

# Ca<sub>3</sub>B(Ga,Al)<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>14</sub> (B = Nb, Ta) 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 Ca<sub>3</sub>B(Ga,Al)<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>14</sub>

### (B = Nb, Ta) Piezoelectric Single Crystals

東北大金研<sup>1</sup>、東北大 NICHe<sup>2</sup>、C&A<sup>3</sup>

○横田 有為<sup>1</sup>、大橋 雄二<sup>2</sup>、吉野 将生<sup>1</sup>、山路 晃広<sup>1</sup>、花田 貴<sup>1</sup>、豊田 智史<sup>2</sup>、佐藤 浩樹<sup>2</sup>、  
黒澤 俊介<sup>2</sup>、鎌田 圭<sup>2,3</sup>、吉川 彰<sup>1,2,3</sup>

IMR, Tohoku Univ.<sup>1</sup>, NICHe, Tohoku Univ.<sup>2</sup>, C&A<sup>3</sup>

○Yuui Yokota<sup>1</sup>, Yuji Ohashi<sup>2</sup>, Masao Yoshino<sup>1</sup>, Akihiro Yamaji<sup>1</sup>, Takashi Hanada<sup>1</sup>, Satoshi Toyoda<sup>2</sup>, Hiroki Sato<sup>2</sup>, Shunsuke Kurosawa<sup>2</sup>, Kei Kamada<sup>2,3</sup>, Akira Yoshikawa<sup>1,2,3</sup>

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

#### [背景]

オーダー型ランガサイト系圧電結晶材料の Ca<sub>3</sub>NbGa<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>14</sub> (CTGS) および Ca<sub>3</sub>TaGa<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>14</sub> (CTGS) は、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。我々は Ga サイトへの Al 置換を行った Ca<sub>3</sub>Nb(Ga<sub>1-x</sub>Al<sub>x</sub>)<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>14</sub> (CNGAS) および Ca<sub>3</sub>Ta(Ga<sub>1-x</sub>Al<sub>x</sub>)<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>14</sub> (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]。さらに、2018 年の春季講演会では CTGAS の結晶構造に着目し、様々な Al 置換量を有する CTGAS 単結晶において単結晶構造解析を行った[3]。その結果、Al 置換による結晶構造の変化は、各カチオンサイトで大きく異なっていることが明らかとなり、その影響が Al 置換の増加による異方性の増加や誘電率の変化に起因していることが示唆された[4]。本研究では CNGAS 単結晶に関しても同様に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、CTGAS の結果と比較しながら、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 Ca<sub>3</sub>Nb(Ga<sub>1-x</sub>Al<sub>x</sub>)<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>14</sub> (x = 0, 0.25, 0.5) 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・考察]

CNGAS 単結晶の単結晶構造解析の結果、SiO<sub>4</sub> 四面体においては、Al 置換量にかかわらず Si-O(1) と Si-O(2) の結合長の変化は見られなかった (Fig.1)。一方、Si の位置が z 方向に変位したことで、Al 置換量の増加とともに O(2)-Si-O(2) および Si-O(2)-Ga の結合角が増加した。さらに、NbO<sub>6</sub> 八面体では Nb-O(3) 結合長の変化は見られなかったが、(Ga,Al)O<sub>4</sub> 四面体では Al 置換量の増加に伴う (Ga,Al)-O(2) および (Ga,Al)-O(3) 結合長の大幅な減少が確認され (Fig.2)、CNGAS 単結晶においても Al 置換効果は各カチオンサイトで異なっていることが明らかとなった。当日はより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報告する。

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

[2] Y. Ohashi, Y. Yokota, A. Yoshikawa, et al., *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control* 63 (2016) 1575

[3] 横田他、第 65 回応用物理学会春季学術講演会 17a-B301-2 (2018)

[4] Y. Yokota, A. Yoshikawa, et al., *J. Solid State Chem.* 277 (2019) 195

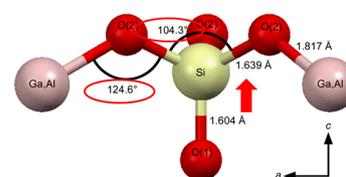


Fig. 1 SiO<sub>4</sub> tetrahedron in Ca<sub>3</sub>Nb(Ga<sub>0.5</sub>Al<sub>0.5</sub>)<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>14</sub> (x = 0.5) single crystal.

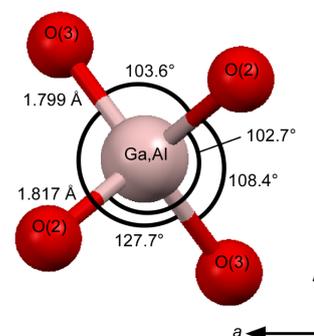


Fig. 2 (Ga,Al)O<sub>4</sub> tetrahedron in Ca<sub>3</sub>Nb(Ga<sub>0.5</sub>Al<sub>0.5</sub>)<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>14</sub> (x = 0.5) single crystal.