Ca₃Ta(Ga_{1-x}Sc_x)₃Si₂O₁₄圧電単結晶の結晶育成 Crystal Growth of Ca₃Ta(Ga_{1-x}Sc_x)₃Si₂O₁₄ Piezoelectric Single Crystals ¹東北大金研, ²東北大NICHe, ³Piezo Studio, ⁴C&A, ⁵山形大理 ^O(M2)五十嵐悠¹, 横田有為², 大橋雄二^{2,3}, 井上憲司³, 山路晃広¹, 庄子育宏^{1,4}, 鎌田圭^{2,3,4} 黒澤俊介^{2,5}, 吉川彰^{1,2,3,4}

¹IMR Tohoku Univ., ²NICHe Tohoku Univ., ³Piezo Studio, ⁴C&A, ⁵Yamagata Univ.

^O(M2)Yu Igarashi¹, Yuui Yokota², Yuji Ohashi^{1,4}, Kenji Inoue³, Akihiro Yamaji¹, Yasuhiro Shoji^{1,3},

Kei Kamada^{2,3,4}, Shunsuke Kurosawa², Akira Yoshikawa^{1,2,3,4}

E-mail: y-igarashi@imr.tohoku.ac.jp

【緒言】ランガサイト系単結晶は 1980 年代から圧電材料としての研究が行われてきており、2000 年頃にはオーダー型のランガサイト系単結晶が発見された。我々はオーダー型ランガサイト系単 結晶である Ca₃TaGa₃Si₂O₁₄ [CTGS]に注目して研究を行ってきた結果、低消費電力で、高い周波数 温度安定性を持つ小型振動子への応用の可能性を見出した。さらに、CTGS の Ga サイトをイオン 半径の小さな AI で置換した Ca₃Ta(Ga_{1-x}Al_x)₃Si₂O₁₄ [CTGAS]単結晶の育成および圧電特性評価を行 ったところ、AI 置換量に伴って圧電定数 d₁₁および電気機械結合係数 k₁₂が系統的に増加すること を明らかにした[1]。一方、AI 置換量の増加に従って|d₁₄|は系統的に減少しており、d₁₄の影響が大 きい振動モードを利用したデバイスに対して AI 置換は不利に働くことが予想される。そこで本研 究では、|d₁₄|の増加を目的として CTGS の Ga サイトにイオン半径が Ga よりも大きな Sc イオンを 置換した Ca₃Ta(Ga_{1-x}Sc_x)Si₂O₁₄ [CTGSS]単結晶の育成を試み、その圧電特性を評価した。

【実験方法】CaCO₃, Ta₂O₅, β -Ga₂O₃, Sc₂O₃, SiO₂原料粉末(純度 4N 以上)を Ca₃Ta(Ga_{1-x}Sc_x)Si₂O₁₄ (x = 0, 0.1, 0.2, 0.3, 0.4)の組成比で秤量、混合し 1250℃で仮焼を行った。その仮焼粉末を Ir 坩堝内で高 周波誘導加熱により溶融させた後、Ar-2%O₂ 雰囲気下でマイクロ引き下げ(μ -PD)法により単結晶 育成を行った。種結晶には、Ca₃TaGa₃Si₂O₁₄単結晶を用いた。作製した CTGSS 結晶を粉砕し、粉 末 X 線回折(XRD)測定により相同定・格子定数の算出を行った。また、CTGSS のx = 0.1の試料 において、X カット基板を切り出し、インピーダンスアナライザを用いた共振・反共振法によっ て圧電特性を評価した。また、チョクラルスキー(Cz)法によるバルク単結晶の育成も試みた。

【実験結果】 µ-PD 法で育成した CTGSS 結晶 の粉末 XRD 測定の結果から、x=0.1 の置換量 では、得られた試料はランガサイト系構造の 単相を示した。一方、x=0.2,0.3,0.4 ではラン ガサイト系構造の主相に加えて、異相に起因 する回折ピークが確認された。また、ランガ サイト系構造の主相の格子定数は、異相の有 無にかかわらず、a軸長とc軸長がxの増加に 従って系統的に増加しており、CTGSS 相の Ga サイトに Sc イオンが系統的に置換されて いることが示唆された。さらに、CTGSS (x = 0.1)単結晶の圧電定数は CTGS 単結晶と比較 して、 $\varepsilon_{11}^{1}/\varepsilon_{0}$ は増加し、 k_{12}, d_{11} は減少する結 果となった[2]。一方、CTGAS 単結晶では、 AI 置換により k_{12} , d_{11} が増加したことから、 圧電定数の変化は Ga サイトに置換する元素 のイオン半径に起因していることが示唆され た。Cz 法によるバルク単結晶育成とその他の 特性評価結果に関しては当日報告する。



Fig. Powder XRD patterns of $Ca_3Ta(Ga_{1-x}Sc_x)_3Si_2O_{14}$ (x = 0, 0.1, 0.2, 0.3, 0.4) crystals grown by μ -PD method

[1] Y. Ohashi, A. Yoshikawa et al., Jpn. J. Appl. Phys. 55 (2016) 07KB06.

[2] S. Zhang et al., J. Appl. Phys. 105 (2009) 114107.