

ПОЛУЧЕНИЕ И ИССЛЕДОВАНИЕ ТОНКИХ ПЛЕНОК НИТРИДА АЛЮМИНИЯ-СКАНДИЯ В СОСТАВЕ ПЬЕЗОЭЛЕКТРИЧЕСКИХ СЛОИСТЫХ СТРУКТУР С ПОДЛОЖКАМИ ИЗ СИНТЕТИЧЕСКОГО МОНОКРИСТАЛЛА АЛМАЗА

Н.В. Лупарев, Б.П. Сорокин, В.В. Аксененков

Николай Викторович Лупарев*, Борис Павлович Сорокин, Виктор Владимирович Аксененков
Технологический институт сверхтвердых и новых углеродных материалов, ул. Центральная, 7А,
Троицк, Москва, Российская Федерация, 108840
E-mail: luparev@gmail.com*, bpsorokin1953@yandex.ru, vvaks@rambler.ru

Рассмотрены вопросы технологии магнетронного осаждения в приложении к синтезу пленок твердого раствора замещения нитрида алюминия-скандия в широкой области концентраций скандия. На их основе получены пьезоэлектрические слоистые структуры с подложками из синтетического монокристалла алмаза, пригодные для реализации СВЧ многочастотных резонаторов на объемных акустических волнах вплоть до 20 ГГц. Исследованы физико-химические свойства нитрида алюминия-скандия, включая анализ кристаллической структуры методами рентгеновской дифракции и растровой электронной микроскопии. Для исследования шероховатости применяли методы зондовой микроскопии и оптической профилометрии. Проведен анализ качества полученных пленок на основе данных о полной ширине рефлекса (002) на половине высоты. Показано, что увеличение концентрации Sc приводит к возрастанию полной ширины рефлекса (002) на половине высоты, что может быть связано с возрастанием разупорядочения в структуре переходной фазы от вюрцита к каменной соли ScN. Увеличение концентрации Sc также приводит к систематическому уменьшению среднего размера кристаллитов. Начиная с концентраций скандия выше 25%, заметна тенденция на понижение степени текстурирования пленок AlN. Поэтому фактический пьезоэлектрический отклик будет снижаться, несмотря на увеличение коэффициента электромеханической связи. Тем самым область значений концентрации скандия, при которой достижимо наилучшее сочетание качества кристаллической структуры, текстуры пленок и пьезоэлектрических свойств нитрида алюминия-скандия, лежит ниже 25%. Разработанные критерии совершенства осесимметричной текстуры в приложении к пленкам нитрида алюминия-скандия оказались удобными для анализа изменения качества пленок и дальнейшего совершенствования технологических процессов синтеза.

Ключевые слова: нитрид алюминия-скандия, магнетронное осаждение, кристаллическая структура, текстура пленок нитрида алюминия-скандия, синтетический монокристаллический алмаз

SYNTHESIS AND RESEARCH OF ALUMINUM-SCANDIUM NITRIDE THIN FILMS AS A PART OF PIEZOELECTRIC LAYERED STRUCTURES BASED ON SYNTHETIC DIAMOND SINGLE CRYSTALLINE SUBSTRATES

N.V. Luparev, B.P. Sorokin, V.V. Aksenonkov

Nikolay V. Luparev*, Boris P. Sorokin, Victor V. Aksenonkov
Technological Institute for Superhard and Novel Carbon Materials, Tsentralnaya st., 7a, Troitsk, Moscow, 108840, Russia
E-mail: luparev@gmail.com*, bpsorokin1953@yandex.ru, vvaks@rambler.ru

The issues of magnetron sputtering technology in the application to the synthesis of films of solid solution of substitution of aluminum-scandium nitride in a wide range of scandium concentrations are considered. Based on them, piezoelectric layered structures with substrates made of synthetic diamond single crystal are obtained. Such structures are suitable for implementing microwave high overtone bulk resonators operating on bulk acoustic waves up to 20 GHz. Physi-

cal and chemical properties of aluminum-scandium nitride were studied, including analysis of a crystalline structure by X-ray diffraction and scanning electron microscopy. The methods of probe force microscopy and optical profilometry were used to study the film's roughness. The quality of the films obtained was analyzed by the data on the full width of the reflex (002) at half the maximum. It was shown that an increase in Sc concentration leads to an increase in the full width of the reflex (002) at half the maximum, which may be due to an increase in disordering the structure of the transitive phase from wurzite to ScN rock salt. An increase in Sc concentration also leads to a systematic decrease in the average size of crystallites. Starting with scandium concentrations above 25%, there is a noticeable downward trend in the degree of ASN films texturing. Therefore, the actual piezoelectric response will decrease despite an increase in the electromechanical coupling coefficient. Thus, the area of scandium concentration values at which the best combination of crystal structure quality, film texture and piezoelectric properties of aluminum-scandium nitride is achievable is below 25%. The criteria developed for the perfection of axisymmetric texture in the application of aluminum-scandium nitride films were convenient for analyzing changes in the quality of films and further improving the synthesis processes.

Key words: aluminum-scandium nitride, magnetron deposition, crystal structure, texture of aluminum-scandium nitride films, synthetic single-crystal diamond

Для цитирования:

Лупарев Н.В., Сорокин Б.П., Аксененков В.В. Получение и исследование тонких пленок нитрида алюминия-скандия в составе пьезоэлектрических слоистых структур с подложками из синтетического монокристалла алмаза. *Изв. вузов. Химия и хим. технология.* 2020. Т. 63. Вып. 12. С. 77–84

For citation:

Luparev N.V., Sorokin B.P., Aksenonkov V.V. Synthesis and research of aluminum-scandium nitride thin films as a part of piezoelectric layered structures based on synthetic diamond single crystalline substrates. *Izv. Vyssh. Uchebn. Zaved. Khim. Khim. Tekhnol.* [Russ. J. Chem. & Chem. Tech.]. 2020. V. 63. N 12. P. 77–84

ВВЕДЕНИЕ

Благодаря высокой фазовой скорости акустических волн в нитриде алюминия AlN, его хорошей химической и температурной стабильности, сравнительно простой технологии синтеза, позволяющей выращивать тонкие пленки воспроизводимого качества на различных подложках, нитрид алюминия оказался востребован как пьезоэлектрический материал для микроэлектромеханических систем (МЭМС), ВЧ и СВЧ акустоэлектронных устройств, в которых применяют как объемные (ОАВ), так и поверхностные (ПАВ) акустические волны.

Однако относительно низкие значения коэффициента электромеханической связи (КЭМС) и пьезоэлектрических констант AlN по сравнению с тонкими пленками PZT и ZnO ограничивают его широкое применение в сенсорах, широкополосных фильтрах, МЭМС-устройствах, в том числе для сбора энергии шумов и вибраций. Начиная с 2009 г., в нескольких исследованиях было показано, что добавление Sc для образования нитрида алюминия-скандия $Al_{1-x}Sc_xN$ (ASN) сильно увеличивает пьезоэлектрические коэффициенты соединения ASN вплоть до достижения фазового превращения при $x = 0,43$ от полярной структуры вюрцита к неполярной фазе типа каменной соли

ScN [1, 2]. В качестве метода синтеза применяли совместное магнетронное напыление с двух мишеней Al и Sc. Управление концентрацией скандия в пленке осуществляли с помощью контроля мощности мишеней. Авторы [3] для улучшения технологичности получения нитрида алюминия-скандия предложили использовать композитную мишень из Al со вставками из Sc. Полученные пленки использовали для характеристики упругих, пьезоэлектрических и диэлектрических свойств $Al_{1-x}Sc_xN$ при изменении $x = 0 - 0,7$. Авторы [4] указали на технологические сложности, возникающие в производстве пленок ASN при использовании композитных мишеней из сплава Sc-Al. Так, бинарные Sc-Al мишени трудно изготовить для составов выше 10% Sc. В соответствии с фазовой диаграммой Sc-Al сплава максимальная концентрация Sc в алюминии со стабильной кристаллической структуры находится около 22% Sc. Поэтому для получения однородных пленок большой площади была разработана специальная конструкция магнетрона конической формы для использования мишеней со вставками из разных материалов. В работе [5] сообщалось, что для $Al_{0,57}Sc_{0,43}N$ пьезоэлектрический коэффициент d_{33} увеличивается примерно в 3,5 раза по сравнению с чистым AlN. В основном, ASN обладает всеми преимуществами AlN, упомянутыми выше, за ис-

ключением уменьшения модулей упругости с увеличением концентрации Sc. Из-за сильной электромеханической связи расширяется область применения ASN по сравнению с AlN, особенно в МЭМС-устройствах утилизации энергии шумов и вибраций [6, 7]. Авторы [8] применили пленки ASN для возбуждения МЭМС кантилеверов, применяемых в качестве биосенсоров. Пленки ASN (27% Sc) получали DC магнетронным распылением. Для изготовления кантилеверов заданной формы применяли реактивное ионное травление. В работах [9, 10] было получено напыление пленок ASN с наклонным расположением кристаллитов, что может быть полезным для возбуждения сдвиговых объемных акустических волн. В статье [11] рассмотрено применение пленок $Al_{1-x}Sc_xN$ ($x = 0 - 0,15$) в качестве активного элемента для тонкопленочных ОАВ-резонаторов (Film Bulk Acoustic Resonator, FBAR) с операционными частотами от 2,1 до 2,5 ГГц. Показано, что КЭМС увеличивается на 100% в указанном выше диапазоне концентраций. Пленки ASN получали DC магнетронным распылением из двух мишеней Al (чистота 99,99%) и Sc (99,9%). Работа [12] посвящена теоретическому и экспериментальному исследованию ПАВ-сенсора температуры на основе пьезоэлектрической слоистой структуры ASN/сапфир. Содержание Sc в пленках составляло 10 или 18%. В качестве особенности синтеза методом реактивного магнетронного напыления следует отметить применение композитных мишеней из сплава Sc-Al, в которых содержание Sc составляло 12,5 и 25% соответственно. Авторы [13, 14] исследовали применение AlN и ASN в составе пьезоэлектрической слоистой структуры (ПСС) Al/Al_{1-x}Sc_xN/Mo/алмаз ($x = 0; 0,2; 0,3; 0,34; 0,36$). Пленки ASN получали магнетронным распылением из двух мишеней Al и Sc высокой чистоты. Для пленки Al_{0,8}Sc_{0,2}N было получено значение полной ширины рефлекса (002) на половине высоты (ПШПВ), равное 0,24° [13]. Было также показано [14], что многочастотные ОАВ-резонаторы (High overtone Bulk Acoustic Resonator, HBAR) как с пленками ASN, так и с AlN возбуждались на частотах до 20 ГГц со сравнимыми добротностями. В данном случае к качеству пленок ASN предъявляются повышенные требования. Авторы [15] выполнили теоретический анализ структуры ASN с целью выяснения природы высокого пьезоэлектрического отклика. Изготовление ПАВ-устройств с операционными частотами 200-300 МГц на базе ПСС ASN/Si описано в работе [16]. Пленки ASN (27% Sc) наносили методом

DC реактивного магнетронного напыления с применением композитной мишени из сплава Sc-Al. Указано, что получены пленки превосходного качества, в которых ПШПВ рефлекса (002) составила 0,36°. Поликристаллические (001)-текстурированные тонкие пленки Al_{0,88}Sc_{0,12}N были получены авторами [17] методом DC реактивного импульсного магнетронного распыления с помощью композитной мишени из сплава Sc-Al в соотношении 10,23 ат. % к 89,76 ат. % соответственно. Пленки использовали для изготовления тонкопленочных ОАВ-резонаторов с операционными частотами ~2,5 ГГц. В недавнем исследовании авторы [18] сообщили об обнаружении в ASN сегнетоэлектрических свойств при концентрациях Sc выше 27%.

Целью данной работы была оптимизация метода синтеза и исследование в широкой области концентраций скандия физико-химических свойств пьезоэлектрических пленок нитрида алюминия-скандия, предназначенных для работы в составе СВЧ акустоэлектронных устройств.

МЕТОДИКА СИНТЕЗА И КОНТРОЛЬ КАЧЕСТВА ПЛЕНОК ASN

Для совершенствования метода синтеза и СВЧ исследований были изготовлены тестовые образцы со структурой ASN/Mo/Si, ASN/Si или ASN/стекло, и тестовые устройства – многочастотные резонаторы на объемных акустических волнах (далее – ОАВ-резонаторы) на основе ПСС Me1/ASN/Me2/алмаз. Как правило, на одной алмазной подложке располагались несколько ОАВ-резонаторов, отличающихся площадью активной апертуры и топологией электродных структур. ОАВ-резонатор представлял собой пьезоэлектрическую пленку из ASN, заключенную между двумя металлическими электродами из Mo (нижний контакт) и Al (верхний контакт) на поверхности пластины монокристаллического алмаза (рис. 1). Пластины размерами 4×4 мм² с двусторонней полировкой (отклонение от плоскопараллельности – не более 1 мкм/см) были изготовлены из синтетических монокристаллов алмаза Па типа с низким содержанием азота и других примесей, выращенных в ФГБНУ ТИСНУМ методом температурного градиента при высоком давлении и температуре (High Pressure High Temperature, НТНП) [19].

Изготовление ПСС выполняли методом магнетронного напыления, широко применяемого для нанесения тонких пленок различного функционального назначения, с использованием установки магнетронного распыления AJA Orion 8 производства компании AJA International, при этом

осуществляли как нанесение металлических электродных структур, так и поликристаллических пленок ASN со структурой вюрцита и требуемой преимущественной ориентацией кристаллитов (002). Такая ориентация обеспечивает максимальное значение постоянной пьезоэлектрического эффекта e_{33} , отвечающей за возбуждение продольных акустических волн. Перед каждым напылением выполнялась предварительная чистка используемой мишени от образовавшихся на ее поверхности загрязняющих соединений во время предыдущего процесса путем распыления мишени с закрытой заслонкой в среде чистого аргона до момента стабилизации напряжения разряда.

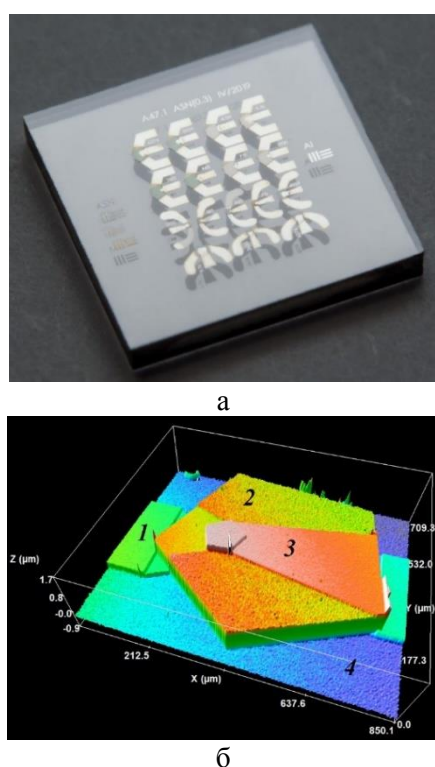


Рис. 1. Многочастотные ОАВ-резонаторы на поверхности алмазной пластины (а) и объемное изображение (б) одного из резонаторов, полученное методом оптической профилометрии (Sensofar S Neox): 1 – нижний контакт (Mo); 2 – пьезоэлектрический слой (ASN); 3 – верхний контакт (Al); 4 – монокристаллическая алмазная подложка
 Fig. 1. HBARs on the surface of a diamond plate (a) and a three-dimensional image (б) of one of the resonators obtained by optical profilometry (Sensofar S Neox): 1 – bottom contact (Mo); 2 – piezoelectric layer (ASN); 3 – top contact (Al); 4 – single-crystalline diamond substrate

Для формирования контактов и пьезоэлектрического слоя заданной топологии использовался метод взрывной фотолитографии (lift-off photolithography) с использованием установки прямой лазерной литографии Heidelberg mPG-101. После нанесения резистивной маски для напыления не-

обходимого слоя тестовые образцы и устройства подвергались плазмохимической очистке в атмосфере кислорода. Очистка убирает следы фоторезиста, не удаленные при химическом проявлении, но не разрушает непроявленную пленку, что позволяет обеспечить адгезию напыляемых пленок.

В качестве нижнего контакта на подложку из кремния для тестового образца и на подложку из синтетического алмаза с ориентацией (100) для тестового устройства напыляли слой молибдена или платины толщиной 120-140 нм. Для синтеза пьезоэлектрических пленок нитрида алюминия-скандия, представляющих собой твердый раствор замещения (толщина ~1 мкм), применяли реактивное магнетронное напыление с использованием двух источников (магнетронов) [2, 20]. Рабочие газы подавались в основную камеру через двухканальную систему с помощью регуляторов расхода газа. При этом плазмообразующий газ аргон подавался непосредственно в рабочий зазор магнетрона, реактивный газ азот – в область подложкодержателя с образцами (рис. 2). Подложкодержатель имел собственную систему вращения. В результате неравномерность толщины напыляемых пленок составляла не более 5% по всей поверхности подложкодержателя. Ранее нами [21] была разработана технология нанесения тонких пленок нитрида алюминия для СВЧ акустоэлектронных устройств. Параметры роста, оптимальные для напыления нитрида алюминия, позволили получить и качественные пленки нитрида алюминия-скандия с преимущественной ориентацией (002). Мощность магнетронного разряда для мишени из скандия выбиралась исходя из требуемой концентрации скандия в пьезоэлектрическом слое.

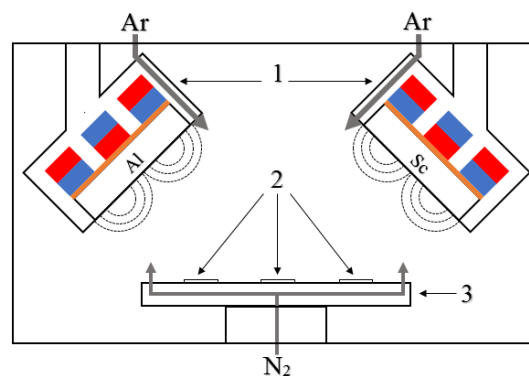


Рис. 2. Схема процесса магнетронного напыления пьезоэлектрических пленок твердого раствора нитрида алюминия-скандия: 1 – магнетроны; 2 – образцы; 3 – подложкодержатель
 Fig. 2. Diagram of the process of magnetron sputtering of piezoelectric films of a solid solution of aluminum-scandium nitride: 1 – magnetrons; 2 – samples; 3 – substrate holder

Контроль кристаллографической ориентации и качества пленок ASN осуществляли посредством ряда методов: для чего использовали методы рентгеновского дифракционного анализа (РДА), атомно-силовой (АСМ) и растровой электронной микроскопии (РЭМ). В качестве примера на рис. 3 показана рентгеновская дифрактограмма тестового образца $\text{Al}_{0,69}\text{Sc}_{0,31}\text{N}/\text{Mo}/\text{Si}$, из которой следует, что имеется преимущественная ориентация (002) кристаллитов пленки ASN, и ПШПВ составляет $0,237^\circ$. Отметим, что, помимо искомого рефлекса (002), имеются значительно более слабые рефлексы (102), (103) и др. Их появление указывает на наличие кристаллитов с наклонным расположением, что нарушает идеальность осесимметричной текстуры. Используя рефлекс (002), определяли значение параметра гексагональной ячейки c , а побочные рефлексы позволяют вычислить величину параметра a . Значения параметров c , a и c/a использовали для оценки концентрации Sc в соответствии с ранее опубликованными РДА данными [1].

На последней стадии изготовления тестовых устройств – многочастотных ОАВ-резонаторов – в качестве верхнего электрода напыляли слой алюминия толщиной 110-120 нм. Контроль толщины металлических и пьезоэлектрических слоев проводили при помощи сканирующего зондового микроскопа Ntegra Prima Basic.

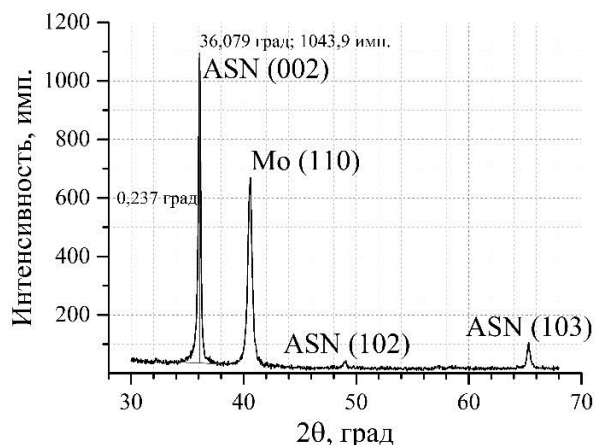


Рис. 3. Рентгеновская дифрактограмма тестового образца $\text{Al}_{0,69}\text{Sc}_{0,31}\text{N}/\text{Mo}/\text{Si}$. Измерения выполнены на установке Empyrean (Panalytic). Толщина пленки ASN 1080 нм
Fig. 3. X-ray data of the $\text{Al}_{0,69}\text{Sc}_{0,31}\text{N}/\text{Mo}/\text{Si}$ test sample. Measurements were performed on the Empyrean (Panalytic) equipment. The ASN film thickness was about 1080 nm

На рис. 4 показаны РЭМ-изображения, полученные на тестовом образце $\text{Al}_{0,67}\text{Sc}_{0,33}\text{N}/\text{Mo}/\text{Si}$ – морфология кристаллитов на поперечном срезе и на поверхности.

В табл. 1 приведены значения полученной концентрации скандия в пьезоэлектрических слоях при различных мощностях магнетронного разряда.

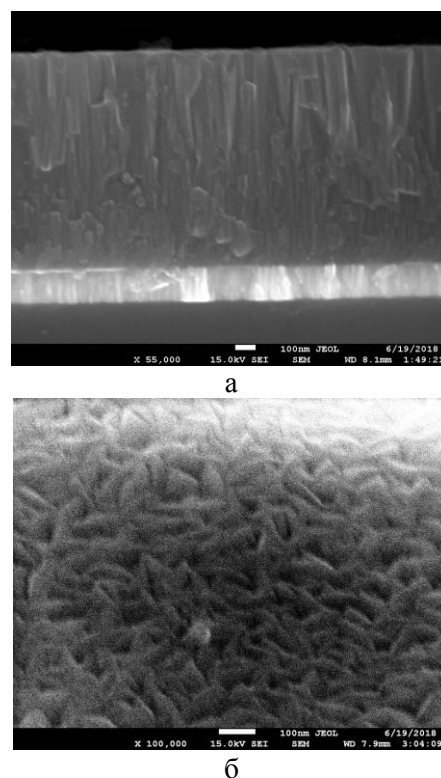


Рис. 4. РЭМ-изображения, полученные на тестовом образце $\text{Al}_{0,67}\text{Sc}_{0,33}\text{N}/\text{Mo}/\text{Si}$ на поперечном срезе (а) и с поверхности (б). Увеличения $\times 55000$ и $\times 100000$ соответственно. Исследования выполнены с помощью растрового электронного микроскопа высокого разрешения JSM#7600F (JEOL). Толщина пленки ASN 993 нм

Fig. 4. SEM images of the test sample $\text{Al}_{0,67}\text{Sc}_{0,33}\text{N}/\text{Mo}/\text{Si}$ diamond obtained on the crosswise cut (a) and on the surface (b). Magnifications are of $\times 55,000$ and $\times 100,000$, respectively. The study was performed using a high-resolution scanning electron microscope JSM#7600F (JEOL). The ASN film thickness was about 993 nm

Таблица 1

Зависимость содержания Sc в пьезоэлектрических слоях от мощности магнетронного разряда
Table 1. Dependence of the Sc content in piezoelectric layers on the power of the magnetron discharge

Мощность магнетронного разряда, Вт		Содержание Sc, %
Al	Sc	
300	0	0
	50	12
	75	20
	100	26
	130	30
	160	34
	200	36
200	220	37,5
	200	41

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Анализируя РДА данные, можно видеть, что, наряду с требуемыми рефлексами (002), в некоторых тестовых образцах имеются также пики (100), (101), (102) и (103). Рефлекс (100) указывает на то, что имеется некоторое количество кристаллитов, оси которых лежат в плоскости (001); пики (101), (102) и (103) свидетельствуют о наклонном по отношению к оси Z положении кристаллитов. Такого рода отклонения от требуемой ориентации существенно зависят от конкретных технологических условий синтеза, в частности, от расстояния между магнетроном и подложкой. Результаты РДА (ПШПВ рефлекса (002), интенсивности, сред-

ний размер зерна кристаллитов и коэффициенты текстуры) пьезоэлектрических пленок ASN на тестовых образцах различных серий представлены в табл. 2. Для оценки отклонения текстуры пленок от идеальной осесимметричной введены коэффициенты текстуры в соответствии с формулой:

$$K_{HKL} = \frac{I_{(002)} - I_{(HKL)}}{I_{(002)}} \quad (1)$$

Расчет среднего значения поперечного размера кристаллита осуществляли по формуле Шеррера $D = 0,9\lambda/B\cos\theta$, где $\lambda = 0,1542$ нм – длина волны характеристического рентгеновского излучения трубки с медным анодом и B – полная ширина данного рефлекса на половине высоты.

Таблица 2

Полная ширина рефлекса (002) на половине высоты, интенсивности рентгеновских рефлексов, средний размер D зерна кристаллитов и коэффициенты текстуры для тестовых образцов ASN с различным содержанием скандия

Table 2. Full width of the reflex (002) at half maximum, XRD reflex intensity, mean crystallite grain size and texture coefficients for ASN test samples with different scandium content

Серия	ПШПВ (002), град.	Конц. Sc, %	D, нм	I_{002} , имп.	I_{100} , имп.	K_{100}	I_{101} , имп.	K_{101}	I_{102} , имп.	K_{102}	I_{103} , имп.	K_{103}
VIII/2017	0,19	0	54,1	236000	-	1,000	208	0,999	-	1,000	-	1,000
II/2019	0,225	12	45,7	6787	-	1,000	629	0,907	-	1,000	-	1,000
I/2019	0,277	24-25	37,1	3470	-	1,000	-	1,000	-	1,000	-	1,000
III/2019	0,253	26	32,8	2700	80	0,97	~120	0,966	90	0,967	90	0,933
II/2020	0,228	27-28	45	53700	185	0,997	3500	0,935	230	0,996	-	-
II/2018	0,23	30	36,1	1217	20	0,984	213	0,825	93	0,924	98	0,919
IV/2019	0,237	31	35,1	1044	-	1,000	-	1,000	50	0,952	90	0,914
IV/2018	0,26	34	32,0	790	14	0,982	212	0,732	95	0,88	65	0,918
I/2020	0,44	34-35	23,3	2500	400	0,84	900	0,64	360	0,856	-	-
V/2018	0,47	36	21,8	564	81	0,86	-	1,000	39	0,93	33	0,94
VII/2018	0,53	37,5	15,7	397	91	0,77	-	1,000	45	0,887	-	-
$K_{100} = \frac{I_{(002)} - I_{(100)}}{I_{(002)}}$		$K_{101} = \frac{I_{(002)} - I_{(101)}}{I_{(002)}}$		$K_{102} = \frac{I_{(002)} - I_{(102)}}{I_{(002)}}$		$K_{103} = \frac{I_{(002)} - I_{(103)}}{I_{(002)}}$						

Если интенсивность побочного рефлекса равна нулю, соответствующий коэффициент будет равен 1, что говорит о совершенной текстуре. Напротив, увеличение интенсивности уменьшает соответствующий коэффициент. Например, если $I(002) = I(100)$, то $K(100) = 0$, что укажет на то, что текстура полностью изменила свой характер, и все оси кристаллитов будут лежать в плоскости подложки. Однако такое теоретически возможное изменение трудно реализовать практически.

При расчете по формуле (1) угол θ считали примерно равным $36,05^\circ$ для отражений (002) во всех исследованных структурах, поскольку его изменение лежало в пределах 0,01-0,03 град.

Анализируя данные табл. 2, следует указать, что наименьшее значение ПШПВ рефлекса (002), равное 0,19 град., имеет место для нитрида алюминия (серия VIII/2017). Отметим, что данная величина близка к известным из литературы данным (0,16 град.) для лучших образцов пленок нитрида алюминия [22]. Однако увеличение концентрации Sc приводит к возрастанию ПШПВ (002) от 0,225 град. (серия II/2019, концентрация Sc 12%) до ~0,5 град. (серия VII/2018, концентрация Sc 37,5%). В случае соединений $AlN - Al_{1-x}Sc_xN$ увеличение ширины пика (002) в картине рентгеновской дифракции может быть связано с возрастанием разупорядочения в структуре переходной фазы от вюрцита к каменной соли ScN вследствие увеличения концентрации Sc.

Увеличение концентрации Sc также приводит к систематическому уменьшению среднего размера кристаллитов от 54 нм (серия VIII/2017, AlN) до ~16 нм (серия VII/2018, Sc 37,5%).

Можно сделать вывод, что, начиная с концентраций скандия выше 25%, заметна тенденция на понижение степени текстурирования пленок ASN. Вероятно, фактический пьезоэлектрический отклик будет снижаться, несмотря на увеличение КЭМС.

Разработанные критерии текстуры в приложении к пленкам нитрида алюминия-скандия оказались удобными для анализа изменения качества пленок и совершенствования технологических процессов синтеза. Оптимизация технологии синтеза дала возможность достижения лучшей воспроизводимости и увеличения выхода годных к применению ASN-пленок с заданными структурными и физическими свойствами в СВЧ композитных акустоэлектронных устройствах и сенсорах.

БЛАГОДАРНОСТИ

Работа была поддержана Российским научным фондом (проект № 16-12-10293-П). Работа частично была выполнена с использованием оборудования ЦКП высокоточных измерительных технологий в области фотоники, созданного на базе ФГУП «ВНИИОФИ» и поддержанного Минобрнауки России (проект RFMEFI59519X0005).

This work was supported by the Russian Science Foundation (project No. 16-12-10293-P). The work was partially carried out using the equipment of the Center for Collective Use of high-precision measuring technologies in the field of photonics, created on the basis of the Federal State Unitary Enterprise VNIIOFI and supported by the Ministry of Education and Science of Russia (project RFMEFI59519X0005).

ЛИТЕРАТУРА REFERENCES

1. **Akiyama M., Kamohara T., Kano K., Teshigahara A., Takeuchi Y., Kawahara N.** Enhancement of piezoelectric response in scandium aluminum nitride alloy thin films prepared by dual reactive cosputtering. *Adv. Mater.* 2009. V. 21. P. 593–596. DOI: 10.1002/adma.200802611.
2. **Akiyama M., Kano K., Teshigahara A.** Influence of growth temperature and scandium concentration on piezoelectric response of scandium aluminum nitride alloy thin films. *Appl. Phys. Lett.* 2009. V. 95. P. 162107. DOI: 10.1063/1.3251072.
3. **Yanagitani T., Suzuki M.** Electromechanical coupling and gigahertz elastic properties of ScAlN films near phase boundary. *Appl. Phys. Lett.* 2014. V. 105. P. 122907. DOI: 10.1063/1.4896262.
4. **Mishin S., Oshmyansky Yu.** Manufacturability of highly doped Aluminum Nitride films. Proc. 2015 IEEE IFCS-ETFT. Apr 13. 2015 – Apr 15. 2015. Denver, CO, United States. P. 777–781.
5. **Akiyama M., Umeda K., Honda A., Nagase T.** Influence of scandium concentration on power generation figure of merit of scandium aluminum nitride thin films. *Appl. Phys. Lett.* 2013. V. 102. P. 021915. DOI: 10.1063/1.4788728.
6. **Elfrink R., Kamel T., Goedbloed M., Matova S., Hohlfeld D., Van Anandel Y., Van Schaijk R.** Vibration energy harvesting with aluminum nitride-based piezoelectric devices. *J. Micromech. Microeng.* 2009. V. 19. P. 094005. DOI: 10.1088/0960-1317/19/9/094005.
7. **Mayrhofer P.M., Rehlendt C., Fischeneder M., Kucera M., Wistrela E., Bittner A., Schmid U.** ScAlN MEMS cantilevers for vibrational energy harvesting purposes. *J. Microelectromechanical Systems.* 2017. V. 26. N 1. P. 102–112. DOI: 10.1109/JMEMS.2016.2614660.
8. **Mayrhofer P.M., Wistrela E., Kucera M., Bittner A., Schmid U.** Fabrication and characterization of ScAlN-based piezoelectric MEMS cantilevers. Proc. 2015 IEEE Transducers Conf. June 21–25. 2015. Anchorage, Alaska, USA. P. 2144 – 2147.
9. **Arakawa K., Yanagitani T., Kano K., Teshigahara A., Akiyama M.** Deposition techniques of c-axis-tilted ScAlN films by conventional RF magnetron sputtering. Proc. IEEE Ultrason. Symp. October 11–14. 2010. San Diego, CA, USA. P. 1050 – 1053.
10. **Yanagitani T., Arakawa K., Kano K., Teshigahara A., Akiyama M.** Giant shear mode electromechanical coupling coefficient k15 in c-axis tilted ScAlN films. Proc. IEEE Ultrason. Symp. October 11–14. 2010. San Diego, CA, USA. P. 2095–2098.
11. **Moreira M., Bjurström J., Katardjev I., Yantchev V.** Aluminum scandium nitride thin-film bulk acoustic resonators for wide band applications. *Vacuum.* 2011. V. 86. P. 23–26. DOI: 10.1016/j.vacuum.2011.03.026.
12. **Bartoli F., Moutaouekkil M., Streque J., Pigeat P., Hage-Ali S., Boulet P., M'Jahed H., Elmazria O., Zhgoon S., Bartoli F., Aubert T., Bou Matar O., Talbi A.** Theoretical and experimental study of ScAlN/Sapphire structure based SAW sensor. Proc. 2017 IEEE Sensors Conf. October 29 – November 1, 2017. Glasgow, Scotland, UK. P. 1–3. DOI: 10.1109/ICSENS.2017.8233938.
13. **Sorokin B.P., Kvashnin G.M., Novoselov A.S., Burkov S.I., Shipilov A.B., Luparev N.V., Aksenkov V.V., Blank V.D.** Application of thin piezoelectric films in diamond-based acoustoelectronic devices. In: *Piezoelectricity – Organic and Inorganic Materials and Applications.* Eds S. G. Vassiliadis, and D. Matsouka. Rijeka, Croatia: IntechOpen. 2018. Chap. 2. P. 15–41. DOI: 10.5772/intechopen.76715.
14. **Сорокин Б.П., Новоселов А.С., Квашнин Г.М., Лупарев Н.В., Асафьев Н.О., Шипилов А.Б., Аксенков В.В.** Разработка и исследование композитных акустических резонаторов со структурой “Al/(Al,Sc)N/Мо/алмаз” с высокой добротностью на СВЧ. *Акуст. журн.* 2019. Т. 65. № 3. С. 325–331. DOI: 10.1134/S0320791919030080.

- Sorokin B.P., Novoselov A.S., Kvashnin G.M., Luparev N.V., Asafiev N.O. Shipilov A.B., Aksenonov V.V. Development and study of composite acoustic resonators with Al/(Al, Sc)N/Mo/diamond structure with a high Q factor in the UHF range. *Acoust. Phys.* 2019. V. 65. N 3. P. 263–268. DOI: 10.1134/S1063771019030072.
15. Tasnádi F., Alling B., Höglund C., Wingqvist G., Birch J., Hultman L., Abrikosov I.A. Origin of the anomalous piezoelectric response in wurtzite $\text{Sc}_x\text{Al}_{1-x}\text{N}$ alloys. *Phys. Rev. Lett.* 2010. V. 104. N 13. P. 137601-1–137601-4. DOI: 10.1103/PhysRevLett.104.137601.
16. Wang W., Mayrhofer P.M., He X., Gillinger M., Ye Zh., Wang X., Bittner A., Schmid U., Luo J.K. High performance AlScN thin film based surface acoustic wave devices with large electromechanical coupling coefficient. *Appl. Phys. Lett.* 2014. V. 105. P. 133502. DOI: 10.1063/1.4896853.
17. Matloub R., Artieda A., Sandu C., Milyutin E., Murali P. Electromechanical properties of Al_{0.9}Sc_{0.1}N thin films evaluated at 2.5 GHz film bulk acoustic resonators. *Appl. Phys. Lett.* 2011. V. 99. P. 092903. DOI: 10.1063/1.3629773.
18. Fichtner S., Wolff N., Lofink F., Kienle L., Wagner B. AlScN: A III-V semiconductor based ferroelectric. *J. Appl. Phys.* 2019. V. 125. P. 114103. DOI: 10.1063/1.5084945.
19. Shvyd'ko Yu., Stoupin S., Blank V., Terentyev S. Near-100% Bragg reflectivity of X-rays. *Nature Photonics.* 2011. V. 5. P. 539-542. DOI: 10.1038/NPHOTON.2011.197.
20. Barth S., Bartzsch H., Gloess D., Frach P., Herzog T., Walter S., Heuer H. Sputter deposition of stress-controlled piezoelectric AlN and AlScN films for ultrasonic and energy harvesting applications. *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control.* 2014. V. 61. P. 1329–1334. DOI: 10.1109/ULTSYM.2014.0190.
21. Сорокин Б.П., Квашнин Г.М., Теличко А.В., Гордеев Г.И., Бурков С.И., Бланк В.Д. Исследования многослойных СВЧ акустических резонаторов на основе слоистой пьезоэлектрической структуры “Me1/AlN/Me2/(100) алмаз”. *Акуст. журн.* 2015. Т. 61. № 4. С. 464–476. DOI: 10.7868/S0320791915030168.
- Sorokin B.P., Kvashnin G.M., Telichko A.V., Gordeev G.I., Burkov S.I., Blank V.D. Study of High overtone Bulk Acoustic Resonators based on the Me1/AlN/Me2/(100) diamond piezoelectric layered structure. *Acoust. Phys.* 2015. V. 61. N 4. P. 422–433. DOI: 10.1134/S106377101503015X.
22. Aubert T., Elmazria O., Assouar B., Bouvot L., Oudic M. Surface acoustic wave devices based on AlN/sapphire structure for high temperature applications. *Appl. Phys. Lett.* 2010. V. 96. P. 203503. DOI: 10.1063/1.3430042.

Поступила в редакцию 07.09.2020
Принята к опубликованию 24.09.2020

Received 07.09.2020
Accepted 24.09.2020