

Ca₃Ta(Ga,Al)₃Si₂O₁₄ 圧電単結晶における結晶構造の Al 置換量依存性

Al Concentration Dependence of Crystal Structure on Ca₃Ta(Ga,Al)₃Si₂O₁₄ Piezoelectric Single Crystals

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

○横田 有為¹、大橋 雄二^{1,2}、井上憲司²、吉野 将生³、山路 晃広³、黒澤 俊介^{1,4}、
鎌田 圭^{1,5}、吉川 彰^{1,3,5}

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

○Yuui Yokota¹, Yuji Ohashi^{1,2}, Kenji Inoue², Masao Yoshino³, Akihiro Yamaji³,

Shunsuke Kurosawa^{1,4}, Kei Kamada^{1,5}, Akira Yoshikawa^{1,3,5}

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

[緒言] 高温における安定した圧電特性や室温付近の高い周波数温度安定性から様々な応用が期待されているランガサイト系圧電結晶材料 Ca₃TaGa₃Si₂O₁₄ (CTGS)において、我々は Ga サイトへの Al 置換を行った Ca₃Ta(Ga_{1-x}Al_x)₃Si₂O₁₄ (CTGAS)単結晶を作製し、材料定数や圧電特性の Al 置換量依存性を明らかにしてきた[1,2]。例えば、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} が系統的に上昇し、誘電率 ϵ_{11} は系統的に減少することが分かった。また、CTGAS 単結晶の格子定数(a 軸長、 c 軸長)は、よりイオン半径が小さい Al³⁺イオンが Ga³⁺サイトを置換することに起因して、Al 置換量の増加とともに系統的に小さくなっており(Fig.1)、この Al 置換による結晶構造の変化が圧電定数や材料定数の変化に何らかの影響をもたらしていることが示唆される。そこで、本研究では CTGAS 単結晶の単結晶構造解析を行い、結晶構造の Al 置換量依存性を調べることで、結晶構造と圧電特性の相関を明らかにすることを目的とした。

[実験方法] チョクラルスキー法を用いて 1 インチ径の Ca₃Ta(Ga_{1-x}Al_x)₃Si₂O₁₄ ($x = 0, 0.25, 0.5, 0.75, 1$)単結晶を育成した。得られた単結晶の相分析は、粉末 X 線回折測定(Bruker Discovery D8)によって行い、得られた粉末 XRD パターンから格子定数を算出した。さらに、イメージングプレートを用いた単結晶の X 線回折測定(Rigaku R-AXIS RAPID II)によって単結晶構造解析を行った。

[結果] CTGAS 単結晶の a 軸長および c 軸長は Al 置換量とともに系統的に減少したが、 a 軸長と c 軸長の比である a/c は、Al 置換量とともに増加する傾向を示した(Fig.1 の inset)。これは、結晶構造の異方性が Al 置換量に従って変化したことを意味している。さらに、Al25%置換した CTGAS 単結晶(Ca₃Ta(Ga_{0.75}Al_{0.25})₃Si₂O₁₄)に関して単結晶構造解析を行った結果を Fig.2 に示した。CTGS 単結晶において報告されている単結晶構造解析の結果と比較すると、Si、O(1)、O(2)、O(3)サイトの位置が Al 置換によって変化しており、結晶構造異方性の変化はこれらのサイトの変位に起因することが示唆された。詳細な単結晶構造解析の結果と圧電特性との相関に関しては当日報告する。

[1] Y. Yokota, Y. Ohashi, T. Kudo, A. Yoshikawa, *et al.*, *J. Cryst. Growth* 468 (2017) 321.

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

[3] I. H. Jung, A. Yoshikawa, T. Fukuda, K. H. Auh, *J. Alloys. Compd.* 339 (2002) 149.

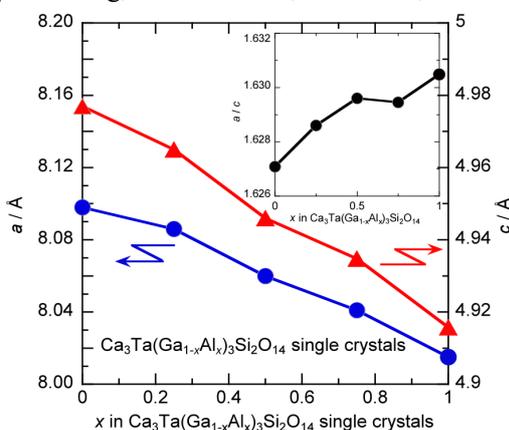


Fig.1. Lattice parameters and anisotropy (inset) of CTGAS single crystals.

Site	Occupancy	x/a	y/b	z/c	
Ca	3e	1	0.4241	0	0
Ta	1a	1	0	0	0
Si	2d	1	1/3	2/3	0.5485
Ga,Al	3f	0.73, 0.27	0.7453	0	0.5
O(1)	2d	1	1/3	2/3	0.2272
O(2)	6g	1	0.4756	0.3195	0.3150
O(3)	6g	1	0.2251	0.1388	0.7631

Fig.2. Results of crystal structure analysis of Ca₃Ta(Ga_{0.75}Al_{0.25})₃Si₂O₁₄ single crystal.