

ランガサイト系 $\text{Ca}_3\text{TaAl}_3\text{Si}_2\text{O}_{14}$ の相形成と結晶育成

Phase formation and crystal growth of langasite-type $\text{Ca}_3\text{TaAl}_3\text{Si}_2\text{O}_{14}$

1. 東北大 NICHe、2. 東北大金研、3. Piezo Studio、4. 山形大、5. C&A

○横田 有為¹、大橋 雄二^{2,3}、黒澤 俊介^{1,4}、鎌田 圭^{1,3,5}、吉川 彰^{1,2,3,5}

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

○Yuui Yokota¹, Yuji Ohashi^{2,3}, Shunsuke Kurosawa^{1,4}, Kei Kamada^{1,3,5}, Akira Yoshikawa^{1,2,3,5}

E-mail: yokota@imr.tohoku.ac.jp

【緒言】 オーダー型構造を有するランガサイト系圧電結晶材料 $\text{Ca}_3\text{TaGa}_3\text{Si}_2\text{O}_{14}$ (CTGS)は、その高温における高い圧電特性や室温付近の高い周波数温度安定性から、高温センサーや小型振動子としての応用が期待されている。我々のこれまでの研究で、Ga サイトへの Al 置換を行った $\text{Ca}_3\text{Ta}(\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x)_3\text{Si}_2\text{O}_{14}$ (CTGAS)単結晶において、Al 置換量の増加とともに圧電定数 d_{11} や電気機械結合係数 k_{12} が上昇することが明らかとなった^[1,2]。しかし、これまで $0 \leq x \leq 0.75$ の Al 置換量では Czochralski(Cz)法を用いた結晶育成により CTGAS 単結晶の育成に成功したものの、全 Ga サイトを Al で置換した CTAS の単結晶育成では、結晶中に不純物相が含まれてしまい単結晶を得ることができなかった。そこで、本研究では CTAS 相の相形成に着目し、様々な仮焼温度で CTAS の焼結体を作製し、その相分析を行うとともに、その CTAS 焼結体を用いて Cz 法を用いた単結晶育成を試みた。

【実験方法】 出発原料 CaCO_3 , Ta_2O_5 , $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$, SiO_2 粉末を $\text{Ca}_3\text{TaAl}_3\text{Si}_2\text{O}_{14}$ の組成比で秤量、混合し、1100~1350°C の様々な温度で複数回仮焼した CTAS 焼結体を作製した。焼結体の相同定には粉末 X 線回折(XRD)測定を用いた。さらに、直径 50 mm の Ir 坩堝を用いて、一般的な高周波誘導加熱方式の Cz 法で CTAS 単結晶を育成した。種結晶には Y 軸方位 CTGAS 単結晶を用い、0.05~0.2 mm/h で結晶引き上げを行った。育成した結晶は、粉末 XRD 測定によって相同定、格子定数の導出を行うとともに、電子線プローブマイクロアナライザ(EPMA)により組成分析を行った。

【結果】 1300°C および 1350°C で 3 回焼結した CTAS 焼結体の粉末 XRD パターンを図 1 に示す。1300°C で焼結した CTAS 焼結体は、不純物相が主相となっており、わずかな CTAS 相しか確認できなかったのに対して、1350°C で焼結した CTAS 焼結体では、CTAS 相が主相となることが分かった。そこで、CTAS 相が主相となった 1350°C で焼結した CTAS 焼結体を用いて Cz 法で単結晶育成を行ったところ、図 2 のような透明な単結晶が得られた。育成した単結晶の粉末 XRD 測定では、CTAS の単相を示しており、背面反射 Laue 法を用いた Laue 像測定においても明瞭な Laue パターンが得られたことから、仮焼条件を最適化することで不純物のない CTAS 単結晶が育成できたことが明らかとなった。詳細な相形成、単結晶育成および物性評価に関しては当日報告する。

[1] 工藤、横田、吉川他 2016 年 春季第 63 回応用物理学会

[2] Y. Yokota, A. Yoshikawa, et al., *J. Cryst. Growth* (2016) (in press)

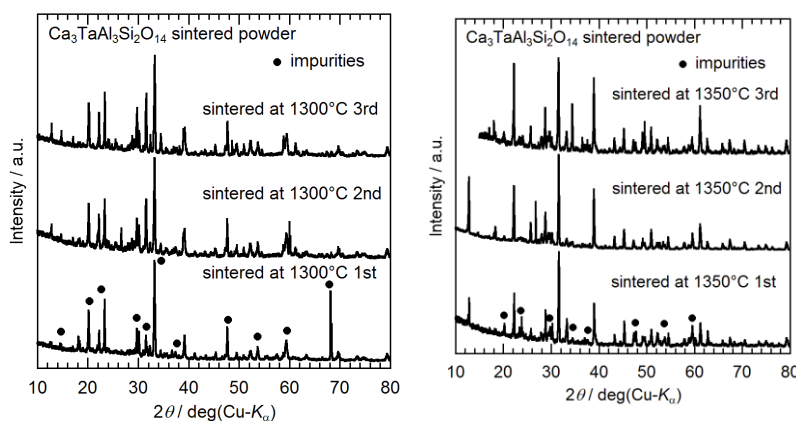


図 1. 1300°C および 1350°C で焼結した CTAS 焼結体。

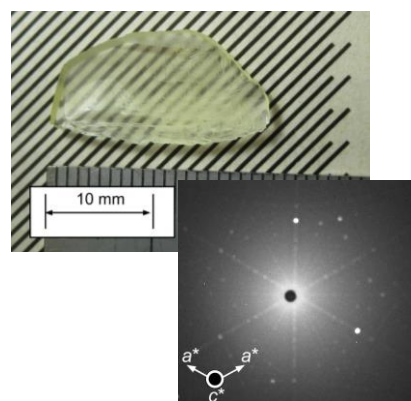


図 2. 1350°C 焼結体を用いて作製した CTAS 単結晶とその Laue 像。