## 科学研究費助成事業

研究成果報告書



平成 26 年 6月 16日現在

機関番号: 1 1 3 0 1
研究種目: 若手研究(B)
研究期間: 2011~2013
課題番号: 2 3 7 5 0 2 3 4
研究課題名(和文)マイクロ引き下げ法による形状制御ランガサイト型圧電結晶育成技術の開発
研究課題名(英文)Development of Crystal Growth Technology of Shaped Langasite-type Piezoelectric Crys tals by Micro-Pulling-Down Method
研究代表者
横田 有為(Yuui, Yokota)
東北大学・未来科学技術共同研究センター・准教授
研究者番号:6 0 5 1 7 6 7 1
交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 3,400,000 円、(間接経費) 1,020,000 円

研究成果の概要(和文):自動車の燃焼圧センサ用圧電結晶に用いられるランガサイト型圧電結晶は、高い特性のため に次世代の高温用圧電材料として注目されているが、製造コストが高いという問題がある。そこで、本研究では、マイ クロ引き下げ法を用いた形状制御ランガサイト型圧電結晶の製造技術を確立することで、デバイス形状の単結晶素子を 一工程で作製することを目的とした。形状制御結晶育成用Pt合金坩堝を設計・開発し、それを用いたマイクロ引き下げ 法により、様々なランガサイト型圧電材料の形状制御結晶を作製したところ、円柱状、平板上、チュープ状等の形状制 御結晶の育成に成功した。さらに、それらの結晶性、圧電特性は従来の結晶と同等の性能を示した。

研究成果の概要(英文): Shape-controlled langasite-type piezoelectric single crystals were grown by micropulling-down method and the physical properties of grown crystals were investigated. Columnar, plate and tube-shaped crystals with a-axis and c-axis in growth direction were grown and the diameters of grown colu mnar-shaped crystals were controlled approximately 3 mm from initial to later part. The grown crystals wi thout cracks indicated relatively high crystallinities and a single phase of langasite-type structure in t he powder XRD patterns. The piezoelectric constant d11 of CNGS crystal indicated 3.98 pC/N which was well accorded with the previous report.

研究分野:化学

科研費の分科・細目: 材料化学・無機工業材料

キーワード: 結晶・多結晶材料

1.研究開始当初の背景

地球温暖化への対策が世界中で講じられ ている中、自動車業界ではハイブリッド車や 電気自動車の開発を中心としたさらなる燃 費の向上、エミッション(CO,やNO,)排出量の 低減が精力的に試みられている。これらの取 り組みの中で、ガソリンのエンジン部におい てはその燃焼効率を上げるためにエンジン の燃焼室内の圧力を直接検知して空燃比を 希薄燃焼限界近傍にフィードバック制御す る希薄燃焼(リーンバーン)技術の開発が行 われている。この希薄燃焼技術にはエンジン 部温度の正確なセンシングが必要となるが、 現在では酸素センサによる間接的な検出が 行われており、燃焼の精密な制御のためには 無冷却で 400 以上の高温で長期間安定に作 動する直接検出型の燃焼圧センサの開発が 要求されている。現状圧電材料として最も多 く生産されているやチタン酸ジルコン酸鉛 (PZT)を用いた圧電センサでは耐熱温度(約 300)を超えてしまうため冷却なしでは使 用できない。また、チタン酸ジルコン酸鉛 (PZT)は鉛含有複合化合物であるため、機械 的な応力の繰り返しによる圧電性の低下や 有害元素である鉛を含むなどいった問題が ある。

そのような中、申請者所属研究室において 1350~1500 の融点を有し、<u>融点までキュリ</u> <u>ー温度を持たない、つまり高温まで圧電特性</u> <u>を維持することが可能な非鉛系ランガサイ</u> <u>ト型圧電結晶</u>を開発した。このランガサイト 型圧電結晶は、A<sub>3</sub>BC<sub>3</sub>D<sub>2</sub>O<sub>14</sub> の化学式で表される ランガサイト型構造を有する物質群からな り、代表的な物質として La<sub>3</sub>Ga<sub>5</sub>SiO<sub>14</sub> (LGS), La<sub>3</sub>Nb<sub>0.5</sub>Ga<sub>5.5</sub>O<sub>14</sub> (LNG), La<sub>3</sub>Ta<sub>0.5</sub>Ga<sub>5.5</sub>O<sub>14</sub> (LTG), Ca<sub>3</sub>NbGa<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>14</sub> (CNGS), Ca<sub>3</sub>TaGa<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>14</sub> (CTGS), Sr<sub>3</sub>NbGa<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>14</sub> (SNGS), Sr<sub>3</sub>TaGa<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>14</sub> (STGS) 等が挙げられる。このランガサイト型圧電結 晶は水晶の約 2~4 倍もの圧電定数を有し、

1000 以上の耐熱性を有するため高温で使 用可能な圧電材料として非常に有望な候補 材料であるが、製造コストが水晶圧電素子の 100 倍以上高価という問題がある。しかし、 その高温の安定した圧電特性から高温用圧 電材料として世界的に注目されており、今年 開催された国際結晶成長学会 ICCG-16 では、 ランガサイト型圧電結晶の発表が数多く行 われた。

ランガサイト型結晶は、これまでにチョクラ ルスキー(Cz)法やブリッジマン(BS)法に代 表される結晶作製法によって作製されてき た。これらの方法では、一度の結晶作製にお いて数インチの大型バルク単結晶が得られ る一方、多結晶体では容易であった形状制御 が困難であり、円柱状の大型のバルク単結晶 が困難であり、円柱状の大型のバルク単結晶 な力撃がある(図1)。特に単一のドメイ ン構造を有する単結晶は、特定の面方向で劈 開やクラックが入りやすく、特殊な技術によ る精密な切断、加工が要求されるため、それ らの行程に必要とされるコストは大きい。さらに、切断回数が多くなるに従ってその工程に伴う原料のロスが増加する上、Cz法では用いる部材の消耗が早いことなども結晶製造コストが高くなる要因となっている。

## 2.研究の目的

このような中、申請者が所属する研究グル ープでは、独自で開発した単結晶作製法であ るマイクロ引き下げ(μ-PD)法を用いた機能 性単結晶材料の形状制御技術の開発 を進め てきた。この結晶作製法は、<u>独自で設計・開</u> 発したダイ付き坩堝を用いて溶融原料を下 方向へと引き下げることにより、ダイの形に 応じて様々な形状の単結晶が作製可能とな ることが特徴である。

しかし、このランガサイト型結晶のu-PD 法を 用いた形状制御結晶成長は、コストダウンの観 点から多くの企業が挑んだが、いずれも成功し ていない。最大の問題点はランガサイトの融液 と形状制御用坩堝冶具の金属との濡れ角が小 さすぎる点であり、融液と坩堝金属との濡れ角 は安定した結晶成長の達成に最も重要な要素 である。我々は、近年、20種類以上の合金と ランガサイト融液の濡れ角試験を行った結果、 **最適な濡れ角を持つ合金を見出した。**本研究で はこれを用いて一工程でデバイス形状とする 形状制御結晶作製技術を開発する。本技術確立 に成功できるのは世界でも最適合金を知る **我々のみである。**また、本研究では同時にラン ガサイト型圧電結晶の特性向上も行う。具体的 には、AI 等の酸素との結合の強い元素の部分置 換、育成雰囲気制御、出発化学組成制御、ポス トアニール処理等により高温での Ga 元素の揮 発や酸素不定比性の制御を試み、高温で使用す る圧電センサとして重要なファクターとなる 高温における電気抵抗率の低下抑制を実現す る。

3.研究の方法

μ-PD 法による安定した形状制御単結晶育 成には、結晶育成時における溶融原料と坩堝 との濡れ角が最も大きな影響を及ぼす。そこ で、まずはランガサイト型結晶と最適な濡れ 角を有する合金を用いた坩堝を設計・開発す る。さらに、その坩堝を用いて実際に<sub>µ</sub>-PD法 により形状制御したランガサイト型圧電結 晶 LTG, LGS, LNG, CNGS, CTGS, SNGS, STGS の育成を試みる。育成したランガサイト型圧 電結晶は、研究室保有の粉末X線回折による 相の同定、X 線ロッキングカーブによる格子 歪みや積層欠陥等の評価、Laue 法による結晶 方位決定、偏光顕微鏡によるドメイン観察を 行う。これらの物性測定により、良質な単結 晶であることが確認できた単結晶試料は、 EDS や EPMA により化学組成分析を行う。さら に、圧電特性評価においては、保有する装置 を用いて、室温から 600 までの圧電定数、 電気機械結合定数、周波数温度特性、誘電率、 機械損失係数、電気抵抗率の評価を行う。ま た、ランガサイト型圧電結晶の高温における 圧電特性改善のために、AI 等の酸素との結合 の強い元素の部分置換、育成雰囲気制御、出発 化学組成制御、ポストアニール処理等を行うこ とで高温における Ga の飛散や不定酸素量を制 御する。

4.研究成果

## (1) ランガサイト型形状制御結晶育成用の 坩堝の設計及び開発

μ-PD 法を用いたランガサイト型圧電結晶 の形状制御結晶育成を行うための坩堝の設 計を行った。デバイス形状として考えられる 円柱状、平板状、チューブ状の育成を目的と した。

まずは、円柱状のランガサイト型圧電結晶 の育成を可能とするμ-PD 法用坩堝の設計を 行った。形状制御を行うダイ部は、φ3mmと なっており、この坩堝を用いて結晶育成を行 うことで外径φ3mmの円柱状単結晶が育成で きることになる。

次に、平板状のランガサイト型圧電結晶の 育成を可能とするµ-PD 法用坩堝の設計を行 った。坩堝内部の構造はほぼ円柱状結晶育成 用坩堝と同じである。坩堝ダイ部はデバイス 形状を考慮して1 × 3 mm<sup>2</sup>の形状とした。こ れにより、1 × 3 mm<sup>2</sup>の断面形状を有する平 板状単結晶が育成できることになる。

チューブ状のランガサ イト型圧電結晶の育成を 可能とする坩堝の設計で は、ダイ部の形状は外径 \$5 mm、内径\$3 mm とした。 これにより、外径\$5 mm、



内径
\$ 0 新 のチューブ状 の単結晶が育成できるこ 図 1. チューブ状結 ととなる。 晶育成用坩堝図面。

さらに、形状制御マルチ単結晶育成を可能 とする坩堝の設計を行った。1 × 3 mm<sup>2</sup>の断 面形状を有する平板状単結晶が6本同時に育 成可能な坩堝であり、1 × 3 mm<sup>2</sup>の底面を有 するダイを坩堝下部に6ヶ所設置した。





図 2 円柱状結晶 図 3 平板状結晶 育成用 Pt 合金坩堝。 育成用 Pt 合金坩堝。

Pt 合金坩堝は結晶育成による高温での使用により次第にダイ部が劣化する。その劣化

は結晶育成の安定性を悪くするために、育成 結晶の形状制御が次第に困難になることが これまでの研究結果により明らかとなって いる。ただし、ダイ部のみの劣化によって坩 堝全体を改鋳することは坩堝のコスト増大 を招いてしまうため、本研究では坩堝ダイ部 を取り外し可能にし、ダイ部の劣化に伴って ダイ部のみを交換する機構を検討した。

様々な取り外し機構を検討した結果、Pt 合 金材料における高温での接着特性の影響に より、結晶育成後のダイ部分のみの取り外し は困難であると結論付けた。しかし、この高 温での接着特性を利用することでダイ部の みを切断し、新たなダイ部を高温で接着する 機構を考えた。この機構が達成された場合、 ダイ部のみの交換によりその劣化に対応す ることができるため坩堝コストを大幅に低 減することが可能である。さらに、一度加工 済みの坩堝のダイ部を新たな形状に変更す る際も、坩堝全部を加工することなく、ダイ 部のみの交換により対応が可能となる。これ は、貴金属である Pt の使用量削減にもつな がる。また、坩堝全体を高価な Pt 合金金属 で作製する必要がなくなり、ダイ部のみ Pt 合金金属で作製し、ダイ部以外の坩堝はより 安価な Pt 金属で作製可能である。

1400 24 時間空気中で接着させた後の坩 堝胴体部及びダイ部を図4に示した。問題な くダイ部と坩堝胴体部は接着できており、多 少の衝撃では位置のずれも生じなかった。こ れにより、坩堝ダイ部の交換には成功した。 本坩堝を用いての育成実験の結果に関して は後述する。





図 4. (左) 使用後の加工済み坩堝と接着用ダ イ部。(右)接着後の坩堝。

(2) μ-PD装置による形状制御ランガサイト型 圧電結晶の育成技術の開発

ランガサイト型形状制御圧電結晶の育成 技術を開発することを目的に、開発した形状 制御結晶育成用 Pt 合金坩堝を用いてランガ サイト型圧電結晶の育成を行った。

実験の手順を図5に示した。まずは、原料 粉末である高純度(4N 以上)の CaCO<sub>3</sub>, SrCO<sub>3</sub>, La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Nb<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Ta<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, SiO<sub>2</sub> 粉末を、 Ca<sub>3</sub>NbGa<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>14</sub>, Ca<sub>3</sub>TaGa<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>14</sub>, Sr<sub>3</sub>NbGa<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>14</sub>, Sr<sub>3</sub>TaGa<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>14</sub>, La<sub>3</sub>Ta<sub>0.5</sub>Ga<sub>5.5</sub>O<sub>14</sub> の仕込組成で 秤量・混合し、1200 で焼結した。焼成粉末 は、粉末 X 線回折(XRD)測定により目的とす る物質の単相であることを確認した後、形状 制御用の Pt 合金坩堝に入れて高周波誘導コ イルにより加熱した。

高周波誘導加熱により坩堝内の原料粉末 を溶融した後、ダイの穴から出てきた原料融 液を種結晶を用いて下方向に 0.05mm/min で 引き下げることによって単結晶育成を行っ た。育成した単結晶は粉末 XRD 測定による相 分析・格子定数評価を、X線ロッキングカー ブ(XRD)測定により結晶性評価を、極点測定 により結晶軸評価を、エネルギー分散型X線 (EDX)分析及び X線電子プロープ微小部 (EPMA)分析により育成した結晶の組成分析 をインピーダンスアナライザによる共振反 共振法により圧電定数評価を、二端子法によ り電気抵抗率測定を行った。

形状制御結晶育成は、まずは最も安定して結 晶育成が可能だと思われる円柱状の結晶育 成から行った。





図7は結晶育成中の固液 界面をCCDカメラを用いて 撮影した画像である。まず 溶融した原料が坩堝のダ イの穴を通って、坩堝の底 に出てきたため、種結晶に その融液をタッチさせて 下に引き下げた(0.05 mm/min)。融液を引き下げ ることで徐々に結晶の径 が大きくなり、融液がダイ の底面で形状が制限され ているために、最終的には 図5下図のようにダイのサ イズの径まで結晶の径が 大きくなった。



図 7. 育成中の 固液界面。

その結果、図8示した円柱状の Ca<sub>3</sub>NbGa<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>14</sub>の単結晶の作製に成功した。 さらに、種結晶の方位を変えることによって、 結晶成長方向がc軸方向とa軸方向の2本を 作製した。いずれの単結晶も坩堝のダイの形 状に制御されて同じ径の単結晶が作製でき ていることが分かる。育成方向に垂直に切断 し、研磨した単結晶において分かるようにク ラックのない単結晶が作製できていること が確認できる。



図 8 µ-PD 法で作製した円柱状 Ca<sub>3</sub>NbGa<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>14</sub> 単結晶。

さらに、Ca<sub>3</sub>TaGa<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>14</sub>, Sr<sub>3</sub>NbGa<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>14</sub>, Sr<sub>3</sub>TaGa<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>14</sub>, La<sub>3</sub>Ta<sub>0.5</sub>Ga<sub>5.5</sub>O<sub>14</sub>の組成におい ても同様に円柱状の形状制御単結晶の育成 を行った。Ca<sub>3</sub>NbGa<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>14</sub>と同様に $\phi$ 3mm の径を 有した円柱状の単結晶が得られており、全て の結晶で高い透明度を示した。結晶育成中の 固液界面は、全てCa<sub>3</sub>NbGa<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>14</sub>と同様であり、 同じ形状制御用坩堝を用いることで円柱状 の形状制御が可能であることが明らかとな った。育成した結晶を育成方向と垂直に切断 し、光学研磨をしたが、結晶内部にクラック は確認されなかった。

育成した円柱状ランガサイト型圧電結晶 は全て粉末 XRD 測定を行うことによってその 相の同定を行った。得られた粉末 XRD パター ンからは、全て回折ピークがランガサイト型 構造のピークと一致し、不純物のピークも見 られなかったため、育成した全ての結晶でラ ンガサイト型構造の単相が得られたことが 明らかとなった。

また、得られた単結晶の粉末 XRD パターン を用いてその格子定数を調べた。格子定数の 評価には、Ti 粉末を内部標準試料として用い、 最小二乗法により計算を行った。その結果、 得 ら れ た Ca<sub>3</sub>NbGa<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>14</sub>, Ca<sub>3</sub>TaGa<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>14</sub>, Sr<sub>3</sub>NbGa<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>14</sub>, Sr<sub>3</sub>TaGa<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>14</sub>, La<sub>3</sub>Ta<sub>0.5</sub>Ga<sub>5.5</sub>O<sub>14</sub> の単結晶の格子定数(a 軸長、c 軸長)はそれ ぞれ、a = 8.100 Å, c = 4.979 Å, a = 8.109Å, c = 4.985 Å, a = 8.280 Å, c = 5.074 Å, a = 8.288 Å, c = 5.074 Å, a = 8.239 Å, c = 5.124 Å となった。これらは、全てこれま でに報告されているチョクラルスキー法で 育成された結晶の結果と同様の値を示して いることを確認した。

育成した円柱状ランガサイト型圧電結晶 の結晶性を調べるために、育成方向に垂直に 切った断面の X 線ロッキングカーブ測定を 行った。Ca<sub>3</sub>NbGa<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>14</sub>, Ca<sub>3</sub>TaGa<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>14</sub>, Sr<sub>3</sub>NbGa<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>14</sub>, Sr<sub>3</sub>TaGa<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>14</sub>, O円柱状単結晶 は、すべての XRC ピークの半値幅が 100 arcsec 程度であり、左右対称のシングルピー クが確認できた。これは、育成した単結晶内 にモザイク構造等の局所歪みが存在せず、さ らにチョクラルスキー法で育成した単結晶 と比べてもほぼ遜色のない結晶性を有して

## いることを示している。

次に、育成した形状制御単結晶の結晶方位 を調べるために、育成方向に垂直に切った断 面の極点測定を行った。結晶育成方向にa軸 の結晶方位を有する種結晶を用いて形状制 御結晶育成を行った円柱状 Ca<sub>3</sub>TaGa<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>14</sub> 単 結晶において(400)ピークの極点測定を行っ た。その結果、(400)ピークは極図のほぼ中 央に現れた。これは、切断面がほぼ(400)面 となっていることを意味しており、つまり育 成された単結晶が育成方向に対してa軸の結 晶方位を有していることが明らかとなった。 これにより、種結晶により育成する結晶の結 晶方位を制御することに成功した。

Ca<sub>3</sub>NbGa<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>14</sub>単結晶に関しては、a軸方向 に結晶成長を行った試料に関して、共振反共 振法によりその圧電定数を測定した(図 9)。 下記の計算法を用いて d<sub>11</sub>を求めた。その結 果、d<sub>11</sub> = 3.97 pC/N となり、チョクラルスキ ー法で育成した結晶とほぼ同等の値を示す ことが明らかとなった。さらに、その圧電定 数の温度依存性を調べたところ、室温から約 550 までの温度範囲において、ほぼ文献値 通りの圧電定数を示すことが明らかとなっ た。



図 9 形状制御 Ca<sub>3</sub>NbGa<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>14</sub> 結晶の圧電定 数測定。

電気抵抗率の温度依存性では、200~600 においてチョクラルスキー法で育成した単 結晶とほぼ同等の挙動を示しており、500 における電気抵抗率で比較しても約 10<sup>8</sup> Ωcm の値を示した。

以上の結果から、μ-PD 法で育成した円柱状 ランガサイト型圧電結晶は、勅らするキー法 で育成した既存のランガサイト型圧電結晶 と同様の結晶性および圧電特性を有してい ることが明らかとなった。

次に、平板状およびチューブ状のランガサ イト型圧電結晶の作製技術の開発を行った。 これらは、既に開発を行った形状制御用坩堝 を用いて行った。

まずは、平板状ランガサイト型圧電結晶育成の結果を示す。坩堝のダイは、1×3 mm<sup>2</sup>のものを用いて行った。結晶育成手順は円柱状結晶育成の際と同様であり、原料にはCa<sub>3</sub>NbGa<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>14</sub>を用いた。ダイ部の穴が丸穴3

個の際には原料融液の供給が安定していな かったものの、ダイ部の穴をスリットタイプ にしたところ安定して原料融液の供給が行 われた。その結果、結晶引き下げに従って、 メニスカスが坩堝ダイ部で制御されている 様子がCCDカメラにより観察された。

結晶育成後の結晶は、断面がほぼ 1 × 3 mm<sup>2</sup> の形状を有しており、平板状の Ca<sub>3</sub>NbGa<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>14</sub> 結晶の育成に成功した。育成した結晶の結晶 性を X 線ロッキングカーブにより測定した結 果、半値幅が 38.2 arcsec と非常に高い結晶 性を示した。

チューブ状のランガサイト型圧電結晶で は、シードも同様にチューブ状の種結晶を用 意した。シードタッチ後は中が中空のチュー ブ状にメニスカスが広がる様子が観察され た。一方、外径形状はダイ部よりもわずかに 広がる傾向が見られたが、これは、印加出力 の調整によって制御可能である。このメニス カス形状を保ちながら 0.05 mm/min において 結晶引き下げをおこなったところチューブ 状形状制御 Ca<sub>3</sub>NbGa<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>14</sub> 結晶の育成に成功 した。

5.主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者に は下線)

〔雑誌論文〕(計 9 件)

 Effects of growth atmosphere on crystal growth and optical properties for Ca<sub>3</sub>NbGa<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>14</sub> single crystals <u>Y. Yokota</u>, M. Sato, K. Tota, S. Kurosawa, K. Onodera, A. Yoshikawa *Ferroelectrics* 449 (2013) 147-153 査読 有

DOI:10.1080/00150193.2013.822780

- Annealing effects for Ca<sub>3</sub>NbGa<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>14</sub> piezoelectric single crystals grown by micro-pulling-down method <u>Y. Yokota</u>, M. Kitahara, S. Kurosawa, M. Sato, K. Tota, K. Onodera, A. Yoshikawa *Ferroelectrics* 445 (2013) 1-5 査読有 DOI:10.1080/00150193.2013.843383
- 3. Fabrication and physical properties of  $Ca_3Nb(Ga_{1-x}Al_x)_3Si_2O_{14}$  piezoelectric materials

M. Kitahara, <u>Y Yokota</u>, A. Medvedev, Y. Futami, S. Kurosawa, Y. Fujimoto, M. Sato, K. Tota, K. Onodera, A. Yoshikawa *Ferroelectrics* **456** (2013) 107-112 査読 有

DOI:10.1080/00150193.2013.846667

4. Growth of column-shaped and plate-like langasite-type piezoelectric single crystals and their physical properties

Y. Yokota, M. Sato, V. Chani, Y. Futami, K. Tota, S. Kurosawa, K. Onodera, A. Yoshikawa Sensors and Actuators A (2012) 200 (2013) 56-59 査読有 DOI: 10.1016/j.sna.2012.10.017 Shaped crystal growth of langasite-type 5. piezoelectric single crystals and their physical properties Y. Yokota, A. Yoshikawa, Y. Futami, M. Sato, K. Tota, K. Onodera, T. Yanagida IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectrics. Freq. Contr. 59 (2012) 1868-1871 査読 有 DOI:10.1109/TUFFC.2012.2398 Shape-controlled 6. crystal growth of Sr<sub>3</sub>NbGa<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>14</sub> and Sr<sub>3</sub>TaGa<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>14</sub> piezoelectric single crystals by micro-pulling-down method Y. Yokota, Y. Futami, M. Sato, K. Tota, K. Onodera, T. Yanagida, A. Yoshikawa IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectrics. Freq. Contr. 59 (2012) 1864-1868 査読 有 DOI: 10.1109/TUFFC.2012.2397 Crystal growth and physical properties of 7. shape-controlled La<sub>3</sub>Ta<sub>0.5</sub>Ga<sub>5.5</sub>O<sub>14</sub> single crystals by micro-pulling-down method Y. Yokota, M. Sato, Y. Futami, K. Tota, T. Yanagida, K. Onodera, A. Yoshikawa J. Cryst. Growth 352 (2012) 147-150 査 読有 DOI: 10.1016/j.jcrysgro.2012.01.012 Study phase diagram 8. on of Ca<sub>3</sub>NbGa<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>14</sub> piezoelectric material by differential thermal analysis and X-ray diffraction measurement Y. Futami, Y. Yokota, M. Sato, K. Tota, J. Pejchal, T. Yanagida, K. Onodera, A. Yoshikawa Key Engineering Materials 508 (2012) 247-252 査読有 DOI:10.4028/www.scientific.net/KEM.50 8.247 9. Growth Shape-Controlled of Ca<sub>3</sub>NbGa<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>14</sub> and Sr<sub>3</sub>NbGa<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>14</sub> Single Crystals by Micro-Pulling-Down Method and Their Physical Properties Y. Yokota, M. Sato, K. Tota, Y. Futami, T. Yanagida, K. Onodera, A. Yoshikawa Jpn. J. Appl. Phys. 50 (2011) 09ND03 査読有

DOI: 10.1143/JJAP.50.09ND03

〔学会発表〕(計 20 件)

- Development of functional single crystals by micro-pulling-down method C35 <u>Y. Yokota</u>, S. Kurosawa, K. Nishimoto, M. Sato, H. Goto, K. Shikimura, K. Tota, T. Ito, T. Kagaya, K. Onodera, K. Kamada, A. Yoshikawa 2013 Collaborative Conference on Crystal Growth (3CG), Cancún, Mexco (June 12, 2013)[招待講演]
- Material Research of Scintillator Crystals and Growth of Shape-controlled Crystals by Micro-Pulling-Down Method <u>Y. Yokota</u>, A. Yamajia, Y. Futami, Y. Fujimoto, T. Yanagida, M. Sato, K. Tota,K Onodera, N. Kawaguchi, K. Fukuda, D. Totsuka. A. Yoshikawa 2011 KACG, South Korea (October 14, 2011)[招待講演]
- Shaped crystal growth of langasite-type piezoelectric single crystals and their physical properties
   A. Yoshikawa, <u>Y. Yokota</u>, M. Sato, K. Tota, Y. Futami1, A. Yamaji, T. Yanagida, K. Onodera *IEEE 20th ISAF-PFM*, Canada (July 30, 2011) [招待講演]

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

〔その他〕 ホームページ等

6.研究組織

(1)研究代表者
 横田 有為 ( YUUI, YOKOTA )
 東北大学・未来科学技術共同研究
 センター・准教授
 研究者番号: 60517671