод делает кристаллы ЛГС наиболее перспективными средами для управляемых и нелинейных устройств акустоэлектроники. После работы [14] зависимость упругих свойств ЛГС от поля исследовалась в [17,18]. Авторами

Параметры кристаллов для управляемой и нелинейной акустоэлектроники

Показатель	LiNbO <sub>3</sub>			Bi <sub>12</sub> SiO <sub>20</sub>		La <sub>3</sub> Ga <sub>5</sub> SiO <sub>14</sub>	
	<i>L</i>	<i>L</i>	<i>S</i>	<i>L</i>	<i>S</i>	<i>L</i>	<i>S</i>
Тип волны							
Направление распространения ОАВ	[001]	[110]	[210]	[010]	[100]		
Направление поляризации ОАВ	[001]	[110]	[120]	[010]			
Направление поля <i>E</i>	[100]	[100]	[001]	[100]	[100]		
$\gamma$ , 10 <sup>11</sup> м/В	5	15	14	8	10 <sup>[17]</sup>		
<i>g</i> , С/м <sup>2</sup>	4	16		7	5 <sup>[17]</sup>		
$Q^2$ , 10 <sup>12</sup> м <sup>3</sup> /J	0.7	80		7	12		
ТКЧ, 10 <sup>-6</sup> /°С	-80	-150	-100	0	0		
первого порядка							
Затухание, dB/cm·GHz <sup>2</sup>	04	4	6	0.5	2		
Скорость звука, km/s	7.1	3.3	2.0	5.7	2.4		
Плотность кристалла, $\rho$ (g/cm <sup>3</sup> )	4.7	9.2		5.7			
Диэлектрическая проницаемость, $\epsilon_{11}$	40	36		19			

работы [17] было обнаружено, что скорость сдвиговой моды вдоль направления [100] в ЛГС зависит от поля в большей степени, чем скорости продольных мод, а полученное значение  $\gamma = \frac{1}{\Delta E} \cdot \frac{\Delta V}{V} = 108 \cdot 10^{-12}$  м/В является рекордным для кристаллов с малым затуханием звука.

1. Управляемые полем устройства акустоэлектроники

В акустоэлектронике зависимость упругих свойств от напряженности электрического поля используется при создании резонаторов, фильтров и линий задержки на объемах упругих волнах (ОАВ) и на поверхностных упругих волнах (ПАВ).

Изменение времени задержки управляемой полем линии задержки или изменение фазы фазовращателя на ОАВ или ПАВ определяется соотношением

$$\frac{\Delta t}{t_0} = \frac{\Delta \varphi}{\varphi_0} = -\gamma \cdot \bar{E}.$$

До 1986 г. два кристалла — ниобат лития (LiNbO<sub>3</sub>) и силикат висмута (Bi<sub>12</sub>SiO<sub>20</sub>) рассматривались как среды для создания управляемых полем устройств акустоэлектроники. В фазовращателе на LiNbO<sub>3</sub> с использованием ПАВ частотой 40 МГц при длине кристалла 1 см и напряженности электрического поля  $8 \cdot 10^6$  В/м достигнут фазовый сдвиг  $\Delta\varphi = 16^\circ$ . Оценка параметров фазовращателя на ОАВ частотой 40 МГц с использованием силиката висмута Bi<sub>12</sub>SiO<sub>20</sub> длиной 1 см и поле  $8 \cdot 10^6$  В/м говорит о достижении фазового сдвига  $\Delta\varphi = 80^\circ$  [11].

Поскольку абсолютный и относительный фазовый сдвиг пропорционален рабочей частоте, то для достижения максимально необходимого фазового сдвига 0–180° необходимо увеличивать рабочую частоту и (или) напряженность управляющего поля. Недостатком силиката

висмута является большое затухание звука и значительная отрицательная величина всех температурных коэффициентов первого порядка упругих модулей, поэтому у Bi<sub>12</sub>SiO<sub>20</sub> отсутствуют сечения с нулевыми температурными коэффициентами скорости распространения и времени задержки ОАВ и ПАВ (ТКС =  $-1.5 \cdot 10^{-4}/^\circ\text{C}$ ). Кристаллы ЛГС, имея коэффициент управления  $\gamma$  значительно больший, чем у LiNbO<sub>3</sub> и сравнимый с  $\gamma$  Bi<sub>12</sub>SiO<sub>20</sub>, в силу малого акустического затухания и наличия ориентации с нулевым ТКС являются более предпочтительными для создания управляемых пьезоэлектронных устройств. Основные параметры кристаллов LiNbO<sub>3</sub>, Bi<sub>12</sub>SiO<sub>20</sub> и La<sub>3</sub>Ga<sub>5</sub>SiO<sub>14</sub> приведены в таблице.

2. Кристаллы для нелинейных устройств акустоэлектроники

Эффективность нелинейных взаимодействий акустических волн в акустоэлектронных устройствах определяется нелинейными свойствами пьезоэлектрического кристалла — звукопровода. В соответствии с уравнением движения для волны деформации *S* в пьезоэлектрике во внешнем электрическом поле [4] при переменном поле имеет место параметрическое взаимодействие упругой волны *S* с электрическим полем накачки *E<sub>H</sub>*. При равенстве частоты поля накачки удвоенной частоте упругой волны  $\omega$  наступает параметрический резонанс, вследствие чего в результате взаимодействия генерируется упругая волна *S*<sub>2</sub> той же частоты  $\omega$ , направленная навстречу волне *S*. При определенной мощности сигнала накачки наблюдается усиление волны *S*. Отношение мощностей исходной и обратной волны  $P_2/P_1$  пропорционально эффективности параметрического взаимодействия  $Q^2$  определяемой комбинацией физических параметров кристалла  $Q^2 = g^2/c^2\epsilon$  [19], где *c* — модуль упругости.

В таблице приведена оценка параметров *g* и  $Q$  кристаллов LiNbO<sub>3</sub>, Bi<sub>12</sub>SiO<sub>20</sub> и La<sub>3</sub>Ga<sub>5</sub>SiO<sub>14</sub>. Из данных таблицы видно, что по совокупности таких параметров, как эффективность параметрического взаимодействия, малое поглощение звука и высокая температурная стабильность, кристаллы лангасита являются перспективной средой для реализации нелинейных акустоэлектронных устройств, особенно в диапазоне частот выше 100 МГц.

## Заключение

Проведенные исследования показали несомненную актуальность разработки и исследований пьезоэлектрических кристаллов лангасита. Наиболее интересные и принципиально важные результаты могут быть получены при исследовании нелинейных электромеханических свойств кристаллов, изоморфных лангаситу, но имеющих упорядоченную структуру и поэтому очень малые акустические потери, например кристаллов Ca<sub>3</sub>NbGa<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>14</sub> и Ca<sub>3</sub>TaGa<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>14</sub> [20].

Автор искренне благодарит профессора А.А. Бережного за полезные критические замечания по данной работе, специалиста ОАО „Морион“ Г.И. Надточий за возможность изучения работ [18,20].

## Список литературы

- [1] Андреев И.А., Шапкин В.В. Устройство для измерения напряженности статических и квазистатических полей. // А.С. № 527675. Бюлл. изобр. 1977. № 33.
- [2] Андреев И.А., Шапкин В.В. Управляемая ультразвуковая линия задержки. // А.С. № 716498. 1979.
- [3] Tolman J. // Proc. National conf. frequency stability. VUST A.C. Popova. Prague, 1961. С. 29.
- [4] Hruska K. // Czech J. Phys. 1962. В 12. Р. 338–352.
- [5] Zelenka J. // Czech J. Phys. 1980. В 80. Р. 458–462.
- [6] Zelenka J. // Ferroelectrics. 1982. Vol. 41. Р. 35–38.
- [7] Aleksandrov K.S., Zaitseva M.P., Sysoev A.M. et al. // Ferroelectrics. 1982. Vol. 41. Р. 3–8.
- [8] Chizhikov S.I., Sorokin B.P., Petrakov V.S. // Ferroelectrics. 1982. Vol. 41. Р. 9–25.
- [9] Акустические кристаллы. / Под ред. М.П. Шаскольской. М.: Наука, 1982.
- [10] Лямов В.Е. Поляризационные эффекты и анизотропия взаимодействия акустических волн в кристаллах. М.: МГУ, 1983.
- [11] Зайцева М.П., Кокорин Ю.И., Сандлер Ю.М. Нелинейные электромеханические свойства ацентричных кристаллов. Новосибирск: Наука, 1986.
- [12] Андреев И.А., Дубовик М.Ф. // Письма в ЖТФ. 1984. Т. 10. № 8 С. 487–491.
- [13] Андреев И.А. // ЖТФ. 2004. Т. 74. № 9. С. 1–3.
- [14] Андреев И.А., Дубовик М.Ф. // Матер. 13-ой Всесоюзн. конф. по акустоэлектронике и квантовой акустике. Киев: 1986, часть II. С. 143–144.
- [15] Dubovic M.F., Andreyev I.A., Shmaly Y. // Proc. 1994 IEEE Inter. Frequency Control Symposium. Boston. Vol. 48. Р. 43–47.
- [16] Кокорин Ю.И., Зайцева М.П., Кидяров Б.И. // Кристаллография. 1978. Т. 23. № 1. С. 217–218.
- [17] Aleksandrov K.S., Sorokin B.P., Turchin P.P. // Ferroelectrics Letters. 1992. Vol. 41. N 5–6. Р. 115–116.
- [18] Sorokon B.P., Turchin P.P., Burkov S.I. // Proc. 1996. IEEE Inter. Frequency Control Symposium. Seattle. Vol. 50. Р. 161–169.
- [19] Агишев Б.А., Дерюгин И.А., Леманов В.В., Юшин Н.К. // ФТТ. 1976. Т. 18. № 4. С. 1117–1119.
- [20] Shen Jen, Bill C.C. Teng, Mitch M.S. et al. // Proc. 2002. IEEE Frequency Control. Symposium. Р. 307–310.