

平成22年度予備費事業 戦略的基盤技術高度化支援事業

「燃焼圧センサー用ランガサイト型圧電結晶の形状制御単結晶作製装置  
及び作製技術の開発」

研究開発成果等報告書

平成24年2月

委託者 東北経済産業局

委託先 国立大学法人東北大学

## 目 次 (例)

第1章	研究開発の概要	3
1-1	研究開発の背景・研究目的及び目標	3
1-2	研究体制 (研究組織・管理体制、研究者氏名、協力者)	6
1-3	成果概要	10
1-4	当該研究開発の連絡窓口	11
第2章	本論	12
2-1	ランガサイト型形状制御結晶育成用の坩堝の設計・開発	12
2-2	ランガサイト型形状制御結晶育成用の小型高周波発振機の開発	14
2-3	ランガサイト型形状制御結晶育成用の $\mu$ -PD装置の開発	16
2-4	$\mu$ -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	18
最終章	全体総括	21

## 第1章 研究開発の概要

### 1-1 研究開発の背景・研究目的及び目標

自動車の更なる燃費向上には、ランガサイト型圧電結晶を用いたエンジン内燃焼圧センサーが必要とされるが、従来法ではバルク単結晶からの加工コストが大きく実用化に大きな弊害となっている。本事業ではデバイス形状が直接作製できるマイクロ引き下げ装置における上流から下流まで全ての要素技術を見直し、中小企業に存在する世界にも高レベルの技術を掘り起こし垂直統合することで、低価格な圧電結晶素子の製造技術を確立する。

そこで、本事業では東北大学吉川准教授らによって開発された $\mu$ -PD法を用いたランガサイト型圧電結晶の形状制御技術を基に、本事業ではランガサイト型圧電結晶の形状制御単結晶育成に特化した低価格 $\mu$ -PD装置を開発するとともに、その開発した $\mu$ -PD装置による形状制御ランガサイト型圧電結晶の製造技術を開発する。本事業は、①ランガサイト型形状制御結晶育成用の坩堝の設計・開発、②ランガサイト型形状制御結晶育成用の小型高周波発振機の開発、③ランガサイト型形状制御結晶育成用の $\mu$ -PD装置の開発、④ $\mu$ -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の4段階を行う。

#### ① ランガサイト型形状制御結晶育成用の坩堝の設計・開発

##### ①-1 ランガサイト型形状制御単結晶の育成が可能な坩堝の設計

- ・ランガサイト融液との濡性が最適な合金を用いた $\mu$ -PD装置用坩堝を設計する。(東北大学)
- ・大量生産に対応するべくマルチ結晶育成が可能な坩堝を開発する。6本同時マルチ育成が可能なダイを6か所設置した坩堝を設計する。熱電対を用いて結晶育成時の坩堝の各位置の温度分布を詳細に調べ、ダイ形状や配置等を決定する。(東北大学)

##### ①-2 ランガサイト型形状制御単結晶の育成が可能な坩堝の開発

- ・①-1の設計を基に、 $\mu$ -PD装置においてデバイス形状の形状制御ランガサイト型単結晶の同時育成が可能な坩堝の加工技術を開発する。(株式会社青山精工)
- ・①-1の設計を基に、 $\mu$ -PD装置において6本同時マルチ形状制御ランガサイト型単結晶の同時育成が可能な坩堝の加工技術を開発する。(株式会社青山精工)

##### ①-3 $\mu$ -PD装置用坩堝の低価格化とダイ部の取り外し機構の開発

- ・単結晶の形状制御を行う坩堝のダイの部分のみをランガサイト型物質との濡れ性が最適となる合金で作製し、他の部分は安価な金属で代用した坩堝を設計・開発する。(株式会社青山精工)
- ・ダイの部分を取り外し可能にすることで経年劣化にも対応できるようにする。(株式会社青山精工)
- ・坩堝の価格は100万円以下を目標とする。(株式会社青山精工)

- ② ランガサイト型形状制御結晶育成用の小型高周波発振機の開発
- ②-1 ランガサイト型形状制御結晶育成用高周波発振機の開発
- ・ランガサイト型形状制御単結晶育成を行うには、高周波による坩堝の加熱が円周方向に均一に行われる必要がある。そこで、坩堝に印加する高周波と坩堝の加熱状態を熱電対により詳細に調べる。(高周波ネッスル)
  - ・上記の結果を基に、コイル径や高周波数を制御し、坩堝内の均一な温度分布を達成する。(高周波ネッスル)
  - ・原料の均一な加熱を可能とする高周波発振機を開発を行う。(高周波ネッスル)
- ②-2 低価格小型高周波発振機の開発
- ・低価格の $\mu$ -PD 装置開発には、低価格の高周波発振機が必要とされるため、本事業では坩堝と発振機の周波数マッチングを最適化することにより 300 万円以下の小型高周波発振機を開発する。(高周波ネッスル)
  - ・サイズは、発振機本体、整流器を含めて  $1 \times 1 \times 1 \text{ m}^3$  のサイズ以内に収まるように設計・開発する。(高周波ネッスル)
- ③ ランガサイト型形状制御結晶育成用の $\mu$ -PD 装置の開発
- ③-1 ランガサイト型形状制御単結晶育成用 $\mu$ -PD 装置の開発
- ・①・②において開発した坩堝、高周波発振機を用いて、ランガサイト型形状制御単結晶が育成可能な低価格 $\mu$ -PD 装置を設計・開発する。(秋田精工)
  - ・1000 万円／台で販売可能な $\mu$ -PD 装置の開発を目標とする。(秋田精工)
- ③-2 形状制御結晶およびマルチ結晶育成を可能とする炉内温度分布の制御技術の開発
- ・ランガサイト型形状制御単結晶およびマルチ単結晶が育成可能な炉内温度分布を達成するべく、高周波コイルや断熱材、坩堝位置等を制御することで最適な育成条件を確立する。(秋田精工)
- ④  $\mu$ -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
- ④-1 ランガサイト型形状制御単結晶の育成技術の開発
- ・③において開発した $\mu$ -PD 装置を用いてランガサイト型圧電素子として必要とされるデバイス形状である円柱状およびチューブ状のランガサイト型圧電結晶の育成技術の確立を目標とする。(東北大学)
  - ・育成した形状制御結晶に関しては研究室所有の結晶性評価機器および圧電特性評価機器において、Cz 法で育成した結晶と同等の性能を示すことを確認する。(東北大学)
- ④-2 ランガサイト型マルチ単結晶の育成技術の開発

- ・マルチ結晶育成では $\mu$ -PD 装置を用いてランガサイト型圧電結晶の 6 本同時育成技術の確立を目標とする。(東北大学)
- ・育成したマルチ育成結晶に関しては研究室所有の結晶性評価機器および圧電特性評価機器において、Cz 法で育成した結晶と同等の性能を示すことを確認する。(東北大学)

⑤ 研究全体の統括、プロジェクトの管理運営

⑤-1 全体計画の企画（東北大学未来科学技術共同研究センター）

プロジェクトにおける燃焼圧センサー用ランガサイト型圧電結晶の形状制御単結晶作製装置及び作製技術の開発について、全体計画の企画を行う。また、事業化を見据えアドバイザーである TDK 株式会社も含めた製品性能の企画を行う。

⑤-2 進捗管理（東北大学未来科学技術共同研究センター）

各研究について、事業計画が滞りなく遂行するように調整を図る。

⑤-3 研究推進会議の開催（東北大学未来科学技術共同研究センター）

研究推進のための会議を四半期毎に開催する。

⑤-4 報告書とりまとめ（東北大学未来科学技術共同研究センター）

【各目標の達成状況】

① ランガサイト型形状制御結晶育成用の坩堝の設計・開発

- ①-1 ランガサイト型形状制御単結晶の育成が可能な坩堝の設計（達成）
- ①-2 ランガサイト型形状制御単結晶の育成が可能な坩堝の開発（達成）
- ①-3  $\mu$ -PD 装置用坩堝の低価格化とダイ部の取り外し機構の開発（達成）

② ランガサイト型形状制御結晶育成用の小型高周波発振機の開発

- ②-1 ランガサイト型形状制御結晶育成用高周波発振機の開発（達成）
- ②-2 低価格小型高周波発振機の開発（達成）

③ ランガサイト型形状制御結晶育成用の $\mu$ -PD 装置の開発

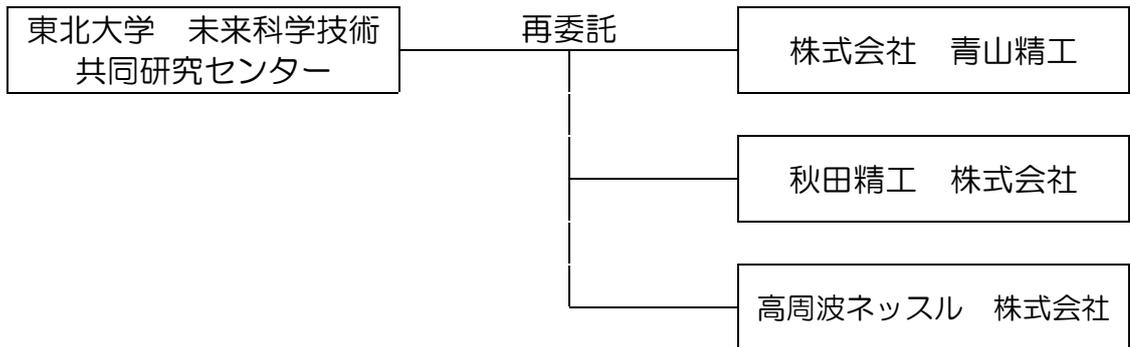
- ③-1 ランガサイト型形状制御単結晶育成用 $\mu$ -PD 装置の開発（達成）
- ③-2 形状制御結晶およびマルチ結晶育成を可能とする炉内温度分布の制御技術の開発（達成）

④  $\mu$ -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

- ④-1 ランガサイト型形状制御単結晶の育成技術の開発（達成）
- ④-2 ランガサイト型マルチ単結晶の育成技術の開発（未達成）

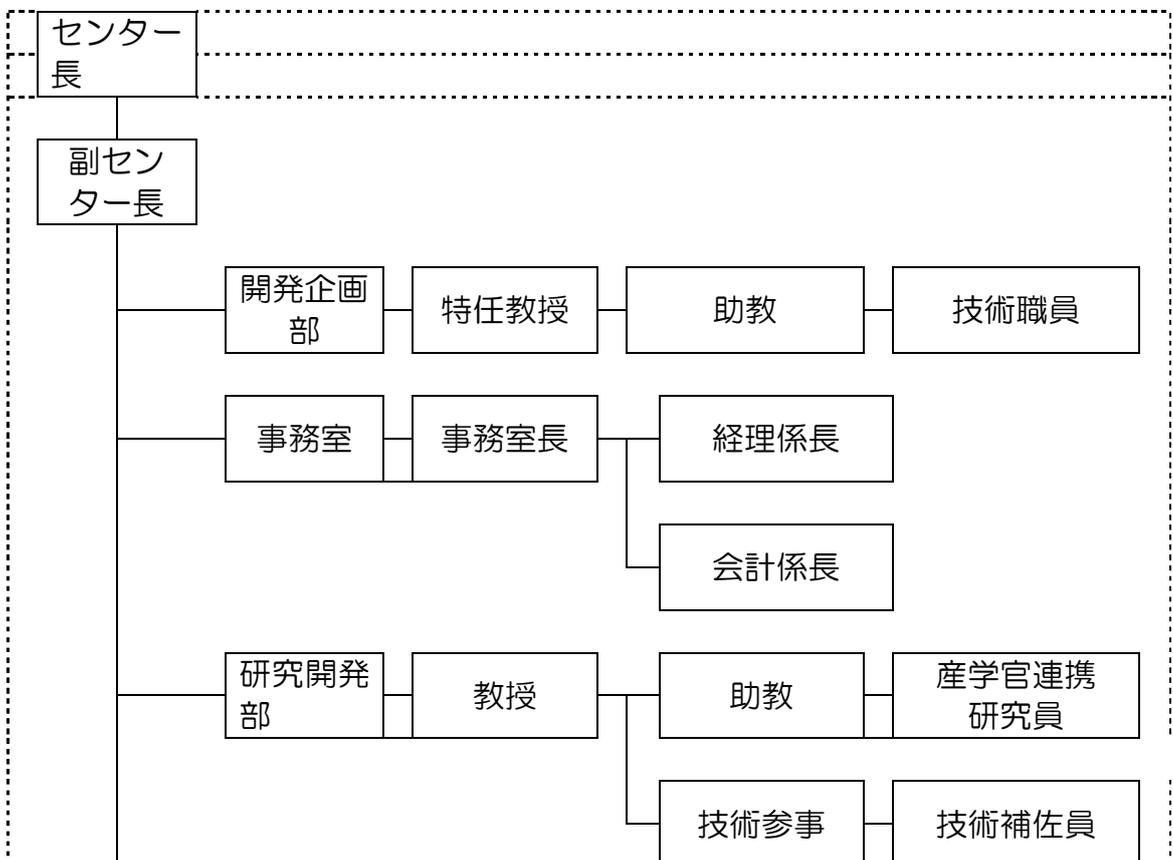
1-2 研究体制（研究組織・管理体制、研究者氏名、協力者）

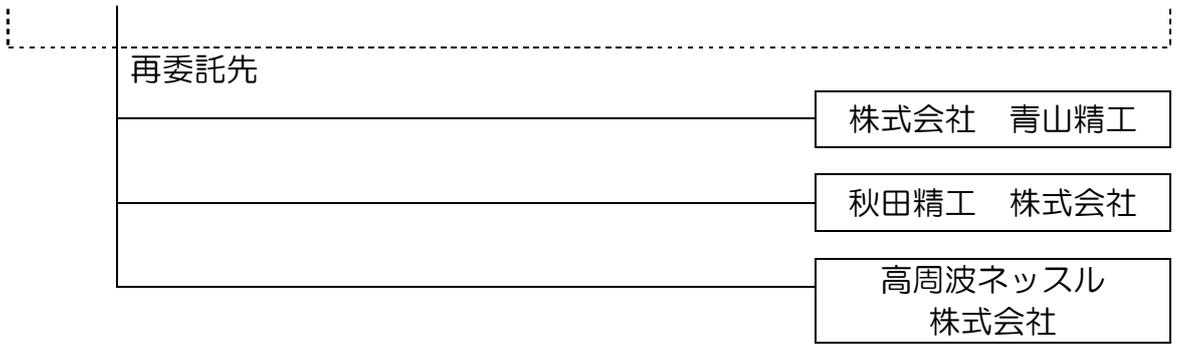
【研究組織】



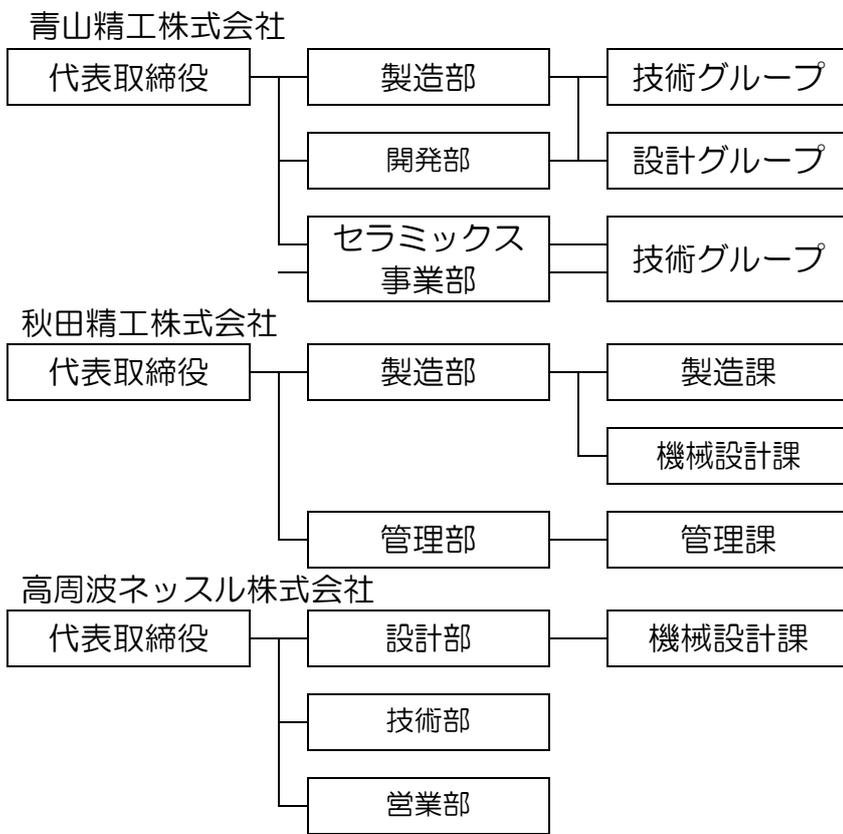
【管理体制】

① 事業管理者 [国立大学法人東北大学未来科学技術共同研究センター]





②（再委託先）



【研究者氏名】

【事業管理者】 東北大学 未来科学技術共同研究センター

①研究員

氏名	所属・役職	実施内容（番号）
吉川 彰	未来科学技術共同研究センター 准教授	①-1 (SL)
横田 有為	多元物質科学研究所 助教（研究特任）	④
二見 能資	未来科学技術共同研究センター 産学官連携研究員	④
上村 博	未来科学技術共同研究センター 産学官連携研究員	④
穴戸 統悦	未来科学技術共同研究センター 産学官連携研究員	④

②管理員

氏名	所属・役職	実施内容（番号）
長谷川 史彦	未来科学技術共同研究センター 副センター長	④
吉田 幹雄	未来科学技術共同研究センター 事務室長	④
松村 淳	未来科学技術共同研究センター 総務係長	④
杉山 力	未来科学技術共同研究センター 会計係長	④
平塚 洋一	未来科学技術共同研究センター 助教	④

【再委託先（研究員）】

株式会社青山精工

氏名	所属・役職	実施内容（番号）
塚田 一正	セラミックス事業部 統括責任者	①-2、①-3、①-4

秋田精工 株式会社

氏名	役職・所属	実施内容（番号）
熊地 証	第一製造部 機械設計課	③
北林 健明	管理部 管理課	③
小松 智彦	第一製造部 制御設計課	③

高周波ネッスル 株式会社

氏名	役職・所属	実施内容（番号）
磯部 信次	製造部 課長	②
佐藤 俊二	製造部 課長	②
平野 壮	構造設計部 研究員	②

【経理担当者及び業務管理者】

【事業管理者】

東北大学 未来科学技術共同研究センター

(経理担当者) 未来科学技術共同研究センター 事務室長 吉田 幹雄

(業務管理者) 未来科学技術共同研究センター 副センター長 長谷川 史彦

【再委託先】

株式会社 青山精工

(経理担当者) 総務・業務部 千葉 亜須香

(業務管理者) セラミックス事業部統括責任者 塚田 一正

秋田精工 株式会社

(経理担当者) 管理部 総務課 部長 佐藤 俊広

(業務管理者) 代表取締役社長 須田 精一

高周波ネッスル 株式会社

(経理担当者) 営業部 松下 一大

(業務管理者) 代表取締役社長 平野 康晴

【他からの指導・協力者名及び指導・協力事項】

研究推進会議 委員

氏名	所属・役職	備考
青山 健哉	株式会社青山精工 代表取締役 社長	PL
塚田 一正	株式会社青山精工 セラミックス事業部 統括責任者	委
平尾 哲也	秋田精工株式会社 常務取締役	
佐藤 宣知	秋田精工株式会社 第一製造部 営業課 統括係長	
松下 一大	高周波ネッスル株式会社 営業部	
吉川 彰	東北大学未来科学技術共同研究センター 准教授	SL
横田 有為	東北大学多元物質科学研究所 助教(研究特任)	
平塚 洋一	東北大学未来科学技術共同研究センター 助教	
上村 博	東北大学未来科学技術共同研究センター 産学官連携 研究員	委
二見 能資	東北大学未来科学技術共同研究センター 産学官連携 研究員	委
小野寺 晃	TDK 株式会社生産技術センター 副センター長	アドバイザー
遠田 一重	TDK 株式会社生産技術センター 統括係長	アドバイザー
佐藤 真人	TDK 株式会社生産技術センター 研究員	アドバイザー

【協力者】

アドバイザー 氏名	主な指導・協力事項
小野寺 晃	燃焼圧センサー実用化の市場動向アドバイス
遠田 一重	μ-PD 装置、育成結晶の要求性能指導
佐藤 真人	μ-PD 装置、育成結晶の要求性能指導

### 1-3 成果概要

#### ① ランガサイト型形状制御結晶育成用の坩堝の設計・開発

##### ①-1 ランガサイト型形状制御単結晶の育成が可能な坩堝の設計

ランガサイト型形状制御単結晶の育成技術を確立するべく、 $\mu$ -PD 装置用坩堝の設計を行った。本事業では、ランガサイト型圧電結晶のデバイス形状として想定される平板状及びチューブ状の単結晶育成が可能となる坩堝の設計を行った。

さらに、大量生産向けのマルチ結晶育成が可能な坩堝を設計した。6 本同時マルチ育成が可能な平板状のダイを 6 か所設置した坩堝を設計した。

##### ①-2 ランガサイト型形状制御単結晶の育成が可能な坩堝の開発

①-1 の設計を基に、 $\mu$ -PD 装置においてデバイス形状の形状制御ランガサイト型単結晶の同時育成が可能な坩堝の加工技術を開発し、平板状及びチューブ状のランガサイト型圧電結晶が育成可能な坩堝を作製した。さらに、①-1 の設計を基に、 $\mu$ -PD 装置において平板状の 6 本同時マルチ形状制御ランガサイト型単結晶の同時育成が可能な坩堝の作製に成功した。

##### ①-3 $\mu$ -PD 装置用坩堝の低価格化とダイ部の取り外し機構の開発

ダイの部分の取り外し機構を開発した。これにより、経年劣化に対応可能な坩堝の開発に成功した。さらに、このダイ部の交換機構の確立により坩堝価格は 100 万円/個以下を達成した。

#### ② ランガサイト型形状制御結晶育成用の小型高周波発振機の開発

##### ②-1 ランガサイト型形状制御結晶育成用高周波発振機の開発

原料の均一な加熱を可能とする高周波発振機を開発を行った。高周波による坩堝の加熱が円周方向に均一に行われるようコイル径や巻き数、周波数特性を制御した。これにより、炉内の均一な温度分布を達成した。

##### ②-2 低価格小型高周波発振機の開発

ランガサイト型圧電結晶育成用に発振機の特性を最適化することにより 300 万円以下の小型高周波発振機を開発した。特に、出力を 20 kW から 8 kW に変更したことで発振機の低出力化（省エネ）、および小型化に成功した。これにより、高周波発振機のサイズは、発振機本体、整流器を含めて  $1 \times 1 \times 1 \text{ m}^3$  のサイズ以内に収めることが可能となった。

#### ③ ランガサイト型形状制御結晶育成用の $\mu$ -PD 装置の開発

##### ③-1 ランガサイト型形状制御単結晶育成用 $\mu$ -PD 装置の開発

①・②において開発した坩堝、高周波発振機を用いて、ランガサイト型形状制御単結晶が育成可能な低価格 $\mu$ -PD 装置を設計・開発した。さらに、その販売価格が 1000 万円/台以下を達成した。

##### ③-2 形状制御結晶およびマルチ結晶育成を可能とする炉内温度分布の制御技術の開発

高周波コイルや断熱材、坩堝位置等を適切に設定することでランガサイト型形

状制御単結晶およびマルチ単結晶が育成可能な育成条件を確立した。

#### ④ 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(東北大学)

##### ④-1 ランガサイト型形状制御単結晶の育成技術の開発

①、③において開発した形状制御用坩堝およびμ-PD 装置を用いてランガサイト型圧電素子として必要とされるデバイス形状である円柱状およびチューブ状のランガサイト型圧電結晶の育成技術の確立を行った。さらに、育成した形状制御結晶に関して、その結晶性、圧電特性を調べたところ、Cz 法で育成した結晶と同等の性能を示すことが確認できた。

##### ④-2 ランガサイト型マルチ単結晶の育成技術の開発

①、③において開発した形状制御用坩堝およびμ-PD 装置を用いてランガサイト型圧電結晶のマルチ単結晶育成技術の確立を行った。その結果、6 本の板状単結晶の同時育成を行った。マルチ単結晶育成用の種結晶を新たに作製して結晶育成を試みたが、6 本の板状単結晶の同時育成には至らなかった。

#### 1-4 当該プロジェクト連絡窓口

東北大学 未来科学技術共同研究センター

(代表者) 未来科学技術共同研究センター 教授 吉川 彰  
(業務管理者) 金属材料研究所 助教 横田 有為  
(住所) 〒980-8579 宮城県仙台市青葉区荒巻青葉 6-6-10  
(TEL) 022-215-2214 (FAX) 022-215-2215  
(E-Mail) yokota@imr.tohoku.ac.jp

株式会社 青山精工

(代表者) 代表取締役社長 青山 健哉  
(業務管理者) セラミックス事業部 統括責任者 塚田 一正  
(住所) 〒018-5337 秋田県鹿角市十和田末広字紀ノ国平 42  
(TEL) 0186-35-3350 (FAX) 0186-35-4887  
(E-Mail) tsukada@aoyama-pi.co.jp

秋田精工 株式会社

(代表者) 代表取締役社長 須田 精一  
(業務管理者) 管理部総務課 部長 佐藤 宣知  
(住所) 〒018-0604 秋田県由利本荘市西目町沼田字新道下 572-2  
(TEL) 0184-33-2143 (FAX) 0184-33-2021  
(E-Mail) sec1@akitaseiko.jp

高周波ネッスル 株式会社

(代表者) 代表取締役社長 平野 晴康  
(業務管理者) 松本 一大  
(住所) 〒213-0033 神奈川県川崎市高津区下作延 2-28-30  
(TEL) 044-861-5421 (FAX) 044-861-5631  
(E-Mail) info@hfn.co.jp

## 第2章 本論

### 2-1 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

$\mu$ -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 $\mu$ -PD 法用坩堝の設計を行った。形状制御を行うダイ部は、 $\phi 3$  mm 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 $\phi 3$  mm 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 $\mu$ -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 $1 \times 3$  mm<sup>2</sup>の形状とした。これにより、 $1 \times 3$  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 $\phi 5$  mm、内径 $\phi 3$  mm とした。これにより、外径 $\phi 5$  mm、内径 $\phi 3$  mm のチューブ状の単結晶が育成できることとなる。

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。 $1 \times 3$  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、 $1 \times 3$  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。

ランガサイト型形状制御単結晶の育成が可能な坩堝の開発は青山精工社が担当した。まずは、坩堝材である Pt 合金の加工を行う上で、卓上精密高速旋盤・細穴放電加工機を導入し、さらに青山精工社既存の設備（マシニングセンター・ワイヤカット・平面研削盤）を用いて坩堝の作製を行った。卓上精密高速旋盤は、機械合成があり高精度で難削材の加工に適している。細穴放電加工機は、坩堝ダイ部の穴明けの仕上げ状態を正確に確保する為に特殊穴明け専用の加工機として導入した。ダイ部の穴の仕上げ状態は結晶育成時の原料溶融の供給状態に大きく影響すると考えられる。これらの装置は、加工後の Pt 合金原料回収の再一般金属の混入を避けるため本事業専用を用いた。

実際に形状制御用坩堝として用いる Pt 合金金属を加工する前に、安価な金属(モリブデン、Mo)において加工技術の開発および試作坩堝の作製を行った。

まずは、卓上精密高速旋盤を使用して Mo 金属材料に穴開け加工を行うことで用いるドリル・チップ材料の選定を行った。その後、Mo 金属を用い図面に基いて坩堝の試作を行い、最終的に Pt 合金金属の加工を行った。



図 2-1-1 円柱状結晶育成用 Pt 合金坩堝。

・円柱状圧電結晶育成用坩堝の加工(図 2-1-1)

ダイ部が丸型であるため高速旋盤にて荒加工から仕上げ加工まで1回のチャッキングで加工する事ができた。ダイ部は $\phi 3$  mmで加工を行い、ダイ部に穴を5個空けた。精密な位置決めを行うことにより、各穴の位置がずれることなく加工することに成功した。



・平板状圧電結晶育成用坩堝(穴3個)の加工(図 2-1-2)

ダイ部が角型( $2 \times 8$  mm<sup>2</sup>)であり、マシニングセンターによる加工を行った。径 $\phi 0.5$ の穴を3ヶ所ダイ部に作製した。内側円錐部の角度が鋭角であったが、工具波長に関しては問題なく貫通した。

図 2-1-2 平板状結晶育成用 Pt 合金坩堝。

・チューブ状圧電結晶育成用坩堝の加工

チューブ状圧電結晶育成用坩堝の加工には高速旋盤を用いた。ダイ形状は、外径 $\phi 5$  mm、内径 $\phi 3$  mmのものを作製した。上記 Mo 金属を用いた試作品の作製と同様に他の坩堝形状と異なることなく加工に成功した。

円柱状、平板状、チューブ状の結晶育成が可能な坩堝の作製に成功したため、次に形状制御マルチ単結晶育成が可能な坩堝の作製技術を開発した。図面は、東北大学から提案された坩堝形状を基に作製した。

実際に、Pt 合金インゴットを用いて坩堝を作製する前に、形状制御用坩堝開発でも行ったように安価な Mo 金属を用いてその試作を行った。

・平板状6本マルチ単結晶育成用 Pt 合金坩堝の加工

スリット加工の問題から、ワイヤー加工機でスリット加工する際には、均等に円周上に配置されたダイ部の形状では、位置を出すために割出の装置もしくは割出治具の作製が必要となる。これは、装置購入のコストや治具作製の時間を要することを意味している。実際の作製においては、ダイ部が上手く平板状の形状になったとしても穴明けのスリット部分で治具が曲がって入ったりするなどしたため、加工の最適条件を把握した後、全体の加工を行った。6ヶ所の位置出しが可能な治具を作製して加工を行った結果、精密なダイ部位置出しを行った坩堝の開発に成功した。

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鑄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。このダイ部の交換工程の確立によって、坩堝1個当たり100万円以下の製造コストを達成できた。

## 2-2 ランガサイト型形状制御結晶育成用の小型高周波発振機の開発

これまでの $\mu$ -PD法で用いられてきた既存高周波発振器はおおよそ20 kWと大型で出力が大きく、その実用化には装置コストが大幅に必要とされていた。特に、本研究で目的としているランガサイト型圧電結晶は融点が最高でも1500°C程度であり、使用するPt合金坩堝も加熱温度1400°Cでの既存発振器の出力が4.6 kWと出力に十分余裕がある状態であった。余剰出力はエネルギーロスも発生し、省エネの見地からも不利である。さらに、形状制御ランガサイト型圧電結晶を量産化するには、事業施設に複数台の本装置を設置しなければならず、可能な限り1台当りに要する設置面積の縮小化を望まれている。従って、本項目では、ランガサイト型形状制御結晶育成用の低価格で小型な高周波発振機を開発を目的とした。

ランガサイト型形状制御結晶育成用の高周波発振機を開発するには、まず、最も結晶育成において重要となる坩堝の加熱状態を検討した。高周波誘導加熱においては、坩堝の加熱には高周波誘導コイルを用いる。従来は、内径 $\phi$ 120 mm程度の大きなコイル径のものを使用していたが、これまでの実験結果から推察すると加熱源(坩堝)とコイルとのクリアランスが大きいために効率良く加熱できていなかった。これは、より大きな出力を有する高周波発振機が必要になることを意味している。

そこで、本事業では、より加熱源とコイルとのクリアランスを小さくするために、TDK社、東北大学とともにそのコイル形状に関して検討を行った結果、コイル径を $\phi$ 100 mm程度まで小さくした。実際に作製した高周波誘導コイルが図2-2-1である。

この高周波誘導コイルを用いて実際に加熱実験を行った。加熱源にはPt坩堝を用いた。高周波を誘導した結果、図2-2-2に示すように坩堝が十分に加熱されている様子が確認できた。コイル径を小さくし、ターン数を増加したことにより効率良く坩堝が加熱されたことが分かった。

結晶育成には発振器出力の微調整が必要であるために、大きすぎる出力の発振機では形状制御が逆に困難になる。そこで、まずはランガサイト型圧電結晶が育成するのに適正な出力を検討した。適正な出力の設定は、これまでの既存高周波装置に



図 2-2-1 新たに開発した高周波誘導コイル。

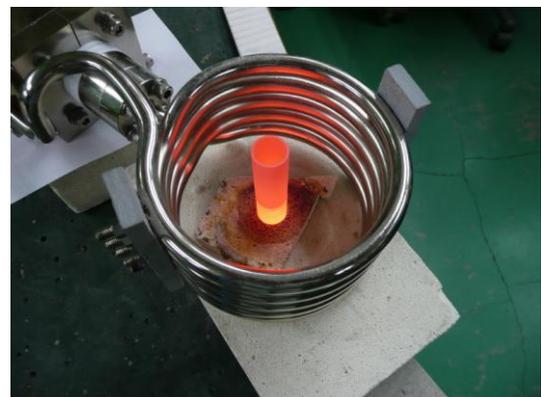


図 2-2-2 高周波誘導コイルを用いて行った加熱実験。加熱源にはPt坩堝を使用した。

において余分に使用していた電力量の低下やエネルギーロスの低減が期待できる。

既存高周波装置(KNTB-2030)では、定格出力が 20 kW であったが、これまでの育成実験中に使用した出力等から実際に必要な定格出力は 8 kW 程度であることが推察された。これは、将来的に坩堝の形状が変化した時に対応出来る分の余裕のある出力設定となっている。そこで、本事業で開発する高周波発振器は 8 kW にすることに決定した。

高周波発振機の出力が 20 kW 仕様から 8 kW 仕様に変更となったため、それに伴い各部品も変更となった。そのため、新たにそれらの部品のレイアウトを細部に渡って検討することによって、さらなる小型化を実現した。各部品の配線を行う際には、ロスが最小になるよう、配線が最短になる部品配置に考慮した。また、各部品の選定を行うことによって低コスト化も実現した。

本事業における開発の結果、形状制御ンガサイト型圧電結晶が育成可能な高周波発振機の開発に成功した。さらに、発振機の小型化に関しては、適切な出力、コイル形状、装置内レイアウト等の再設計、制御系との一体化、回路変更等により約 1/2 の低減を達成した。さらに、適切な出力の設定に伴って、既存の高周波発振機の出力から 3kWh(33%)もの省電力化となった。低価格化に関しても、既存の高周波発振機の販売価格であった 500 万円から、販売価格が大幅に低減でき、新たに開発した高周波発振機は、目標とした 300 万円/台を下回る 270 万円/台となった。

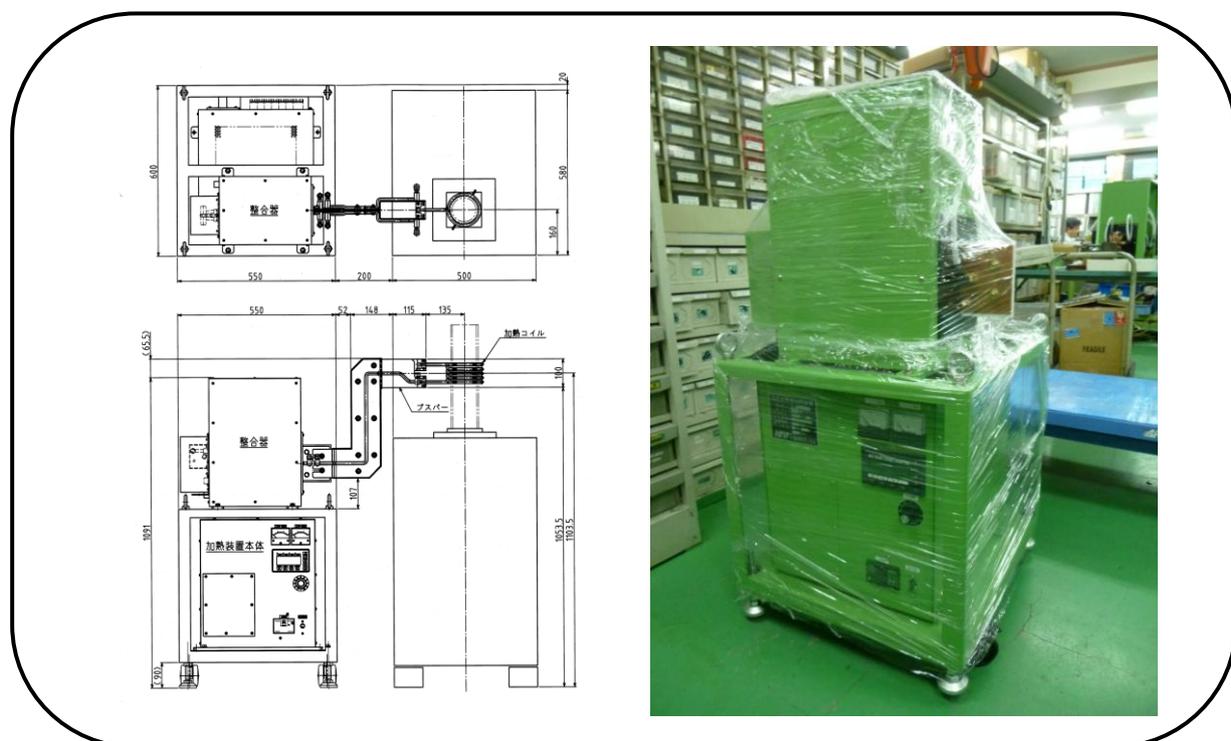


図 2-2-3 新たに開発した高周波電源と整流器の設置図面と装置外観。

## 2-3 ランガサイト型形状制御結晶育成用の $\mu$ -PD 装置の開発

### ・ $\mu$ -PD 装置の低コスト化

2-1、2-2 ではランガサイト型圧電結晶の形状制御結晶育成用坩堝および高周波発振機を開発したため、本項目ではランガサイト型形状制御単結晶が育成可能な低価格 $\mu$ -PD 装置を設計・開発する。1000 万円/台(高周波発振器含む)で販売可能な $\mu$ -PD 装置の開発を目標とする。既存の $\mu$ -PD 装置は、約 2000 万円/台(高周波発振器含む)の販売価格であったため目標価格の達成のためには大幅な装置、仕様の変更が必要となる。そこで、目標価格を達成するための下記項目の低コスト化を行った。

- (1) 真空排気ユニット
- (2) 駆動モーター
- (3) 冷却水配管系統削減
- (4) 加熱コイル
- (5) タッチパネル、制御部品
- (6) z 軸引き下げ機構(図 2-3-4)
- (7) 架台構造見直しによる形状変更設計 (軽量化)
- (8) 加工部品見直しによる単純形状変更設計

上記の各項目の他にも、材質、強度見直しによる変更設計を行うことで、部品点数を減らすことを試みた。以上のコストダウン設計を行ったことにより、加工部品費、購入部品費、組立調整費が大幅に削減することが可能となった。

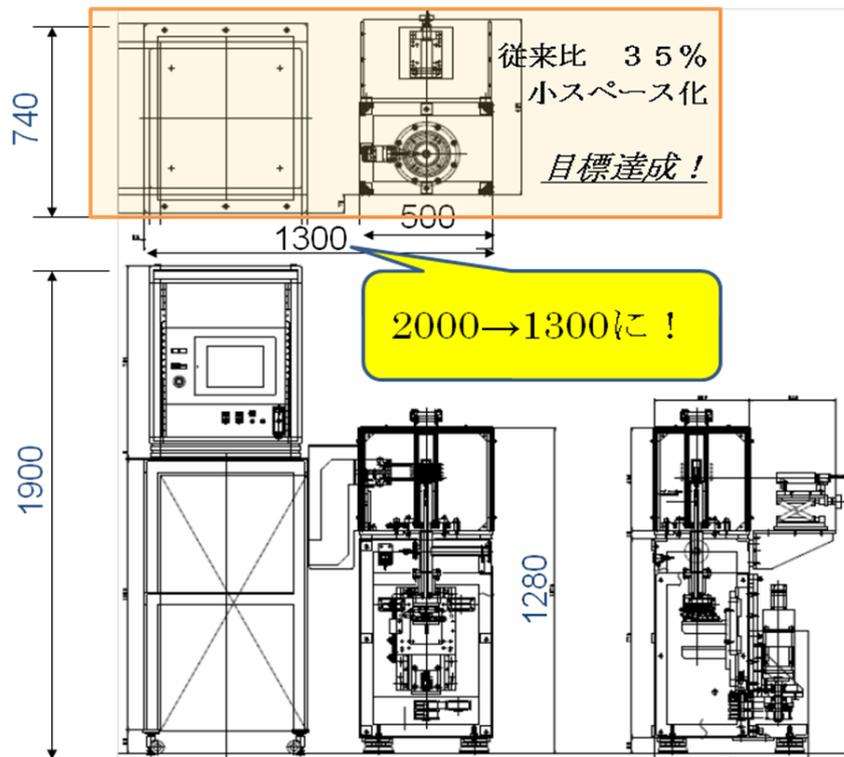


図 2-3-1 新たに開発した $\mu$ -PD 装置の設置図面。

## ・安全対策

$\mu$ -PD 装置は、加熱部が最高 2000℃まで昇温されるため、加熱コイル配管内を冷却水が循環して、加熱源から発せられる輻射熱から加熱コイル部品を保護する構造となっている。冷却水は冷却水循環装置から供給されているが、停電時に循環装置が停止すると、加熱コイル配管内に水が滞留した状態になり、高温状態に晒された場合、最悪コイルから水が漏れ高温部品に接触し水蒸気爆発を起こす恐れがある。特に、本事業期間内に発生した東日本大震災においては、本事業の開発拠点が東北大学であったこともあり、大事故には至らなかったものの既存の $\mu$ -PD 装置も大きな損傷を受けた。そこで、災害時における停電対策は重要であると判断し、当初の開発目標に加えて新たに安全対策についても検討した。



図 2-3-18 開発した $\mu$ -PD 装置の外観

## ・他社製品とのベンチマーク

本事業で開発した $\mu$ -PD 装置の他社製品との比較を行った。他社製品と比較して最も大きく上回っている点としては、販売価格が挙げられる。本事業で開発した $\mu$ -PD 装置は、当初の開発目標であった 1000 万円/台以下の販売価格を達成できたため、他社製品の販売価格である 1800 万円/台を大きく下回った。また、製品の低コスト化、簡素化を達成できたため、装置納期も 2.5 カ月まで短縮できることとなった。これは、他社の約 4 カ月以上に勝っている。

本事業における開発の結果、形状制御ンガサイト型圧電結晶が育成可能な $\mu$ -PD 装置の開発に成功した。さらに、 $\mu$ -PD 装置の低価格化に関しては、真空排気ユニットの削除、駆動部の変更、冷却水配管系統削減、タッチパネル等の変更などにより大幅な販売価格の低減を可能にした。これにより、開発目標としていた販売価格 1000 万円/台を下回る 980 万円/台を達成した。

## 2-4 $\mu$ -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、2-1, 2-2, 2-3 で開発した形状制御結晶育成用 Pt 合金坩堝、高周波発振器、 $\mu$ -PD 装置を用いてランガサイト型圧電結晶の育成を行った。

その結果、図 2-4-1 示した円柱状の  $\text{Ca}_3\text{NbGa}_3\text{Si}_2\text{O}_{14}$  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。

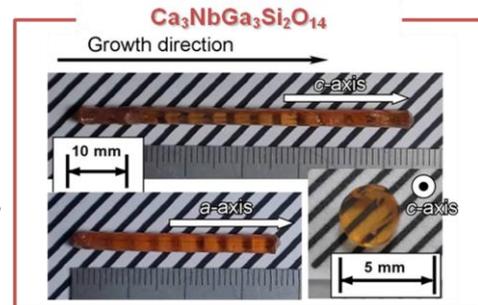


図 2-4-1  $\mu$ -PD 法で作製した円柱状  $\text{Ca}_3\text{NbGa}_3\text{Si}_2\text{O}_{14}$  単結晶。

さらに、 $\text{Ca}_3\text{TaGa}_3\text{Si}_2\text{O}_{14}$ ,  $\text{Sr}_3\text{NbGa}_3\text{Si}_2\text{O}_{14}$ ,  $\text{Sr}_3\text{TaGa}_3\text{Si}_2\text{O}_{14}$ ,  $\text{La}_3\text{Ta}_{0.5}\text{Ga}_{5.5}\text{O}_{14}$  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。 $\text{Ca}_3\text{NbGa}_3\text{Si}_2\text{O}_{14}$  と同様に  $\phi 3\text{mm}$  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  $\text{Ca}_3\text{NbGa}_3\text{Si}_2\text{O}_{14}$  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。

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 線ロックンングカーブ測定を行った(図 2-4-2)。

$\text{Ca}_3\text{NbGa}_3\text{Si}_2\text{O}_{14}$ ,  $\text{Ca}_3\text{TaGa}_3\text{Si}_2\text{O}_{14}$ ,  $\text{Sr}_3\text{NbGa}_3\text{Si}_2\text{O}_{14}$ ,  $\text{Sr}_3\text{TaGa}_3\text{Si}_2\text{O}_{14}$  の円柱状単結晶は、すべての XRD ピークの半値幅が  $100\text{arcsec}$  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。

育成した結晶の組成分析には、切断面をまず走査型電子顕微鏡(SEM)で観察し、

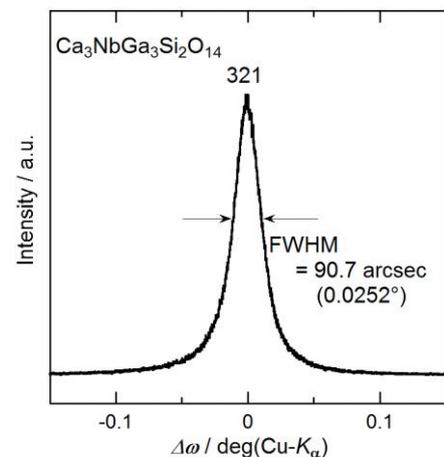


図 2-4-2 円柱状  $\text{Ca}_3\text{NbGa}_3\text{Si}_2\text{O}_{14}$  単結晶の X 線ロックンングカーブ。

観察面のエネルギー分散型 X 線(EDX)分析を行った(図 2-4-3)。SEM 像からは結晶の中央部分においては目立った異相の存在は確認されなかった。また、結晶の中央部分の EDX スペクトルからは、目的とする組成の元素のみのスペクトルが検出され、他の不純物元素は確認されなかった。

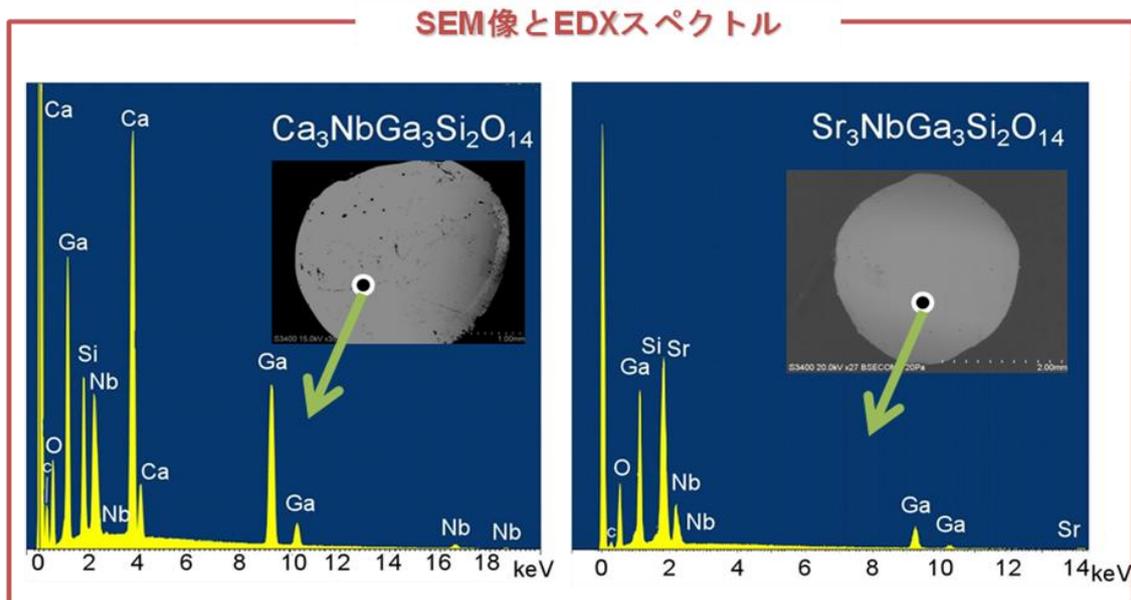


図 2-4-3 円柱状  $\text{Ca}_3\text{NbGa}_3\text{Si}_2\text{O}_{14}$ ,  $\text{Sr}_3\text{NbGa}_3\text{Si}_2\text{O}_{14}$  単結晶の SEM 像と EDX スペクトル。

$\text{Ca}_3\text{NbGa}_3\text{Si}_2\text{O}_{14}$  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。その結果、 $d_{12} = 3.97 \text{ pC/N}$  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  $550^\circ\text{C}$  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。

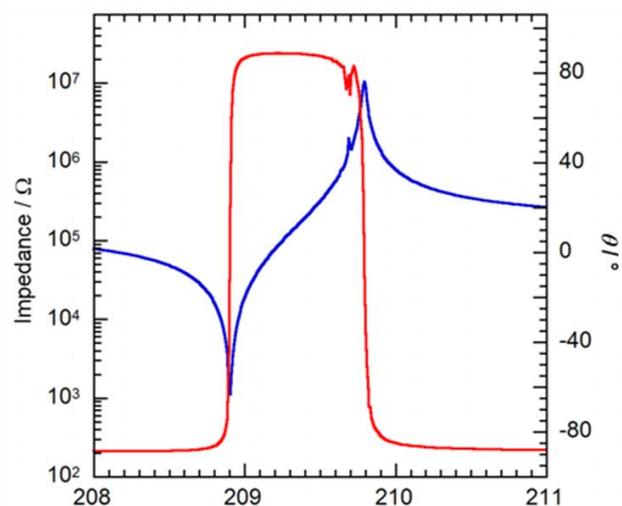


図 2-4-4 形状制御  $\text{Ca}_3\text{NbGa}_3\text{Si}_2\text{O}_{14}$  結晶の圧電定数測定。

電気抵抗率の温度依存性では、 $200\sim 600^\circ\text{C}$  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、 $500^\circ\text{C}$  における電気抵抗率で比較しても約  $10^8 \Omega\text{cm}$  の値を示した。

以上の結果から、 $\mu\text{-PD}$  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、2-1 で青山精工と共同で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、 $1 \times 3 \text{ mm}^2$  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  $\text{Ca}_3\text{NbGa}_3\text{Si}_2\text{O}_{14}$  を用いた。結晶育成後の結晶は、断面がほぼ  $1 \times 3 \text{ mm}^2$  の形状を有しており、平板状の  $\text{Ca}_3\text{NbGa}_3\text{Si}_2\text{O}_{14}$  結晶の育成に成功した(図 2-4-5)。育成した結晶の結晶性を X 線ロックングカーブにより測定した結果、高い結晶性を示した。

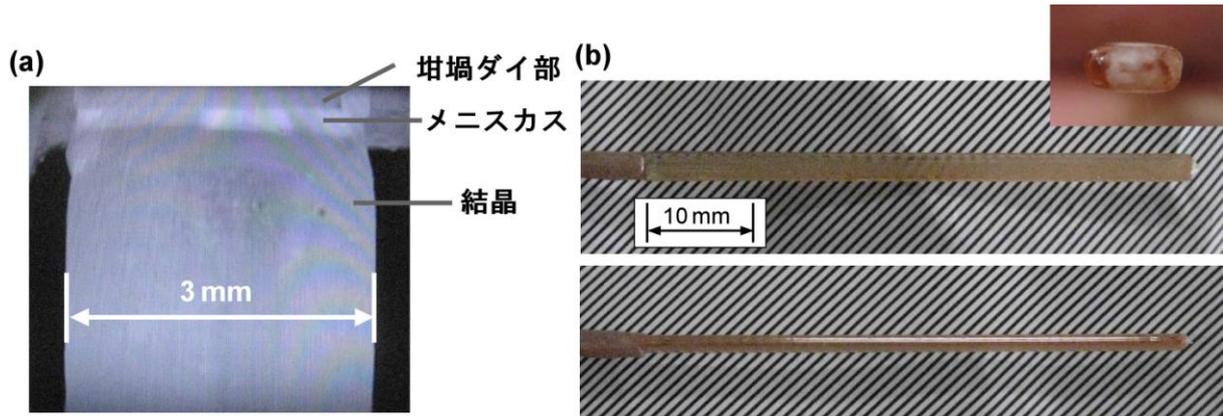


図 2-4-5 (a) 平板状  $\text{Ca}_3\text{NbGa}_3\text{Si}_2\text{O}_{14}$  結晶の育成中の固液界面。(b) 育成した平板状  $\text{Ca}_3\text{NbGa}_3\text{Si}_2\text{O}_{14}$  結晶。

チューブ状のランガサイト型圧電結晶の結晶育成では、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結晶引き下げをおこなったところ図 2-3-6 のようなチューブ状形状制御  $\text{Ca}_3\text{NbGa}_3\text{Si}_2\text{O}_{14}$  結晶の育成に成功した。



図 2-4-6 育成したチューブ状  $\text{Ca}_3\text{NbGa}_3\text{Si}_2\text{O}_{14}$  結晶。

### 第3章 全体総括

本事業で目標とした、ランガサイト型圧電結晶の形状制御単結晶育成に特化した低価格 $\mu$ -PD 装置の開発および、その開発した $\mu$ -PD 装置による形状制御ランガサイト型圧電結晶の製造技術の開発はほぼ達成できたと言える。

ランガサイト型形状制御結晶育成用の坩堝の設計・開発では、青山精工社・東北大学・TDK社の連携により、難加工性であった Pt 合金の加工技術を新たに確立し、さらに形状制御用坩堝の開発に成功した。特に、本事業で開発した坩堝ダイ部の着脱機構は、形状制御育成に用いる坩堝のコストを大幅に低減可能な技術であり、現在特許化を検討中である。

ランガサイト型形状制御結晶育成用の小型高周波発振機の開発では、高周波ネッスル社・秋田精工社・TDK社の連携により、これまで約 500 万円の販売価格であった高周波発振器の回路設計や出力の最適化を行うことにより 200 万円以下の販売価格を達成した。さらに、 $\mu$ -PD 装置制御部との一体化による設置面積の大幅な低減は、今後ランガサイト型圧電結晶の量産体制を確立する際の設置面積低減に大きく貢献ことが予想される。また、高周波出力の最適化は同時に省エネ効果ももたらしたため、本事業の成果は、製品実用化における電力コストの低減にも寄与する。

ランガサイト型形状制御結晶育成用の $\mu$ -PD 装置の開発では、秋田精工社・東北大学・TDK社の連携により、形状制御したランガサイト型圧電結晶が育成可能な $\mu$ -PD 装置において 1000 万円以下の販売価格を達成した。本装置は海外からの購入依頼も既に複数受けており、チェコの研究機関との仕様打合せが現在行われている。

$\mu$ -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では、東北大学・TDK社の連携により、円柱状、板状、チューブ状の様々なランガサイト型圧電結晶の育成に成功した。さらに、これらの形状制御ランガサイト型圧電結晶は、従来の結晶育成方法であったチョクラルスキー法で育成したランガサイト型厚手結晶とほぼ同等の性能を示すことが確認できた。現在では、既にこれらの形状制御ランガサイト型圧電結晶を用いて TDK 社とともに燃焼圧センサーの試作器開発を行っている。残念ながら、目標としていたマルチ単結晶の育成には失敗したが、新たな種結晶形状を開発し育成を行ったことで、その育成にはさらなる坩堝の設計・開発が必要となることが明らかとなった。今後は、形状制御ランガサイト型圧電結晶の量産化に向けてマルチ単結晶育成技術の確立をさらに進めていく。