

点群  $m$  に属する圧電結晶の材料定数評価と  
弾性表面波特性に関する研究

清水 寛之

2006年3月

奈良先端科学技術大学院大学

物質創成科学研究科

# 目次

<b>第1章 序論</b> . . . . .	<b>1</b>
1.1 点群と材料定数 . . . . .	1
1.2 点群 $m$ に属する希土類カルシウムオキシボレート結晶 . . . . .	2
1.3 研究目的 . . . . .	5
1.4 本論文の構成 . . . . .	8
参考文献 . . . . .	10
<b>第2章 点群 <math>m</math> に属する圧電結晶の材料定数評価方法の確立</b> . . . . .	<b>13</b>
2.1 緒言 . . . . .	13
2.2 圧電性と材料定数の座標変換 . . . . .	13
2.2.1 圧電効果と圧電基本式 . . . . .	13
2.2.2 材料定数とオイラー角によるその座標変換 . . . . .	19
2.3 点群 $m$ における材料定数評価方法の検討とその確立 . . . . .	25
2.3.1 単斜晶系における材料定数 . . . . .	25
2.3.2 Warren P. Mason による点群 2 の材料定数評価方法 . . . . .	26
2.3.3 点群 $m$ の材料定数評価に必要なカットと振動モード . . . . .	28
2.4 結言 . . . . .	42
参考文献 . . . . .	43
<b>第3章 希土類カルシウムオキシボレート結晶の材料定数評価</b> . . . . .	<b>45</b>
3.1 緒言 . . . . .	45
3.2 バルク単結晶の作製とその諸特性評価 . . . . .	45
3.2.1 作製方法と作製結果 . . . . .	45
3.2.2 作製結晶の結晶学的評価 . . . . .	52
3.2.3 結晶軸と圧電軸 . . . . .	58
3.3 確立した評価方法を適用しての材料定数評価 . . . . .	66
3.3.1 共振子の作製方法 . . . . .	66
3.3.2 共振 - 反共振法 . . . . .	67
3.3.3 誘電率の評価 . . . . .	71
3.3.4 弾性定数と圧電定数の評価 . . . . .	74
3.3.5 材料定数算出の精度 . . . . .	117
3.4 材料定数の温度特性 . . . . .	127
3.4.1 誘電率の温度係数の算出 . . . . .	129
3.4.2 弾性定数と圧電定数の温度係数の算出 . . . . .	132
3.4.3 熱膨張係数の評価 . . . . .	134
3.5 結言 . . . . .	138
参考文献 . . . . .	140

第4章 希土類カルシウムオキソボレート結晶の弾性表面波特性の 実験的・理論的検証	143
4.1 緒言	143
4.2 弾性表面波特性の実験的評価	144
4.2.1 楕形電極の作製	144
4.2.2 測定原理	146
4.2.3 弾性表面波特性の測定とその結果	149
4.2.4 弾性定数と実測の伝搬速度	159
4.3 材料定数を用いての弾性表面波特性の理論的評価	161
4.3.1 計算機解析の結果と測定値との比較	161
4.3.2 全方位計算による最適伝搬方位の探索	169
4.4 結言	175
参考文献	177
第5章 結論	179
付録	182
A.1 材料定数の対称性と代表的圧電結晶の材料定数	183
A.2 32 晶族の記号とその諸性質	193
A.3 歪みと応力の関係	194
A.4 本論文中で使われている機械的・電気的諸定数の意味	202
A.5 圧電基本式の諸形式と定数相互の関係	203
A.6 各種振動モードと軸の関係ならびに算出式	205
A.7 点群 $m$ における物理的変数とオイラー角との関係	210
A.8 圧電振動子の横効果と縦効果	219
A.9 板状共振子を用いた圧電定数 $d_{11}$ と $d_{33}$ の評価方法	220
A.10 X 線回折実験の光学系	221
A.11 弾性表面波特性の計算機解析の原理	222
参考文献	225
謝辞	228
研究業績	230

# 第 1 章 序論

## 1.1 点群と材料定数

物質に歪みまたは応力を加えると電荷が誘起され(正効果)、逆に電圧を加えると歪みまたは応力が生じる(逆効果)現象を総称して圧電効果(piezoelectric effect)と言い、歴史的には電気石について正効果が 1880 年にキュリー兄弟(J. Curie, P. Curie)により発見され、翌年リップマン(Lippmann)により逆効果が見出されたと言われている。圧電正効果の原因は、歪みに伴い物質の分極状態が変化することであり、逆効果は外部から印加した電界が分極に作用して応力を生じさせることにある。圧電性媒質に交流電界を加えると、逆効果により交流歪みが生じるため、それが波動(弾性波)となって媒質を伝搬する。また、圧電性媒質中に弾性波が伝わると、その弾性波に伴う歪みから圧電効果を介して交流電圧を取り出すことができる。このような圧電性を介した電気系と機械振動系との結合を利用した電気機械変換素子(弾性波素子)は、現今の情報通信分野に用いられる電子部品の主流になっている。それらに使用されている主要な圧電材料としては、水晶、ニオブ酸リチウム(LiNbO<sub>3</sub>: LN)、タンタル酸リチウム(LiTaO<sub>3</sub>: LT)、四ホウ酸リチウム(Li<sub>2</sub>B<sub>4</sub>O<sub>7</sub>: LBO)、ランガサイト(La<sub>3</sub>Ga<sub>5</sub>SiO<sub>14</sub>: LGS)などの単結晶材料および酸化亜鉛(ZnO)、窒化アルミニウム(AlN)、ダイヤモンド/圧電複合薄膜などの圧電性薄膜がある。

これらの圧電材料が実用デバイスに至った理由は様々であるが、そのうちの 1 つとして、圧電材料の物理定数、即ち“材料定数”が詳細に調べられたことが挙げられる。材料定数とは圧電結晶の本質を捉えるテンソル量であり、弾性定数(4 階テンソル)、圧電定数(3 階テンソル)、誘電率(2 階テンソル)がある。付録 A.1 にあるように、そのマトリックス成分は圧電結晶の属する点群により決まり、その評価方法(結晶のカットや振動モード)も同様に、点群により異なる。圧電性を示す結晶は 32 点群のうち 20 点群である<sup>1, 2)</sup>。これまで結晶構造の判明している約 9000 種の無機と有機の結晶のうち、対称中心を持たない結晶が約 2800 種あり、その中で約 2500 種の結晶に圧電性が見出されている<sup>3)</sup>。その 20 種の点群と代表的な圧電結晶を表 1.1 に示す<sup>4)</sup>。ここで、点群の表記にはヘルマン・モーガン記号(Hermann-Mauguin, 国際記号)を用いている。各点群における材料定数の数は低対称のものほど多く、特に単斜晶系(点群 2 と点群 *m*)と三斜晶系(点群 1)では、他と比べその数が非常に多い。表の灰色部分に示した圧電結晶は、現在の移動体通信分野を支える主たる弾性波素子用圧電結晶である。点群 32 に属する水晶は音速の零温度係数を有する一方、電気機械結合係数が小さいため、発振子や狭帯域デバイスに用いられている。また、点群 3*m* に属する LN は大きな電気機械結合係数を有する一方、音速の温度依存性が比較的大きいため、広帯域デバイスに適している。同 3*m* の LT や点群

4mm の LBO はそれらの中間的な材料特性を有する<sup>5)</sup>。このように優れた特性を有する現在の主要な弾性波素子用圧電結晶は、すべて斜方晶系より高い対称性である点群  $mm2$ 、 $4mm$ 、 $32$ 、 $3m$  に属することがわかる。これらの点群における材料定数の評価方法(結晶のカットや振動モード)はもちろんのこと、圧電性を有する点群 20 種のうち点群 1 および  $m$  以外の材料定数の評価方法が、1946 年という戦後翌年にも Warren P. Mason により既に体系化されている<sup>6)</sup>。このため、各評価方法に基づくこれらの材料定数の決定が、これまで多くの研究者によりなされてきている<sup>6-13)</sup>。表 1.1 に示す圧電結晶の諸性質については、付録 A.1 を参照されたい。

表 1.1 圧電性のある 20 種の点群と代表的な圧電結晶

結晶系	圧電性のある点群	種類	代表的な圧電結晶	材料定数の数
三斜晶系	1	1 種類		点群 1: 45 個
単斜晶系	$2, m$	2 種類	2: 酒石酸アンモニウム ((NH <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> C <sub>4</sub> H <sub>4</sub> O <sub>6</sub> )	点群 2: 25 個 点群 $m$ : 27 個
斜方晶系	$222, mm2$	2 種類	$mm2$ : ニオブ酸カリウム (KNbO <sub>3</sub> : KN)	点群 $mm2$ : 17 個
正方晶系	$4, 422, \bar{4}, 4mm, 42m$	5 種類	$4mm$ : 四ホウ酸リチウム (Li <sub>2</sub> B <sub>4</sub> O <sub>7</sub> : LBO)	点群 $4mm$ : 11 個
三方晶系	$3, 32, 3m$	3 種類	32: 水晶 ( $\alpha$ -SiO <sub>2</sub> )	点群 32: 10 個
			32: ランガサイト (La <sub>3</sub> Ga <sub>5</sub> SiO <sub>14</sub> : LGS)	
			3m: ニオブ酸リチウム (LiNbO <sub>3</sub> : LN)	点群 3m: 12 個
			3m: タンタル酸リチウム (LiTaO <sub>3</sub> : LT)	
六方晶系	$6, \bar{6}m2, \bar{6}, 622, 6mm$	5 種類	$6mm$ : 酸化亜鉛 (ZnO)	点群 $6mm$ : 10 個
立方晶系	$23, \bar{4}3m$	2 種類	23: BGO (Bi <sub>12</sub> GeO <sub>20</sub> )	点群 23: 5 個

## 1.2 点群 $m$ に属する希土類カルシウムオキソボレート結晶

現今の情報通信分野に用いられる主要な電子部品として弾性波素子があることを前節で述べた。弾性波素子は、体積波(バルク波)用と弾性表面波(Surface Acoustic Wave: SAW)用に分類することができる。特に SAW 素子は、近年、携帯電話用の RF フィルタとして、その分野の重要な役割を担っている。SAW 素子の実用化はカラーテレビ用の IF フィルタに端を発し、1970 年代後半に LN、LT に関して実現した<sup>14, 15)</sup>。これには LN の基礎特性に関する研究の功績が大きいと言われている<sup>16, 17)</sup>。現在の SAW 素子用の主要材料である LN、LT、LBO は、圧電結晶であると同時に、優れた非線形光学効果を示す光学結晶でもある。SAW 素子用圧電結晶として以外に、LN、LT は第 2 次高調波発生、光パラメトリック発信に対しての非線形材料などとしても広く利用され、LBO は YAG レーザの第 2・第 3・第 4・第 5 次

高調波発生や、可視光波長領域におけるレーザ光の第2次高調波などの高出力紫外光源としても利用されている。

近年、優れた非線形光学効果を有し光学結晶として注目されている結晶に、希土類カルシウムオキソボレート( $RCa_4O(BO_3)_3$  ( $R = La\sim Lu, Y$ ); 以下、RCOB)がある。RCOB結晶は優れた非線形光学効果を有することから、1990年代初頭の同結晶の発明から波長変換素子を目指した研究が盛んに行われている。最初は、1991年ロシアのT. N. Khamaganovaらによる、 $SmCa_4O(BO_3)_3$ の結晶育成ならびにその結晶構造に関する報告であった<sup>18)</sup>。さらにその翌年には、R. Norrestamらにより希土類サイト(以下、 $R$ サイト)を他の元素で置換した一連の結晶の構造について報告がなされた<sup>19)</sup>。1996年にはフランスのG. Akaらが $GdCa_4O(BO_3)_3$ (以下、GdCOB)結晶の非線形光学効果に注目し、この材料の非線形光学定数 $d_{eff}$ が $0.78\text{ pm/V}$ であり、それがNd:YAGレーザの第2次高調波発生に適することを報告した<sup>20, 21)</sup>。これ以降、世界中で活発に研究が行われ始め、1997年には大阪大学の岩井らが $YCa_4O(BO_3)_3$ (以下、YCOB)結晶をチョクラルスキー(Czochralski: Cz)法により初めて育成することに成功し、 $d_{eff}$ が $1.12\text{ pm/V}$ を示し、それがNd:YAGレーザの第3次高調波発生に適することを見出した<sup>22)</sup>。1999年には大阪大学の吉村らが $R$ サイトにGdとYを固溶させることにより複屈折率を調節できることを明らかにし、 $Gd_{1-x}Y_xCa_4O(BO_3)_3$ ( $Gd_{1-x}Y_xCOB$ )結晶を育成した<sup>23)</sup>。また、2001年にはアメリカのJ. J. Adamsらが、 $LaCa_4O(BO_3)_3$ (以下、LaCOB)結晶の $d_{eff}$ が $0.52\text{ pm/V}$ であることを報告した<sup>24)</sup>。これらの先行研究から、RCOB結晶が優れた非線形光学効果を有することがわかる。

さて、RCOB結晶は単斜晶系の点群 $m$ (空間群 $Cm$ )に属し、結晶の対称性が低い。実格子空間で $b$ 面に2回対称軸はなく、鏡面のみが存在する。図1.1に示すように、結晶は希土類元素とカルシウムをそれぞれ中心に持つ酸素八面体の酸素をホウ素が架橋した構造をしており、その骨格となるボレート陰イオングループが三角形の $(BO_3)^{3-}$ 平面構造をとる<sup>19, 25)</sup>。希土類元素は結晶格子の稜の位置と中央を占有する底心格子であり、さらに $R$ サイトは種々の異なったサイズの希土類元素により置換できるため空間的に余裕がある。このような構造からRCOB結晶は優れた非線形光学効果を示すと言われており、具体的には、非線形性の大きさと結晶構造との関係がChenにより“陰イオングループ理論”として体系化されている<sup>26)</sup>。

RCOB結晶は非線形光学効果のみならず圧電性も有するため、上記のLNやLTの事例からSAW素子としての興味が持たれる。また、RCOB結晶は、水晶程度(モース硬度7)の適度な硬さを有し<sup>27)</sup>、潮解性がなく、加工面に優れていることが先行研究から伺える。

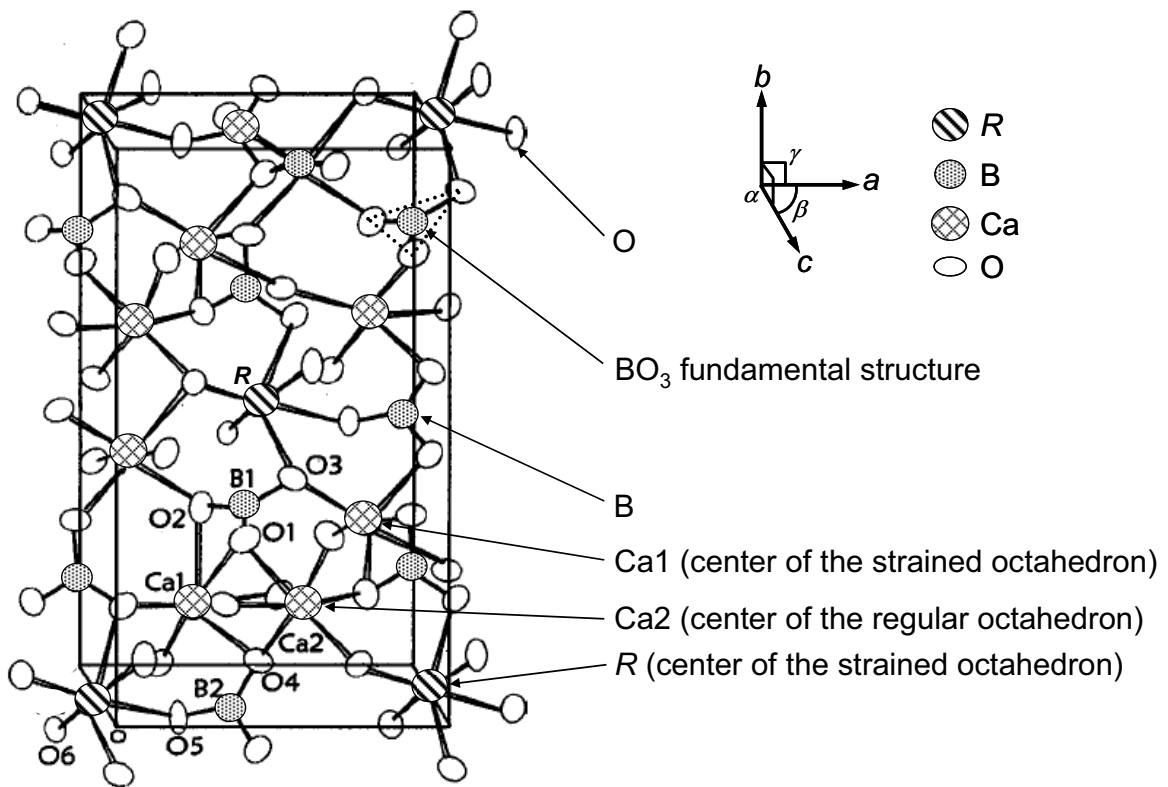


図 1.1 RCOB 結晶の結晶構造. 希土類元素  $R$  とカルシウム  $Ca$  をそれぞれ中心に持つ酸素八面体の酸素  $O$  をホウ素  $B$  が架橋した構造. ポレート陰イオングループが三角形の  $(BO_3)^{3-}$  平面構造

### 1.3 研究目的

前節の背景を踏まえ、本研究では RCOB 結晶の圧電性、SAW 特性に着目した。RCOB 結晶は光学結晶を目指した研究が先行しており、圧電性に関する詳細な報告はほとんどない。筆者の知る限り、本研究に着手する時点で、中国の Jiyang Wang らによる GdCOB 結晶の材料定数に関する報告にとどまっている<sup>28)</sup>。しかし、彼らの報告には、圧電軸の取り方が現在の圧電の規格となっている IEEE Standard on Piezoelectricity<sup>29)</sup> に従っていない点や、実際に算出した定数も圧電定数  $d_{11}$  が負、弾性定数  $s_{12}$  が正などの物理的に違和感のある部分が存在する。1.1 節で述べたとおり、圧電性を有する点群 20 種のうち点群 1 と  $m$  以外の材料定数の評価方法が、Warren P. Mason により体系化されている<sup>6)</sup>。その一方、RCOB 結晶の属する点群  $m$  では、その材料定数の評価方法が確立されていない。単斜晶系は対称性が低く、表 1.1 からわかるように圧電性のある点群は 2 と  $m$  の 2 種類である。このうち点群 2 については Warren P. Mason が文献 30) にその評価方法をまとめている。本研究では Warren P. Mason の提唱した同単斜晶系の点群 2 の評価方法を足がかりに、点群  $m$  におけるその確立を目指す。このことは次に述べる SAW 特性の評価に大きな意味を持つ。

前節で、LN、LT、LBO が優れた非線形光学効果と SAW 特性を併せ持つという事例から、RCOB 結晶の SAW 素子への興味について述べた。SAW 特性の評価には 2 つの方法として実測と理論解析があるが、後者ではそのパラメータとして材料定数を用いる必要がある。しかし、RCOB 結晶の属する点群  $m$  ではその材料定数の評価方法が確立されていないため、圧電性に関する報告はもとより SAW 特性に関する報告も少なく<sup>31, 32)</sup>、その報告も SAW 特性の実測にとどまっている。SAW の最適伝搬方位を見出すためには理論解析が必須であり、そのためにも材料定数やその評価方法の確立が重要となる。しかし、材料定数の評価方法の重要性は、SAW 特性評価のためだけに限ったことではない。1.1 節で述べたように、材料定数は圧電結晶の本質を捉えるテンソル量であることから、点群  $m$  という低対称性圧電結晶の圧電特性評価という点でも、重要かつ有意義なことであると考える。

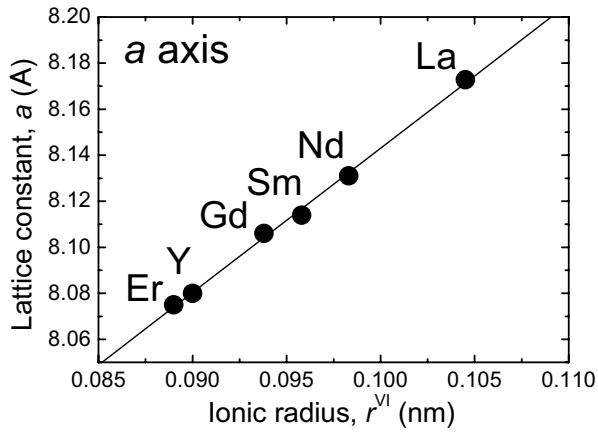
本研究では、点群  $m$  における材料定数評価方法の確立に重点を置き、RCOB 結晶のバルク単結晶作製、確立した評価方法を RCOB 結晶に適用して材料定数とその温度係数を決定すること、SAW 特性の実験的ならびに理論的評価を行い、RCOB 結晶の SAW 素子用圧電結晶としての可能性を探ることを目的とする。ここで、RCOB 結晶の R サイト(酸素 6 配位)には Y と La から Lu までの希土類元素が入り得るが、本研究ではそのうち、R の中でも原料が安価な La を用いた LaCOB( $R = \text{La}$ )結晶、これまでにレーザ結晶として見出された GdCOB 結晶( $R = \text{Gd}$ )ならびに YCOB 結晶( $R = \text{Y}$ )を選択した。それぞれ利点のあるこれら 3 結晶について上記の評価を行い、RCOB 結晶の圧電特性ならびに SAW 特性に関する系統的知見を得る。RCOB 結晶の精密構造解析は、前節で述べたように、1992 年に R. Norrestam らによ



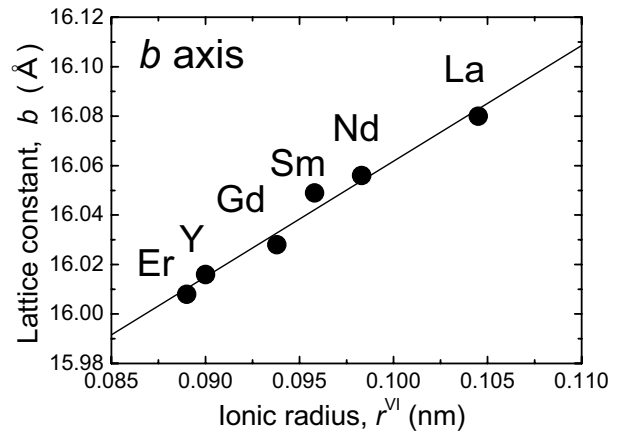
り報告されている<sup>19)</sup>。そこに報告のある構造パラメータ(格子定数  $a, b, c$  と軸角 $\beta$ )を、 $R$  サイトを占有する元素のイオン半径に対してプロットすると図 1.2 のようになる。ここで、 $R$  サイトを占有するイオンは価数 3 価の酸素 6 配位であり、それらのイオン半径については文献 33) の値を引用した。 $R$  サイトを占有する元素のイオン半径が大きな結晶ほど格子定数が大きく、また単斜晶系の軸角 $\beta$  も大きくなることがわかる。このように、 $R$  サイトを占有する元素のイオン半径と各 RCOB 結晶の構造パラメータとの関係が既に見出されている。しかし、圧電性や SAW 特性との関係は筆者の知る限り報告されていない。これらのことを明らかにすることは、材料探索の立場から非常に有意なことである。ここに一つの例として、近年、高速移動体通信方式(Wideband Code Division Access: W-CDMA)基地局用フィルタとして使用されつつある圧電結晶にランガサイト(La<sub>3</sub>Ga<sub>5</sub>SiO<sub>14</sub>: LGS)系圧電単結晶がある。この結晶群では圧電定数  $d_{11}(= d_{12})$  と構成する陽イオンとの関係が見出されている<sup>34)</sup>。このような知見を用いた材料探索により<sup>35-39)</sup>、新規 LGS 系圧電結晶の開発が進み、応用へと至った経緯がある。このことから、RCOB 結晶に関しても系統的知見を得ることの重要性が伺える。

本節の最後に、本研究の目的をまとめる。

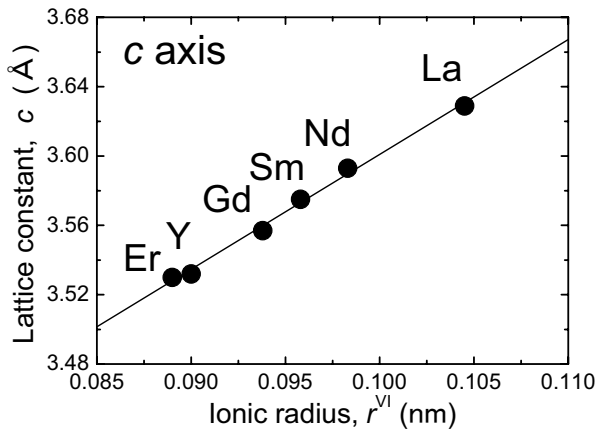
- Cz 法を用いた希土類カルシウムオキソボレート結晶(LaCOB、GdCOB、YCOB)のバルク単結晶作製
- 点群  $m$  における材料定数の評価方法の確立
- 確立した評価方法による希土類カルシウムオキソボレート結晶(LaCOB、GdCOB、YCOB)の材料定数の決定
- 希土類カルシウムオキソボレート結晶(LaCOB、GdCOB、YCOB)に関する SAW 特性の実験的評価ならびに理論解析による SAW 素子用圧電結晶としての評価



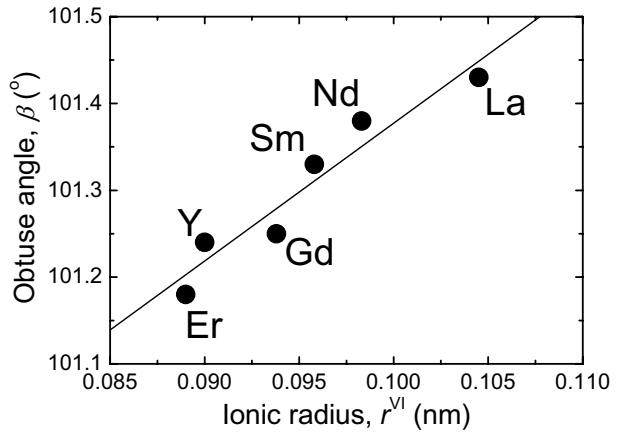
(a) 格子定数  $a$  とイオン半径



(b) 格子定数  $b$  とイオン半径



(c) 格子定数  $c$  とイオン半径



(d) 軸角  $\beta$  とイオン半径

図 1.2  $R$  サイトを占有する元素のイオン半径と各  $RCOB$  結晶の構造パラメータとの関係. (a)格子定数  $a$  とイオン半径, (b)格子定数  $b$  とイオン半径, (c)格子定数  $c$  とイオン半径, (d)軸角  $\beta$  とイオン半径.

## 1.4 本論文の構成

本論文の構成を図 1.3 に示し、その内容を以下にまとめる。

第 1 章「序論」では、RCOB 結晶の SAW 素子への興味について示した。さらに、圧電性を有する点群 20 種のうち点群 1 および  $m$  以外の材料定数の評価方法が Warren P. Mason により体系化されている一方、RCOB 結晶の属する点群  $m$  ではそれが未だに確立されていないことから、その確立が SAW 特性の理論解析にとって不可欠であると同時に、物性研究として重要であることを示した。これより本研究の位置づけ、目的を明確にした。

第 2 章「点群  $m$  に属する圧電結晶の材料定数評価方法の確立」では、点群  $m$  に属する圧電結晶の材料定数の評価に必要なカットと振動モードを確立したことについて述べる。本章ではまず、圧電効果や圧電基本式などの圧電性の基本について概説した後で、材料定数の対称性や弾性波動特性の理論的取り扱いに必要なオイラー角による座標変換について概説する。次に、Warren P. Mason による点群 2 の材料定数評価方法を示し、それを点群  $m$  へ適用した場合に利用可能な振動モードと算出可能な材料定数を検討した結果について述べる。最後に、その結果を踏まえ、点群  $m$  における材料定数の評価に必要なカットと振動モードを確立した結果について述べる。

第 3 章「希土類カルシウムオキシボレート結晶の材料定数評価」では、確立した材料定数評価方法を、点群  $m$  に属する RCOB( $R = \text{La, Gd, Y}$ )結晶の材料定数の評価に実際に適用し、それらの材料定数と材料定数の温度係数、熱膨張係数を決定したことについて述べる。本章ではまず、材料定数評価に用いたバルク単結晶の作製ならびに結晶軸と圧電軸の関係について述べた後で、材料定数評価のための圧電特性の測定原理、共振 - 反共振法について概説する。最後に、各結晶の材料定数、その温度係数ならびに熱膨張係数を評価した結果について述べる。

第 4 章「希土類カルシウムオキシボレート結晶の弾性表面波特性的実験的・理論的検証」では、RCOB( $R = \text{La, Gd, Y}$ )結晶の SAW 素子用圧電結晶としての可能性を探るため、実験的ならびに理論的評価を行ったことについて述べる。実験的評価では、楕形電極の作製ならびに測定原理として Smith の等価回路モデルについて述べた後で、各結晶の基本カット面におけるレイリー波(Rayleigh SAW: RSAW)ならびに漏洩弾性表面波(Leaky SAW: LSAW)の伝搬特性の測定結果を示す。理論的評価では、応用的観点から電極設計が容易な RSAW に関して、各結晶の基本カット面におけるその伝搬特性の計算機解析結果を示し、実測値との比較結果について述べる。また、基本カット面のみならず全方位に関して RSAW 伝搬特性の計算機解析を行い、最適伝搬特性が得られるカット面・伝搬方位を探り、既存材料との特性比較を行った結果について述べる。

最後に第 5 章「結論」で、本研究で得られた主要な成果をまとめて結論とし、今後の課題と展望について述べる。

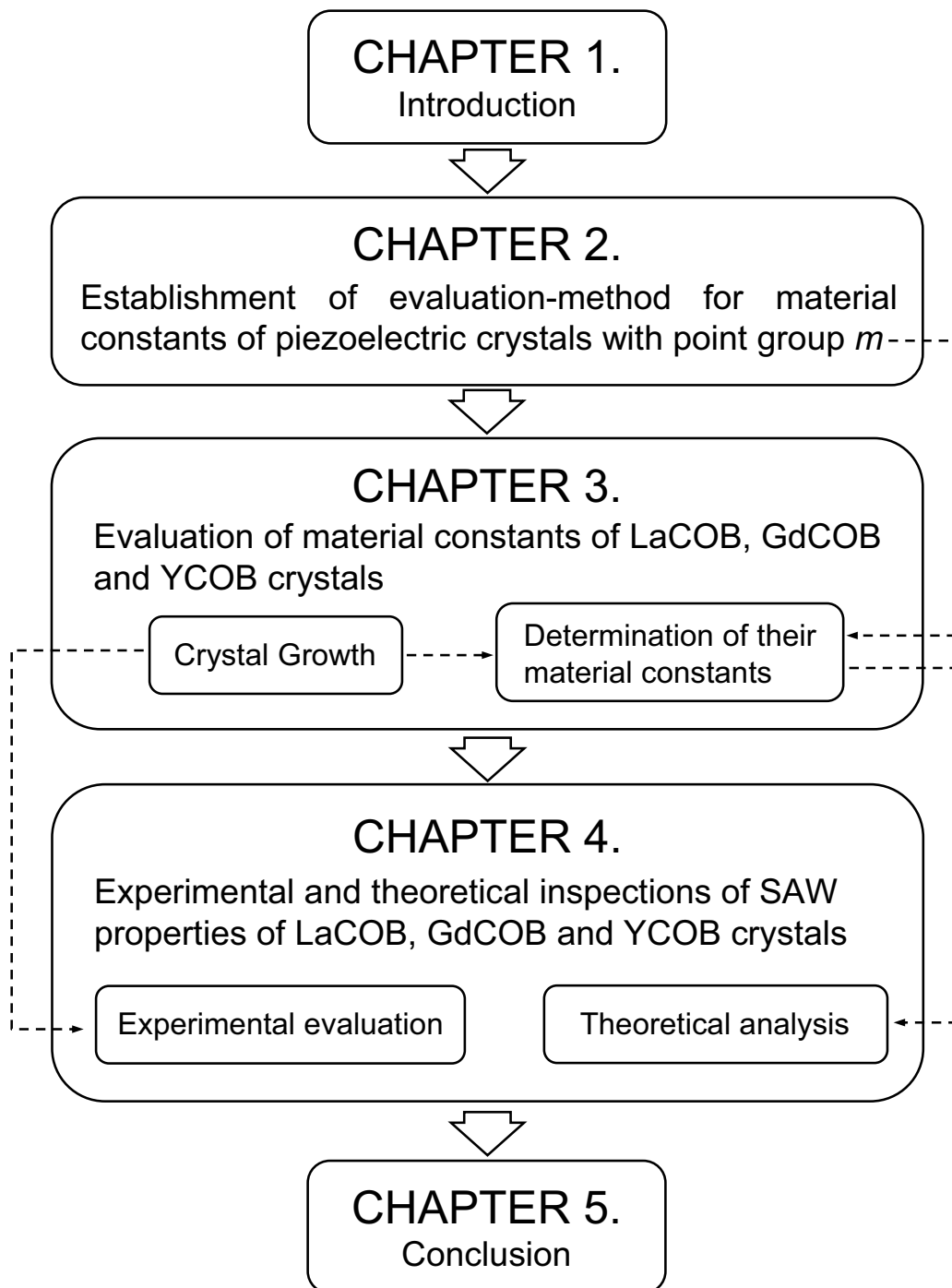


図 1.3 本論文の構成. 点線矢印は実験の流れを表す.

## 参考文献

- 1) 池田拓郎・著: “圧電材料学の基礎”, オーム社 (1984).
- 2) T. Ikeda: “Fundamentals of Piezoelectricity”, Oxford University Press (1996).
- 3) 日本電子工業振興会・編: “表面弾性波素子材料データブック”, 53-M-131, 社団法人 日本電子工業振興協会 (1978).
- 4) 兒島俊弘・著: “圧電材料のはなし”, J. Med. Ultrasonics, Vol. 30, No. 2, pp. 171-190 (2003).
- 5) 日本学術振興会弾性波素子技術第 150 委員会・編: “弾性波デバイス技術”, オーム社, p. 76 (2004 年).
- 6) Warren P. Mason: “Piezoelectric Crystals and Their Application to Ultrasonics”, D. Van Nostrand Company, Inc., Princeton, New Jersey, New York (1950).
- 7) I. Koga and M. Aruga: “Theory of Plane Elastic Waves in a Piezoelectric Crystalline Medium and Determination of Elastic and Piezoelectric Constants of Quartz”, Phys. Rev., Vol. 109, p. 1467 (1958).
- 8) J. Kushibiki, I. Takanaga and S. Nishiyama: “Accurate Measurements of the Acoustical Physical Constants of Synthetic  $\alpha$ -quartz for SAW Devices”, IEEE Trans. UFFC, Vol. 49, No. 1, p. 125 (2002).
- 9) R. Bechmann, A. D. Ballato and T. J. Lukaszek: “Higher-Order Temperature Coefficients of the Elastic Stiffness and Compliances of Alpha-Quartz”, Proc. IRE, Vol. 50, pp. 1812-1822 (1962).
- 10) B. J. James: “A New Measurement of the Basic Elastic and Dielectric Constants of Quartz”, Proc. 42nd Annual Freq. Contr. Symp., pp. 146-154 (1988).
- 11) R. T. Smith and K. S. Welsh: “Temperature Dependence of the Elastic, Piezoelectric, and Dielectric Constants of Lithium Tantalate and Lithium Niobate”, J. Appl. Phys., Vol. 42, p. 2219 (1971).
- 12) M. Adachi, T. Shiosaki, H. Kobayashi, O. Ohnishi and A. Kawabata: “Temperature Compensated Piezoelectric Lithium Tetraborate Crystal for High Frequency Surface Acoustic Wave and Bulk Wave Device Applications”, IEEE 1985 Ultrason. Symp., pp. 228-232 (1985).
- 13) M. Adachi, T. Karaki and W. Miyamoto: “Surface Acoustic Wave Properties of  $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$  (Langasite) Single Crystal”, Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 38, No. 5, pp. 3283-3287 (1999).
- 14) K. Hazama, J. Yamada, M. Ishigaki, T. Toyama: “Design and mass-production fabrication techniques of high performance SAW TV IF filter”, IEEE 1978 Ultrasonic Symposium, Cherry Hill, pp. 504-508 (1978).

- 15) 平野均, 福田承生, 松村禎夫: “LiTaO<sub>3</sub> 単結晶によるカラーTV 用 IF フィルタ基板”, 東芝レビュー, Vol. 33, No. 9, pp. 761-764 (1978).
- 16) A. Takayanagi, K. Yamanouchi and K. Shibayama: “Piezoelectric leaky surface wave in LiNbO<sub>3</sub>”, Applied Physics Letters, Vol. 17, No. 5, pp. 225-227 (1970).
- 17) E. K. Sittig: “Elastic wave delay devices”, U. S. P-3360749 (1967).
- 18) T. N. Khamaganova, V. K. Trunov and B. F. Dzhurinskii: “The Crystal Structure of Calcium Samarium Oxide Borate Ca<sub>8</sub>Sm<sub>2</sub>O<sub>2</sub>(BO<sub>3</sub>)<sub>6</sub>”, Russ. J. Inorg. Chem., Vol. 36, No. 4, pp. 484-485 (1991).
- 19) R. Norrestam, M. Nygren and J. O. Bovin: “Structural Investigations of New Calcium-Rare Earth (R) Oxoborates with the Composition Ca<sub>4</sub>RO(BO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>”, Chem. Mater., Vol. 4, p. 737 (1992).
- 20) G. Aka, L. Bloch, J. M. Benitez, P. Crochet, A. Kahn-Harari, D. Vivien, F. Salin, P. Coquelin and D. Colin: “A New Non Linear Oxoborate Crystal, Characterized by Using Femtosecond Broadband Pulses”, OSA TOPS on Advanced Solid-State Lasers 1996, Vol. 1, S. A. Payne and C. Pollock (eds.), pp. 336-340 (1996).
- 21) G. Aka, A. Kahn-Harari, D. Vivien, J. M. Benitez, F. Salin and J. Godard: “A New Non-linear and Neodymium Laser Self-Frequency Doubling Crystal with Congruent Melting: Ca<sub>4</sub>GdO(BO<sub>3</sub>)<sub>3</sub> (GdCOB)”, Eur. J. Solid State, Inorg. Chem., Vol. 33, pp. 727-736 (1996).
- 22) Makoto Iwai, Taisuke Kobayashi, Hiroyuki Furuya, Yusuke Mori and Takatomo Sasaki: “Crystal Growth and Optical Characterization of Rare-Earth (Re) Calcium Oxyborate ReCa<sub>4</sub>O(BO<sub>3</sub>)<sub>3</sub> (Re = Y or Gd) as New Nonlinear Optical Material”, Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 36, pp. L276-L279 (1997).
- 23) M. Yoshimura, H. Furuya, T. Kobayashi, K. Murase, Y. Mori and T. Sasaki: “Noncritically Phase-Matched Frequency Conversion in Gd<sub>x</sub>Y<sub>1-x</sub>Ca<sub>4</sub>(BO<sub>3</sub>)<sub>3</sub> Crystal”, Opt. Lett., Vol. 24, pp. 193-195 (1999).
- 24) J. J. Adams, C. A. Ebbers, K. I. Schaffers, and S. A. Payne: “Nonlinear Optical Properties of LaCa<sub>4</sub>O(BO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>”, OPTICS LETTERS, Vol. 26, No. 4, pp. 217-219 (2001).
- 25) H. R. Xia, W. Q. Zheng, S. J. Zhang, Z. X. Cheng, X. F. Cheng and Z.H. Yang: “Raman Measurement and Optical Properties of Nd:GdCa<sub>4</sub>O(BO<sub>3</sub>)<sub>3</sub> Crystals”, Journal of applied physics, Vol. 92, No. 9, pp. 5060-5067 (2002).
- 26) C. T. Chen: “Development of new nonlinear optical crystals in the borate series”, Laser science and technology (Harwood Academic Publishers), Vol. 15, p. 74 (1993).
- 27) G. Aka, A. Kahn-Harari, F. Mougél, D. Vivien, F. Salin, P. Coquelin, P. Colin, D. Pelenc and J. P. Damelet: “Linear- and Nonlinear-Optical Properties of a New Gadolinium Calcium Oxoborate Crystal, Ca<sub>4</sub>GdO(BO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>”, J. Opt. Soc. Am. B, Vol. 14, No. 9, pp. 2238-2247 (1997).

- 28) Jiyang Wang, Xiaobo Hu, Xin Yin, Renbo Song, Jingqian Wei, Zongsu Shao, Yaogang Liu, and Minhuha Jiang: "Growth, Defects, and Properties of  $\text{GdCa}_4\text{O}(\text{BO}_3)_3$  and  $\text{Nd}:\text{GdCa}_4\text{O}(\text{BO}_3)_3$  Crystals", *J. Mater. Res.*, Vol. 16, No. 3, pp. 790-796 (2001).
- 29) IEEE Standard on Piezoelectricity, ANSI/IEEE Std 176-1987, pp. 1-54 (1987).
- 30) Warren P. Mason: "Properties of Monoclinic Crystals", *Phys. Rev.*, Vol. 70, pp. 705-728 (1946).
- 31) 中尾日六士: "希土類・カルシウム・オキシボレート結晶の育成と応用に関する研究", 大阪大学大学院工学研究科 学位論文, p. 16 (2002).
- 32) W. Soluch and A. Pajaczkowska: "Measurement of SAW and Pseudo SAW in  $\text{GdCa}_4\text{O}(\text{BO}_3)_3$  Crystal", *Electronics Letters*, Vol. 38, No. 4, p. 202 (2002).
- 33) R. D. Shannon: "Revised Effective Ionic Radii and Systematic Studies of Interatomic Distances in Halides and Chalcogenides", *Acta Crystallographica*, A32, pp. 751-767 (1976).
- 34) J. Sato, H. Takeda, H. Morikoshi, K. Shimamura, P. Rudolph, T. Fukuda: "Czochralski Growth of  $\text{RE}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$  (RE = La, Pr, Nd) Single Crystals for the Analysis of the Influence of Rare Earth Substitution on Piezoelectricity", *J. Cryst. Growth*, Vol. 191, pp. 746-753 (1998).
- 35) I. M. Sil'vestrova, Yu. V. Pisarevskĭ, A. A. Kaminskĭ, B. V. Mill': "Elastic, Piezoelectric, and Dielectric Properties of  $\text{La}_3\text{Ga}_{5.5}\text{Nb}_{0.5}\text{O}_{14}$  Crystals", *Sov. Phys. Solid State*, Vol. 29, pp. 870-871 (1987).
- 36) Yu. V. Pisarevsky, P. A. Senyushenkov, B. V. Mill, N. A. Moiseeva: "Elastic, Piezoelectric, Dielectric Properties of  $\text{La}_3\text{Gd}_{5.5}\text{Ta}_{0.5}\text{O}_{14}$  Single Crystals", *Proc. IEEE Int. Freq. Contr. Symp.*, pp. 742-747 (1998).
- 37) M. Kumatoriya, H. Sato, J. Nakanishi, T. Fujii, M. Kadota, Y. Sakabe: "Crystal Growth and Electromechanical Properties of Al Substituted Langasite ( $\text{La}_3\text{Ga}_{5-x}\text{Al}_x\text{SiO}_{14}$ )", *J. Cryst. Growth*, Vol. 229, pp. 289-293 (2001).
- 38) V. V. Kochurikhin, M. Kumatoriya, K. Shimamura, H. Takagi, T. Fukuda: "Czochralski Growth of  $\text{Sr}_3\text{Ga}_2\text{Ge}_4\text{O}_{14}$  Single Crystals for Piezoelectric Applications", *J. Cryst. Growth*, Vol. 181, pp. 452-454 (1997).
- 39) H. Takeda, R. Uecker, M. Kumatoriya, K. Shimamura, P. Reiche, T. Fukuda: "Growth and Characterization of  $\text{Na}_2\text{CaGe}_6\text{O}_{14}$  Single Crystals", *Crys. Res. Tech.*, Vol. 32, pp. 939-945 (1997).

## 第2章 点群 $m$ に属する 圧電結晶の材料定数評価方法の確立

### 2.1 緒言

RCOB 結晶の属する点群  $m$  では、材料定数を評価するための振動モードや結晶のカット(切断方位)が確立されていないことを前章で述べた。現在、実用デバイスに至っている圧電結晶は、それらの材料定数や温度係数が多くの研究者により評価されてきた。特に、三方晶系の点群  $32$  や  $3m$  では、現今の情報通信分野を支える主要な圧電結晶が特に数多く存在し、それらの材料定数や SAW 特性についての報告<sup>1-10)</sup>もまた数多く存在する。このことは、体系化された材料定数評価方法の存在が大きく、材料定数などの基礎特性に関する詳細な研究が応用へのひとつの架け橋になっていると考えられる。前章で述べたように、現に、LN や LT に関して SAW 素子が実用化に至った理由には、LN に関する材料定数評価などの基礎研究の功績が大きい。本研究では RCOB 結晶の圧電性ならびに SAW 特性に着目し、その SAW 素子用圧電結晶としての可能性を探る。本章では、その SAW 特性評価に先立つ評価確立のためだけでなく、圧電特性評価手法を目指すものとして、これまでに検討されていなかった点群  $m$  における材料定数の評価方法を検討し、それを確立したことについて述べる。

まず 2.2 節では、圧電効果や圧電基本式などの圧電性の基本について概説した後で、材料定数テンソルの対称性や弾性波動特性の理論的取り扱いに必要なオイラー角による座標変換について概説する。2.3 節では、Warren P. Mason による点群 2 の材料定数評価方法を示した後で、それを点群  $m$  へ適用し、利用可能な振動モードや算出可能な材料定数を検討した結果について述べる。また、その検討から、点群  $m$  の評価では新たなカットと振動モードが必要であったため、それらを検討し、点群  $m$  の材料定数評価方法を確立したことについて述べる。最後に 2.4 節で、本章で得られた結果をまとめる。

### 2.2 圧電性と材料定数の座標変換

#### 2.2.1 圧電効果と圧電基本式<sup>11-13)</sup>

物質中に変形(歪み)が生じると、弾力的な反発力により変形を元に戻そうとする作用が働き、それが波動となって物質中に伝わる弾性波が生じる。現在の情報通信分野を支える弾性波素子は、圧電性を介した物質中の歪みと電気系との結合により



動作することが一般的となっている。これより、物質中の歪みと応力の関係が、弾性波を扱う基本となることがわかる。本項ではまず、圧電性の基本について述べ、歪みと応力の関係は付録 A.3 にその概説をまとめている。

### (1) 圧電効果

第1章で述べたように、ある種の結晶に歪みを与えると電気的な応答を示し、そのような性質を圧電性あるいは圧電効果という。圧電性は歪みに比例した分極の変化を伴うため、歪みの正負により電気応答の符号が変わる。また、歪みを伴う電気的な現象には、「圧電性」の他に「電歪効果」と呼ばれる現象もあり、電歪は2次効果であるため電界の方向による差異がない。図 2.1 は圧電現象と電歪現象の様子を模式的に示したもので、(a)は縦歪みによる圧電効果、(b)はせん断歪みによる圧電効果、(c)は電歪効果を表す。圧電性を定量的に示す定数を「圧電定数」という。電気的な状態を表現する量としては、電界  $E$  あるいは電束密度  $D$  がある。また、機械的な状態を表す量としては、歪み  $S$  および応力  $T$  がある。従って、電気系と機械系を結ぶ圧電定数には、

① 「歪みと電界」 および 「電束密度と応力」 の関係を表す定数 (圧電  $d$  定数)

② 「応力と電界」 および 「電束密度と歪み」 の関係を表す定数 (圧電  $e$  定数)

の2種類がよく用いられる。これらの定数を含めた圧電基本式についてはこの後で詳しく述べる。また、本論文中で使用する機械的・電気的諸定数の意味を付録 A.4 にまとめているので、以降それを参照されたい。

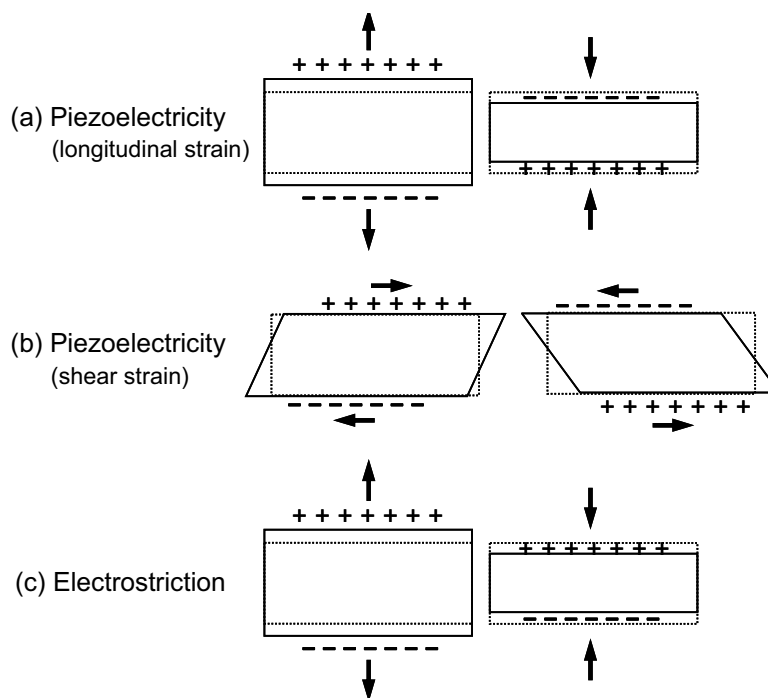


図 2.1 圧電現象と電歪現象の例 (a)縦歪みによる圧電効果, (b)せん断歪みによる圧電効果, (c)電歪効果.

## (2) 圧電基本式

歪み、応力および圧電性を包含する式を圧電基本式という。即ち、圧電基本式は機械系と電気系とを含む方程式であるが、独立変数として主に、①応力と電界を選ぶ場合と、②歪みと電界を選ぶ場合がある。圧電方程式の導出は、熱力学的な考察に基づいて行われ、それにより圧電効果と逆圧電効果が同じ係数で与えられることが示される。

熱力学的な特性関数として、エンタルピー、ギブス自由エネルギー、ヘルムホルツ自由エネルギーなどが定義される。以下、ギブス自由エネルギーから導かれる過程を示す。

応力と電磁界および温度を含めたギブス自由エネルギー $G$ は、

$$G = U - S_{ij}T_{ij} - D_k E_k - B_k H_k - K\theta \quad (2-1)$$

で与えられる。ここで、 $U$ は内部エネルギー、即ち系のエネルギーから全体の運動エネルギーを差し引いたもの、 $K$ はエントロピー、 $\theta$ は絶対温度である。熱力学ではエントロピーを $S$ 、温度を $T$ で表すが、歪みおよび応力と区別するためここでは $K$ および $\theta$ の記号を用いている。圧電物質はほとんどの場合非磁性であるため、磁気エネルギーの項は省略する。また、圧電振動に伴い、厳密には温度の変化があり得るが無視する。

歪み $S$ および電束密度 $D$ は示量性の物理量、応力 $T$ および電界 $E$ は示強性の物理量であるため、 $S$ と $D$ をそれぞれ $T$ と $E$ を用いて表すことにすれば、

$$S_{ij} = -\left(\frac{\partial G}{\partial T_{ij}}\right)_E, \quad D_i = -\left(\frac{\partial G}{\partial E_i}\right)_T \quad (2-2)$$

となる。ここで、括弧の右下の添字は、それぞれ電界 $E$ および応力 $T$ を一定に保つという意味である。これらの全微分をとると、次のようになる。

$$dS_{ij} = \left(\frac{\partial S_{ij}}{\partial T_{kl}}\right) dT_{kl} + \left(\frac{\partial S_{ij}}{\partial E_k}\right) dE_k \quad (2-3)$$

$$dD_i = \left(\frac{\partial D_i}{\partial T_{kl}}\right) dT_{kl} + \left(\frac{\partial D_i}{\partial E_k}\right) dE_k \quad (2-4)$$

ここで、添字  $i, j, k, l$  については付録 A.3 の「4.テンソル表示と行列表示」を参照されたい。

さて、実際に重要なのは応力と電界の変化に伴う歪み  $S$  および電束密度  $D$  の変化の様子を定式化することであるため、式(2-3)、式(2-4)において変化分を表す  $d$  の記号を除き、式(2-2)を考慮すると、

$$S_{ij} = s_{ijkl}^E T_{kl} + d_{kij} E_k \quad (2-5)$$

$$D_i = d_{ikl} T_{kl} + \varepsilon_{ik}^T E_k \quad (2-6)$$

の2式が得られる。これらを応力と電界を独立変数とした場合の圧電基本式という。

ここで、 $s_{ijkl}^E$ 、 $d_{ikl}$  および  $\varepsilon_{ik}^T$  はそれぞれ、電界一定下での弾性コンプライアンス、圧電  $d$  定数テンソルおよび応力一定下での誘電率テンソルであり、次のように与えられる。

$$s_{ijkl}^E = - \left( \frac{\partial^2 \mathbf{G}}{\partial T_{kl} \partial T_{ij}} \right)_E \quad (2-7)$$

$$d_{ikl} = - \left( \frac{\partial^2 \mathbf{G}}{\partial T_{kl} \partial E_i} \right)_T \quad (2-8)$$

$$\varepsilon_{ik}^T = - \left( \frac{\partial^2 \mathbf{G}}{\partial E_k \partial E_i} \right)_T \quad (2-9)$$

式(2-5)の右辺第2項が逆圧電効果、式(2-6)の右辺第1項が圧電効果を表す項であるが、導出過程から明らかであるように、式(2-8)で与えられる共通の比例係数(圧電  $d$  定数)を持つ。また、弾性定数(コンプライアンス)および誘電率にはそれぞれ、電界一定、応力一定という条件が付されることを指摘しておく。尚、ベクトル即ち1階テンソルである「電界  $E$ 」と2階テンソルである「歪み  $S$ 」を結ぶ係数が「圧電定数」であり、これは3階テンソルとなる。

式(2-5)、式(2-6)はテンソルで表した式であるが、行列表示を用いて次のように表すことができる。

$$S_I = s_{IJ}^E T_J + d_{iI} E_i \quad (2-10)$$

$$D_i = d_{ij} T_j + \varepsilon_{ij}^T E_j \quad (2-11)$$

但し、小文字の添字は座標軸に対応して 1~3、大文字の添字は、付録 A.3 の「4.テンソル表示と行列表示」中の表 1 に従って座標軸に対応した 2 つの添字をまとめたものであり、1~6 の値をとる。

圧電  $d$  定数についてのテンソル表示と行列表示の関係は、

$$d_{ikl} = d_{ij} \quad (k = l) \quad (2-12)$$

$$d_{ikl} + d_{ilk} = d_{ij} \quad (k \neq l) \quad (2-13)$$

であるが、実際には  $d_{ikl}$  と  $d_{ilk}$  は区別できず、

$$2d_{ikl} = 2d_{ilk} = d_{ij} \quad (k \neq l) \quad (2-14)$$

となる。具体的に書くと、

$$\begin{aligned} d_{i11} = d_{i1}, \quad d_{i22} = d_{i2}, \quad d_{i33} = d_{i3} \\ 2d_{i23} = 2d_{i32} = d_{i4}, \quad 2d_{i31} = 2d_{i13} = d_{i5}, \quad 2d_{i12} = 2d_{i21} = d_{i6} \end{aligned} \quad (2-15)$$

の関係となる。

式(2-10)、式(2-11)は応力  $T$  と電界  $E$  を独立変数とした圧電基本式であるが、弾性波を導く場合、独立変数として応力  $T$  に代えて歪み  $S$  を用いた方が、都合がよい場合が多い。式(2-10)より、

$$s_{IJ}^E T_J = S_I - d_{iI} E_i$$

となるため、この式の両辺に左側から  $[s]^1$  を掛けると、

$$T_I = c_{iJ}^E S_J - e_{iI} E_i \quad (2-16)$$

が得られる。これを式(2-11)に代入して整理すると、

$$D_i = e_{iJ} S_J + \varepsilon_{ij}^S E_j \quad (2-17)$$

の形に変形される。

但し、 $c_{IJ}^E$ は電界  $E$  が一定条件下における弾性スティフネスである。また  $e_{ij}$ は圧電  $e$  定数と呼ばれ、圧電  $d$  定数とは次の関係がある。

$$e_{iJ} = d_{iI} c_{IJ}^E \quad (2-18)$$

$$d_{iJ} = e_{iI} s_{IJ}^E \quad (2-19)$$

また、 $\varepsilon_{ij}^S$ は歪み  $S$  が一定条件下における誘電率であり、 $\varepsilon_{ij}^T$ とは次の関係にある。

$$\varepsilon_{ij}^T - \varepsilon_{ij}^S = d_{ik} e_{jk} \quad (2-20)$$

式(2-16)と式(2-17)の2式が歪み  $S$  と電界  $E$  を独立変数とした圧電基本式である。その他の圧電基本式については、付録 A.5 の「圧電基本式の諸形式と定数相互の関係」を参照されたい。

圧電体中の弾性波は、連続媒質における運動方程式に基づき、式(2-10)、式(2-11)の組あるいは式(2-16)と式(2-17)の組を考慮して波動方程式を導き、さらに境界条件を考慮して解くことにより導かれる。

尚、圧電  $e$  定数についても当然テンソル表示で表すことができるが、テンソル表示と行列表示の関係は、

$$e_{ijk} = e_{iJ} \quad (2-21)$$

であり、圧電  $d$  定数のテンソル表示と行列表示の関係(式(2-12)~式(2-14))とは相違があることに注意する。

## 2.2.2 材料定数とオイラー角によるその座標変換

各点群に対応する対称操作に従って材料定数を変換したとき、元の定数と全く同一でなければならないことから、材料定数の対称性が決められる。例えば点群  $3m$  の材料では、弾性定数テンソル(4 階テンソル)、圧電定数テンソル(3 階テンソル)、誘電率テンソル(2 階テンソル)が 3 回対称軸の周りに関する  $120^\circ$  の回転操作、ならびにミラー面に関する鏡映操作を施しても不変であるという要請に基づき決定される<sup>16)</sup>。このように対称性を有する材料定数を評価するには、所定の弾性波動特性を解析するため、結晶をある方位に切り出したカットを用いる。その結晶のカットには IEEE Standard on Piezoelectricity<sup>17)</sup>によって定められている定義(命名法)がある。一般に、板の方位を指定するには、まず厚みが圧電軸  $X$ 、 $Y$ 、 $Z$  のいずれかに平行な板を仮想的に考える。ここで、圧電軸とは電氣的直交座標軸であり、結晶軸とは独立である。この板を逐次回転して最終方位に持っていく。仮想的な板の厚み方向、および長さ方向( $X$ 、 $Y$  または  $Z$ )を初めに並べて書く。回転を表すには、回転の軸が長さ、幅、厚さのいずれであるかを  $l$ 、 $w$ 、 $t$  で示し、上の 2 文字の次に並べて、以上を括弧で囲む。その後回転の角度を順に記す。そうすると例えば

$$(YXlwt)\phi^\circ / \theta^\circ / \psi^\circ \quad (2-22)$$

のようになる。これは厚みが  $Y$  方向、長さが  $X$  方向の板を、まず長さの回りに  $\phi^\circ$  回転し、次にその位置における幅の回りに  $\theta^\circ$  回転、最後にその位置における厚さの回りに  $\psi^\circ$  回転したものである。角度の符号は、回転軸の正の端から原点の方を見て、回転が反時計回りのときを正と定める。図 2.2 に水晶の GT カットの例を示す。これは、 $(YX)$ 板を長さ( $l$ )回りに  $-51^\circ$  回転し、その回転後の厚み( $t$ )回りに  $45^\circ$  回転したものであるから、 $(YXlt)-51^\circ/45^\circ$  ということになる。

さて、圧電結晶の材料定数(テンソル)、誘電率、弾性定数、圧電定数の物理量の表現は、その結晶の結晶軸に合わせた直交座標系に対して与えられる。この結晶軸との対応関係は IEEE Standard on Piezoelectricity<sup>17)</sup>によって定められており、それについては第 3 章で示す。圧電結晶は異方性媒質であるため、カット、振動方向、あるいは弾性波の伝搬方向が異なると、弾性波動特性も異なる。そこで、任意のカットに対する特性を理論的に扱うには、図 2.3 に示すオイラー角による座標変換が必要となる。座標変換する前の旧座標系における材料定数が本来求める材料定数であり、座標変換した後の新座標系におけるそれが実際の測定から算出される材料定数である。新座標系で求められるすべての材料定数の右肩には添字として“' (ダッシュ)”が付してある。このことは、これ以降の議論で逐一断りを入れないうえ、注意されたい。オイラー角には右手系と左手系があるが、工学分野では図 2.3 に示す右手系が使われる。結晶軸( $X$ 、 $Y$ 、 $Z$ )に対して与えられた材料定数を、オイラー角

( $\Phi, \Theta, \Psi$ )による新しい座標軸( $X_3, Y_3, Z_3$ )における材料定数に変換するには、次式の公式による。

$$\begin{aligned} [c_{ij}'] &= [\alpha]^{-1} [c_{ij}] [\beta] \\ [e_{ij}'] &= [\gamma]^{-1} [e_{ij}] [\beta] \\ [\varepsilon_{ij}'] &= [\gamma]^{-1} [\varepsilon_{ij}] [\gamma] \end{aligned} \quad (2-23)$$

ここで、座標変換に必要なマトリックスは次式で表される。

$$\begin{aligned} \alpha &= \begin{bmatrix} l_1^2 & l_2^2 & l_3^2 & 2l_2l_3 & 2l_3l_1 & 2l_1l_2 \\ m_1^2 & m_2^2 & m_3^2 & 2m_2m_3 & 2m_3m_1 & 2m_1m_2 \\ n_1^2 & n_2^2 & n_3^2 & 2n_2n_3 & 2n_3n_1 & 2n_1n_2 \\ m_1n_1 & m_2n_2 & m_3n_3 & m_2n_3 + m_3n_2 & m_3n_1 + m_1n_3 & m_1n_2 + m_2n_1 \\ n_1l_1 & n_2l_2 & n_3l_3 & n_2l_3 + n_3l_2 & n_3l_1 + n_1l_3 & n_1l_2 + n_2l_1 \\ l_1m_1 & l_2m_2 & l_3m_3 & l_2m_3 + l_3m_2 & l_3m_1 + l_1m_3 & l_1m_2 + l_2m_1 \end{bmatrix} \\ \beta &= \begin{bmatrix} l_1^2 & l_2^2 & l_3^2 & l_2l_3 & l_3l_1 & l_1l_2 \\ m_1^2 & m_2^2 & m_3^2 & m_2m_3 & m_3m_1 & m_1m_2 \\ n_1^2 & n_2^2 & n_3^2 & n_2n_3 & n_3n_1 & n_1n_2 \\ 2m_1n_1 & 2m_2n_2 & 2m_3n_3 & m_2n_3 + m_3n_2 & m_3n_1 + m_1n_3 & m_1n_2 + m_2n_1 \\ 2n_1l_1 & 2n_2l_2 & 2n_3l_3 & n_2l_3 + n_3l_2 & n_3l_1 + n_1l_3 & n_1l_2 + n_2l_1 \\ 2l_1m_1 & 2l_2m_2 & 2l_3m_3 & l_2m_3 + l_3m_2 & l_3m_1 + l_1m_3 & l_1m_2 + l_2m_1 \end{bmatrix} \\ \gamma &= \begin{bmatrix} l_1 & l_2 & l_3 \\ m_1 & m_2 & m_3 \\ n_1 & n_2 & n_3 \end{bmatrix} \end{aligned} \quad (2-24)$$

但し、

$$\begin{aligned} l_1 &= \cos\Psi \cos\Phi - \cos\Theta \sin\Psi \\ l_2 &= -\sin\Psi \cos\Phi - \cos\Theta \sin\Phi \cos\Psi \\ l_3 &= \sin\Theta \sin\Phi \\ m_1 &= \cos\Psi \sin\Phi + \cos\Theta \cos\Phi \sin\Psi \\ m_2 &= -\sin\Psi \sin\Phi + \cos\Theta \cos\Phi \cos\Psi \\ m_3 &= -\sin\Theta \cos\Phi \\ n_1 &= \sin\Psi \sin\Theta \\ n_2 &= \cos\Psi \sin\Theta \\ n_3 &= \cos\Theta \end{aligned} \quad (2-25)$$

である。オイラー角による座標変換に関するここでの記述は文献 13)を参照した。

図 2.3 に示す右手系オイラー角についてももう少し記述する。オイラー角による座標変換では回転行列を用いるが、その計算に用いる座標変換マトリックスは、 $X$  軸回転の座標変換行列では式(2-26)、 $Y$  軸回転の座標変換行列では式(2-27)、 $Z$  軸回転の座標変換行列では式(2-28)にそれぞれ従う。

$$X(\theta) = \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & \cos \theta & -\sin \theta \\ 0 & \sin \theta & \cos \theta \end{bmatrix} \quad (2-26)$$

$$Y(\theta) = \begin{bmatrix} \cos \theta & 0 & \sin \theta \\ 0 & 1 & 0 \\ -\sin \theta & 0 & \cos \theta \end{bmatrix} \quad (2-27)$$

$$Z(\theta) = \begin{bmatrix} \cos \theta & -\sin \theta & 0 \\ \sin \theta & \cos \theta & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \quad (2-28)$$

オイラー角に沿って回転した場合の座標変換行列は、

- ①  $Z$  軸周りに  $\Phi$  回転
- ②  $X(X_1)$  軸周りに  $\theta$  回転
- ③  $Z(Z_2)$  軸周りに  $\Psi$  回転

の順となり、これより座標変換行列 $|_{\gamma}|$ は

$$\begin{aligned} |_{\gamma}| &= |Z(\Phi)| |X(\theta)| |Z(\Psi)| \\ &= \begin{bmatrix} \cos \Phi & -\sin \Phi & 0 \\ \sin \Phi & \cos \Phi & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & \cos \theta & -\sin \theta \\ 0 & \sin \theta & \cos \theta \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \cos \Psi & -\sin \Psi & 0 \\ \sin \Psi & \cos \Psi & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \\ &= \begin{bmatrix} l_1 & l_2 & l_3 \\ m_1 & m_2 & m_3 \\ n_1 & n_2 & n_3 \end{bmatrix} \end{aligned} \quad (2-29)$$

となる。



次に、オイラー角表記  $R(\Phi, \Theta, \Psi)$  とカットとの関係について述べておく。オイラー角表記はカット面および試料の長さ方向を決める。例えば、 $(ZXl)\theta^\circ$  ( $\theta = 0, 45, 90$ ) は、オイラー角表記では  $\theta$  の順に  $R(0, 0, 0)$ 、 $R(0, 45, 0)$ 、 $R(0, 90, 0)$  で表すことができる。図 2.4 からわかるように、カット面  $Z$  と長さ方向  $X$  を  $R(0, \theta, 0)$  で表し、長さ回りの回転を  $\theta$  で表す。このようにオイラー角表記は 3 つの回転角のうち 2 つで基本平面(カット面と長さ方向)が決定され、軸回りの回転が残りの 1 つで与えられる。図 2.5 に示すように、一般に試料の長さ( $l$ )方向を 1 軸、幅( $w$ )方向を 2 軸、厚み( $t$ )方向を 3 軸とし、各軸周りのせん断応力・歪みの回転をそれぞれ 4、5、6 で表す。3 軸方向に電極をつけて電界を印加した場合、3 軸方向の誘電分極、つまり誘電率は  $\epsilon_{33}'$  と表すことができる。また、ピエゾ縦効果があれば圧電定数  $d_{33}'$  が得られる。さらに、横効果長さ伸び振動があれば圧電定数  $d_{31}'$  が得られる。但し、ここでの材料定数  $\epsilon_{33}'$ 、 $d_{33}'$ 、 $d_{31}'$  は、実測から求まる新座標系におけるものであり、旧座標系における真の材料定数でないことに注意する。従って、図 2.5 に示す板状試料は新座標系におけるものであり、その軸また同様である。付録 A.7 からわかるように、この両座標系における材料定数はオイラー角により結び付けられる。

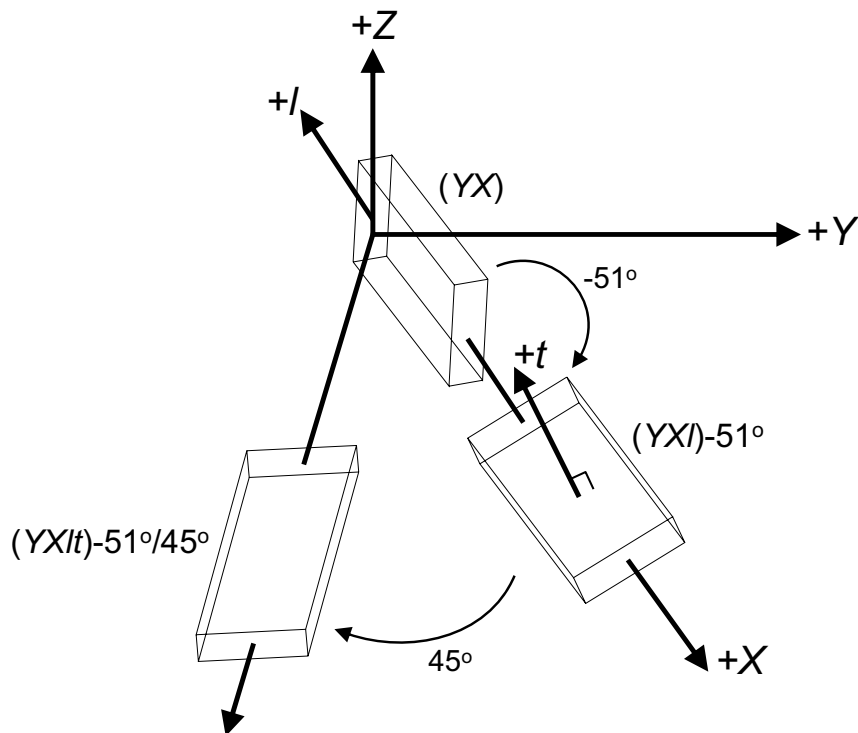
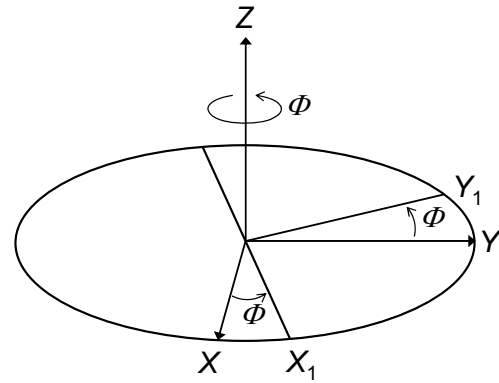
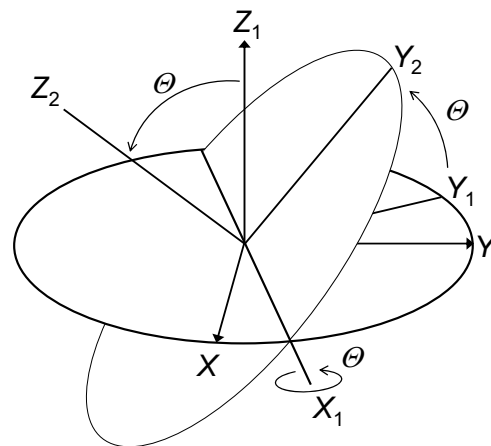


図 2.2 カットの命名法の一例(水晶 GT カットの場合).  $(YX)$ 板を長さ( $l$ )回りに $-51^\circ$ 回転し、その回転後の厚み( $t$ )回りに $45^\circ$ 回転したもので、 $(YXl)t)-51^\circ/45^\circ$ と呼ぶ。

I.  $\Phi$  rotation around Z-axis



II.  $\Theta$  rotation around  $X_1$ -axis



III.  $\Psi$  rotation around  $Z_2$ -axis

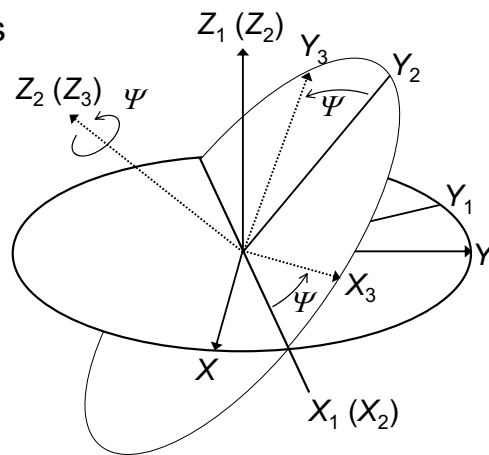


図 2.3 右手系オイラー角による座標変換. I.ではZ軸周りに $\Phi^\circ$ 回転し, 回転後の軸を $X_1, Y_1, Z_1$ とする. 次にII.で $X_1$ 軸周りに $\Theta^\circ$ 回転し, 回転後の軸を $X_2, Y_2, Z_2$ とする. 最後にIII.で $Z_2$ 軸周りに $\Psi^\circ$ 回転する.

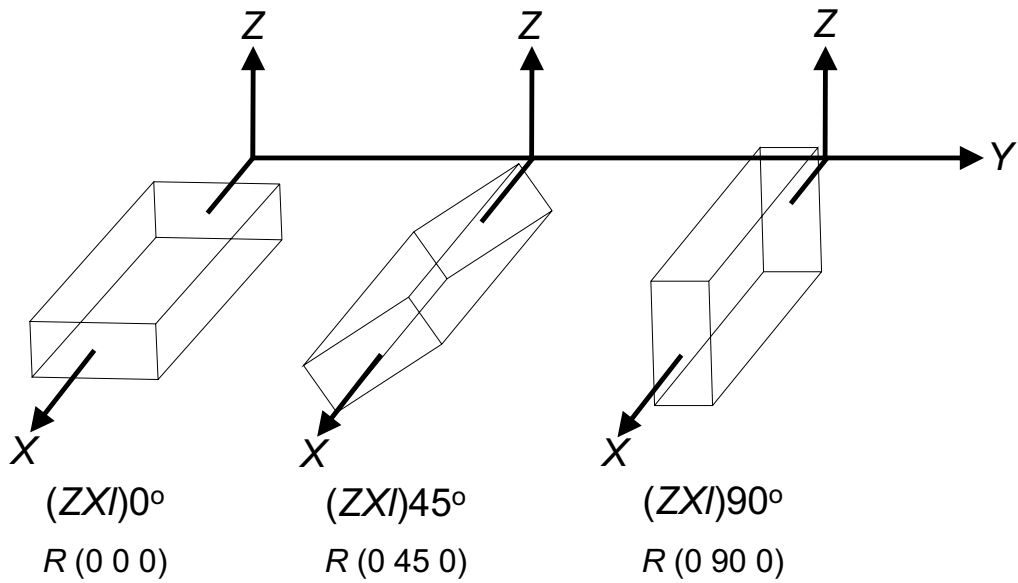


図 2.4  $(ZXI)\theta^\circ$  ( $\theta = 0, 45, 90$ )を例としたオイラー角表記. カット面  $Z$  と長さ方向  $X$  を  $R(0, \theta, 0)$  で表し, 長さ( $l$ )周りの回転を  $\theta$  で表す.

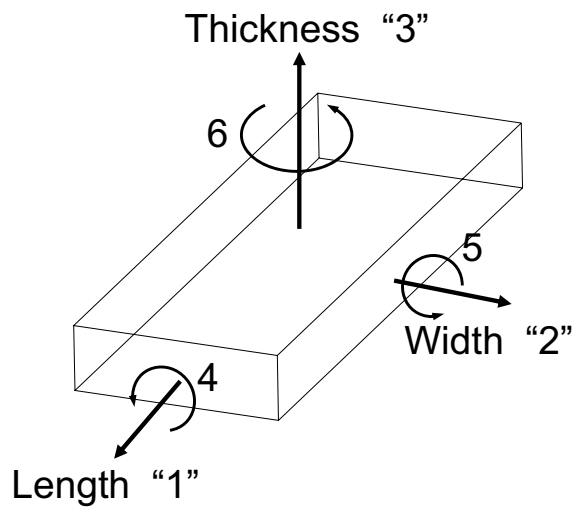


図 2.5 オイラー角により座標変換した新座標系における試料形状と軸(1~6)の対応関係. 長さ方向を 1 軸, 幅方向を 2 軸, 厚み方向を 3 軸, これら軸周りのせん断をそれぞれ 4 軸, 5 軸, 6 軸とする.

## 2.3 点群 $m$ における材料定数評価方法の検討とその確立

### 2.3.1 単斜晶系における材料定数

単斜晶系では圧電性を示す点群が 2 と  $m$  の 2 種類であることを第 1 章で述べた。単斜晶系における材料定数テンソルのマトリックスを表 2.1 に示す。本研究では付録 A.5 に示す 4 形式ある圧電基本式のうち  $d$  形式(応力  $T$  と電界  $E$  を独立変数とした圧電基本式)を用いるため、表中では弾性定数を  $s_{ij}^E$ 、圧電定数を  $d_{ij}$ 、誘電率を  $\varepsilon_{ij}^T$  としてそれぞれ表記した。

単斜晶系では独立な誘電率(2 階テンソル)が 4 個、弾性定数(4 階テンソル)が 13 個存在し、これは点群 2 と点群  $m$  とで共通である。両点群で異なるのは圧電定数(3 階テンソル)の対称性であり、点群 2 では 8 個、点群  $m$  では 10 個の独立な圧電定数が存在する。これより点群 2 では全部で 25 個、点群  $m$  では 27 個の材料定数マトリックス成分が存在することがわかる。これは水晶に代表される点群 32(10 個)の 2 倍以上もの数であり、単斜晶系の対称性の低さがよくわかる。特徴的なのは、誘電率マトリックスに非対角成分  $\varepsilon_{13}$  が存在する点であり、これは三斜晶系と単斜晶系のみで、その他の点群ではない。また、圧電定数の対称性が点群 2 と点群  $m$  とで正反対の関係にある。点群  $m$  では  $Y$  面( $b$  面)に鏡面が存在するため、 $Y$  面の励振に関わる成分  $d_{2j}$  ( $j = 1, 2, 3, 5$ )が存在しない。一方、点群 2 ではピエゾ縦効果の  $d_{11}$ 、 $d_{33}$  が存在せず、 $Y$  面の励振に関わる  $d_{22}$  が存在する。ここで、これら圧電  $d$  定数の下付添字の意味については、付録 A.5 を参照されたい。

表 2.1 単斜晶系における材料定数テンソルの対称性

弾性定数	圧電定数	誘電率
全点群共通 (13 個)	点群 2 (8 個)	(4 個)
$\begin{bmatrix} s_{11}^E & & & & & \\ s_{12}^E & & & & & \\ & s_{13}^E & & & & \\ s_{22}^E & & & & & \\ & s_{23}^E & & & & \\ & & s_{33}^E & & & \\ & & & s_{44}^E & & \\ & & & & s_{55}^E & \\ & & & & & s_{66}^E \end{bmatrix}$	$\begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} & 0 & d_{25} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d_{34} & 0 & d_{36} \end{bmatrix}$	$\begin{bmatrix} \varepsilon_{11}^T & & \varepsilon_{13}^T \\ & \varepsilon_{22}^T & \\ & & \varepsilon_{33}^T \end{bmatrix}$
	点群 $m$ (10 個)	
	$\begin{bmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & 0 & d_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d_{24} & 0 & d_{26} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & 0 & d_{35} & 0 \end{bmatrix}$	

### 2.3.2 Warren P. Mason による点群 2 の材料定数評価方法

単斜晶系の点群  $m$  では、材料定数の評価方法が未だに確立されていないことを第 1 章で述べた。同単斜晶系の点群 2 については、Warren P. Mason により材料定数の評価方法が詳細に報告されている<sup>18)</sup>。ここでは、点群  $m$  における材料定数評価方法の確立のための礎とした、Warren P. Mason の提唱した評価方法を示す。

表 2.2 点群 2 における材料定数の算出方法

カット	振動	算出式 (関係式)
$(ZXt)\theta^\circ$ ( $\theta=22.5, 45, 67.5$ )	TE-LE	$s_{11}^{E'} = s_{11}^E \cos^4 \theta + (2s_{12}^E + s_{66}^E) \sin^2 \theta \cos^2 \theta + s_{22}^E \sin^4 \theta$ $d_{31}' = d_{36} \frac{\sin 2\theta}{2}$ ( $s_{11}^E, s_{22}^E, s_{12}^E$ ならびに $d_{36}$ を求めることができる)
$(ZXt)\theta^\circ$ ( $\theta=0$ )	TE-FS	$s_{66}^E, d_{36}, \varepsilon_{33}^T$
$(XYt)\theta^\circ$ ( $\theta=22.5, 45, 67.5$ )	TE-LE	$s_{11}^{E'} = s_{22}^E \cos^4 \theta + (2s_{23}^E + s_{44}^E) \sin^2 \theta \cos^2 \theta + s_{33}^E \sin^4 \theta$ $d_{31}' = d_{14} \frac{\sin 2\theta}{2}$ ( $s_{22}^E, s_{33}^E, s_{23}^E$ ならびに $d_{14}$ を求めることができる)
$(XYt)\theta^\circ$ ( $\theta=0$ )	TE-FS	$s_{44}^E, d_{14}, \varepsilon_{11}^T$
$(YZt)\theta^\circ$ ( $\theta=0, 22.5, 45, 67.5$ )	TE-LE	$s_{11}^{E'} = s_{33}^E \cos^4 \theta + 2s_{35}^E \cos^3 \theta \sin \theta$ $+ (2s_{13}^E + s_{55}^E) \sin^2 \theta \cos^2 \theta + 2s_{15}^E \sin^3 \theta \cos \theta + s_{11}^E \sin^4 \theta$ $d_{31}' = d_{21} \sin^2 \theta + d_{25} \sin \theta \cos \theta + d_{23} \cos^2 \theta$ ( $\theta=0^\circ, 90^\circ$ では $d_{21}, d_{23}$ が直接得られる。 $\theta=45^\circ$ では $d_{25}$ が得られ、その式は $d_{25} = d_{45^\circ}' - (d_{21} + d_{23})$ である。弾性コンプライアンスは $s_{35}^E, s_{13}^E, s_{55}^E, s_{15}^E$ が得られる。また、 $\theta=0^\circ$ では $\varepsilon_{22}^T$ が得られる。)
$(XY)45^\circ$	TE-FS	$s_{66}^{E'} = \frac{1}{2}(s_{66}^E - 2s_{46}^E + s_{44}^E), d_{36}' = \frac{1}{2}(d_{14} + d_{16} - d_{34} - d_{36})$ $\varepsilon_{33}^{T'} = \frac{1}{2}(\varepsilon_{11}^T + 2\varepsilon_{13}^T + \varepsilon_{33}^T)$ ( $\varepsilon_{11}^T$ と $\varepsilon_{33}^T$ を用いて $\varepsilon_{13}^T$ が得られる)
$(YXw)45^\circ$	TE-LE	$s_{11}^{E'} = \frac{1}{4}(s_{11}^E + s_{22}^E + 2s_{12}^E + s_{66}^E), d_{31}' = -\frac{\sqrt{2}}{4}(d_{21} + d_{22} - d_{16})$ $\varepsilon_{33}^{T'} = \frac{1}{2}(\varepsilon_{11}^T + \varepsilon_{22}^T)$
$(ZYw)45^\circ$	TE-LE	$s_{11}^{E'} = \frac{1}{4}(s_{22}^E + s_{33}^E + 2s_{23}^E + s_{44}^E), d_{31}' = \frac{\sqrt{2}}{4}(d_{23} + d_{22} - d_{34})$ $\varepsilon_{33}^{T'} = \frac{1}{2}(\varepsilon_{22}^T + \varepsilon_{33}^T)$
$(YZtw)45^\circ/45^\circ$	TE-LE	$s_{11}^{E'} = \frac{1}{16}(s_{11}^E + s_{33}^E + (2s_{13}^E + s_{55}^E))$ $+ \frac{1}{8}(s_{15}^E + s_{35}^E + (2s_{23}^E + s_{44}^E) + (2s_{12}^E + s_{66}^E)) + \frac{1}{4}(s_{22}^E + s_{25}^E + s_{46}^E)$ $d_{31}' = \frac{\sqrt{2}}{8}(d_{21} + d_{23} + d_{25} + 2d_{22} - (d_{14} + d_{16} + d_{34} + d_{36}))$ $\varepsilon_{33}^{T'} = \frac{1}{4}(\varepsilon_{11}^T + \varepsilon_{33}^T + 2(\varepsilon_{22}^T + \varepsilon_{13}^T))$

点群 2 における材料定数の評価方法を表 2.2 に示す。表中の TE-LE は横効果長さ伸び(Transverse-effect length-extensional: TE-LE)振動を、TE-FS は横効果面内すべり(Transverse-effect face-shear: TE-FS)振動をそれぞれ表すが、ここでは単に TE-LE 振動、TE-FS 振動と呼ぶことにする。尚、これら各種振動モードについては付録 A.6 を参照されたい。図 2.6 に示すカットからわかるように、点群 2 では Z 面内 1 回回転のカットである  $(ZXt)\theta^\circ$  ( $\theta = 0, 22.5, 45, 67.5$ )、X 面内 1 回回転のカットである  $(XYt)\theta^\circ$  ( $\theta = 0, 22.5, 45, 67.5$ )、Y 面内 1 回回転のカットである  $(YZt)\theta^\circ$  ( $\theta = 0, 22.5, 45, 67.5$ )、さらに 1 回回転カットの  $(YXw)45^\circ$ 、 $(ZYw)45^\circ$ 、 $(XYl)45^\circ$  や 2 回回転カットの  $(YZtw)45^\circ/45^\circ$ 、合計 16 種類のカットを用いる。また、振動モードとしては上記 2 種類のみを用いる。

まず、 $(ZXt)0^\circ$  と  $(XYt)0^\circ$  の TE-FS 振動から各々  $s_{66}^E, (d_{36})'$  を算出し、 $s_{66}^E, (d_{36})'$  ならびに  $s_{44}^E, (d_{14})'$  を各カットからそれぞれ求める。 $(ZXt)\theta^\circ$  ( $\theta = 22.5, 45, 67.5$ ) と  $(XYt)\theta^\circ$  ( $\theta = 22.5, 45, 67.5$ ) の TE-LE 振動から各々  $s_{11}^E, d_{31}'$  を算出し、既に得られている  $s_{44}^E$  と  $s_{66}^E$  を用いて、 $s_{11}^E, s_{22}^E, s_{33}^E, s_{12}^E, s_{23}^E$  ならびに  $d_{14}, d_{36}$  を求める。ここまでは点群 222(斜方晶系)における評価方法と同様であり、 $s_{11}^E, s_{22}^E, s_{33}^E, s_{12}^E, s_{23}^E, s_{44}^E, s_{66}^E$  ならびに  $d_{14}, d_{36}$  が得られる。

次に、 $(YZt)\theta^\circ$  ( $\theta = 0, 22.5, 45, 67.5$ ) の TE-LE 振動から各々  $s_{11}^E, d_{31}'$  を算出し、 $s_{35}^E, s_{13}^E, s_{55}^E, s_{15}^E$  と  $d_{21}, d_{23}, d_{25}$  を求める。 $\theta = 0^\circ$  では  $d_{21}$  が、 $\theta = 90^\circ$  では  $d_{23}$  がそれぞれ直接得られる。 $\theta = 45^\circ$  では  $d_{25}$  が得られ、その式が  $d_{25} = d_{45^\circ} - (d_{21} + d_{23})$  であることから、 $\theta = 0^\circ$  あるいは  $\theta = 90^\circ$  のどちらかと  $\theta = 45^\circ$  があれば、 $d_{21}, d_{23}, d_{25}$  が得られることがわかる。

$(XYl)45^\circ$  の TE-FS 振動から  $s_{66}^E, (d_{36})', \epsilon_{33}^T$  を算出し、この  $s_{66}^E$  と  $s_{44}^E, s_{66}^E$  から  $s_{46}^E$  を求め、 $(d_{36})'$  から  $d_{14}, d_{16}, d_{34}, d_{36}$  との関係式を得る。さらに、 $\epsilon_{33}^T$  と  $\epsilon_{11}^T, \epsilon_{33}^T$  から  $\epsilon_{13}^T$  を求める。次に、 $(YXw)45^\circ$  の TE-LE 振動から  $s_{11}^E, d_{31}'$  を算出し、 $s_{11}^E, s_{22}^E, s_{12}^E, s_{66}^E$  の関係式(これは  $(ZXt)\theta^\circ$  ( $\theta = 22.5, 45, 67.5$ ) の TE-LE 振動から得られるものと等価)と  $d_{21}, d_{22}, d_{16}$  の関係式を得る。さらに、 $(ZYw)45^\circ$  の TE-LE 振動から  $s_{11}^E, d_{31}'$  を算出し、 $s_{22}^E, s_{33}^E, s_{23}^E, s_{44}^E$  の関係式(これは  $(XYt)\theta^\circ$  ( $\theta = 22.5, 45, 67.5$ ) の TE-LE 振動から得られるものと等価)と  $d_{23}, d_{22}, d_{34}$  の関係式を得る。圧電定数に関するこの 3 つの関係式の連立方程式から、 $d_{16}, d_{22}, d_{34}$  を求める。これより、Y 面の励振に関わる  $d_{22}$  を、ピエゾ縦効果を使うことなく求めることができる。

最後に、2 回回転カットの  $(YZtw)45^\circ/45^\circ$  の TE-LE 振動から  $s_{11}^E, d_{31}'$  を算出し、 $s_{25}^E$  を算出するための関係式と  $d_{25}$  を算出するための関係式を得る。そして、これまで求めた材料定数を使い  $s_{25}^E$  と  $d_{25}$  を求める。

以上のように、点群 2 では横効果の TE-LE 振動と TE-FS 振動のみを使い、25 個すべての材料定数を算出することができる。この 2 つの振動モードは低周波数帯での励振が可能のため、振動モードの同定が比較的容易である。点群 2 における評価方法では、点群 2 が点群 222(斜方晶系)の部分群であり、単位格子の軸角  $\beta$  のみが違うことを基にして、点群 222 における評価方法がある程度適用されている。

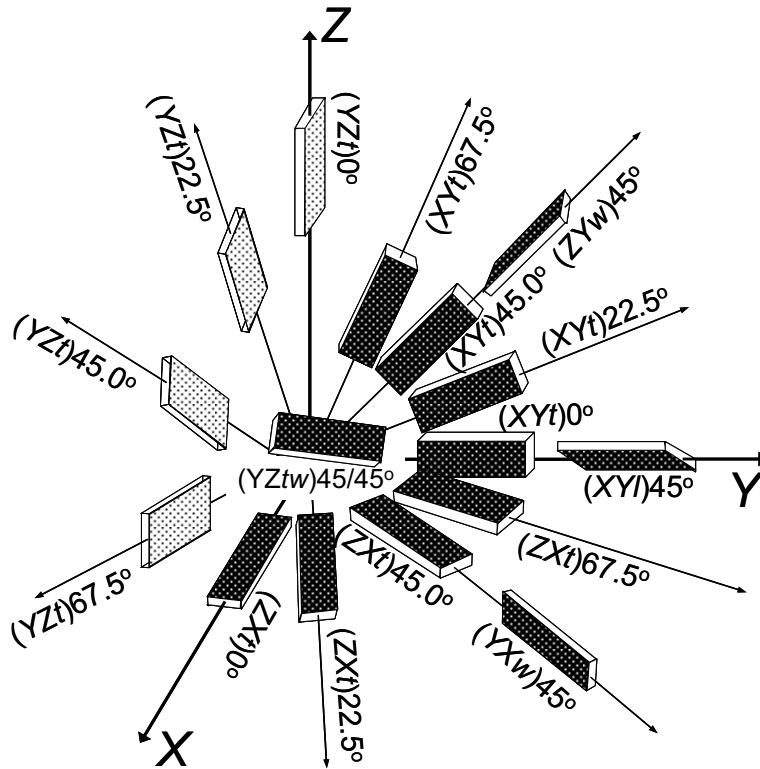


図 2.6 点群 2 に属する圧電結晶の材料定数の評価に用いられるカット。点群 2 では 16 種類のカットと 2 種類の振動モードを用いる。

### 2.3.3 点群 $m$ の材料定数評価に必要なカットと振動モード

点群  $m$  における材料定数は、表 2.1 に示すように、独立な誘電率が 4 個、弾性定数が 13 個、圧電定数が 10 個、合計 27 個ある。圧電性を示す単斜晶系の 2 つの点群(2 と  $m$ )で、誘電率と弾性定数に違いはなく、材料定数の対称性で異なるのは圧電定数のみであることを 2.3.1 項で述べた。点群 2 では、 $Y$  面内 1 回回転カットの  $(YZt)\theta^\circ$  ( $\theta = 0, 22.5, 45, 67.5$ ) で TE-LE 振動や TE-FS 振動が励振されるが、点群  $m$  では  $Y$  面( $b$  面)に鏡面が存在し  $d_{2j} = 0$  ( $j = 1, 2, 3, 5$ ) であるため、 $\theta^\circ Y$  カットのような  $Y$  板の回転カット(図 2.6 中の白電極)で、これらの振動モードが励振されない。点群 2 における評価方法では、部分群であることを基に点群  $mm2$  のそれがあ程度適用されていることを前項で述べた。これより本研究では、同単斜晶系の点群 2 における材料定数の評価方法で用いられるカットと振動モードを足がかりに、点群  $m$  におけるそれらを検討することにした。

まず、点群 2 の評価方法で用いられるカットに対応したオイラー角を基に、そのカット方位に対する点群  $m$  での材料定数変換を行った。2.2.2 項で述べたように、オイラー角により座標変換した新座標系での材料定数は、測定から直接得られる材料定数(ダッシュ' が付してある)である。その新座標系における材料定数は、座標

変換前の旧座標系(ダッシュ'が付してない)における材料定数と、オイラー角とで関係付けられる。点群  $m$  におけるその関係は付録 A.7 に示してある。尚、そこに示す材料定数の添字に関して、軸(1, 2, 3, 4, 5, 6)を図 2.5 のようにとることに注意されたい。点群 2 の評価方法で用いられるカット方位に対する点群  $m$  での材料定数を表 2.3 に示す。但し、ここでは各カット方位に対する圧電定数  $d_{3j}'$  (電極面の面直方向が 3 軸)の違いのみを点群 2 と点群  $m$  とで比較してある。圧電定数  $d_{3j}'$  はそれ自体が振動モードを反映し、そこから得られる弾性定数  $s_{ij}^E$  も自ずと決まる。従って、ここでは煩雑になるのを避けるため、弾性定数  $s_{ij}^E$  については割愛した。

表 2.3 点群 2 の評価方法で用いられるカット方位に対する点群  $m$  での材料定数

点群 2 のカット	オイラー角	点群 2 のカット方位に対する点群 $m$ での材料定数
$(ZXt)\theta^\circ$ ( $\theta=0$ )	$R(0, 0, \theta)$ ( $\theta=0$ )	$d_{31}', d_{32}', d_{33}', d_{35}'$ がある ( $d_{34}' = d_{36}' = 0$ ) ※点群 2 では存在する成分が全く逆
$(ZXt)\theta^\circ$ ( $\theta=22.5, 45, 67.5$ )	$R(0, 0, \theta)$ ( $\theta=22.5, 45, 67.5$ )	$d_{31}', d_{32}', d_{33}', d_{34}', d_{35}', d_{36}'$ すべてがある ※点群 2 では $\theta=22.5, 67.5$ で $d_{33}'=0$ , $\theta=45$ で $d_{33}'=d_{36}'=0$
$(XYt)\theta^\circ$ ( $\theta=0$ )	$R(90, 90, \theta)$ ( $\theta=0$ )	$d_{31}', d_{32}', d_{33}', d_{34}'$ がある ( $d_{35}' = d_{36}' = 0$ ) ※点群 2 では存在する成分が全く逆
$(XYt)\theta^\circ$ ( $\theta=22.5, 45, 67.5$ )	$R(90, 90, \theta)$ ( $\theta=22.5, 45, 67.5$ )	$d_{31}', d_{32}', d_{33}', d_{34}', d_{35}', d_{36}'$ すべてがある ※点群 2 では $\theta=22.5, 67.5$ で $d_{33}'=0$ , $\theta=45$ で $d_{33}'=d_{36}'=0$
$(YZt)\theta^\circ$ ( $\theta=0, 22.5, 45, 67.5$ )	$R(180, 90, 90+\theta)$ ( $\theta=0, 22.5, 45, 67.5$ )	$d_{34}', d_{35}'$ がある ( $d_{31}' = d_{32}' = d_{33}' = d_{36}' = 0$ ) ※点群 2 では存在する成分が全く逆
$(XY)45^\circ$	$R(90, 135, 0)$	$d_{31}', d_{32}', d_{33}', d_{34}'$ がある ( $d_{35}' = d_{36}' = 0$ ) $\varepsilon_{33}' = 0.5\varepsilon_{11} - \varepsilon_{13} + 0.5\varepsilon_{33}$ ※点群 2 と $\varepsilon_{33}'$ の式は同じで、 $d$ は存在する成分が全く逆
$(YXw)45^\circ$	$R(-135, 90, 180)$	$d_{31}', d_{32}', d_{33}', d_{34}', d_{35}', d_{36}'$ すべてがある ※点群 2 でもすべての成分があるが、その関係式が全く異なる
$(ZYw)45^\circ$	$R(0, 45, 90)$	$d_{31}', d_{32}', d_{33}', d_{34}', d_{35}', d_{36}'$ すべてがある ※点群 2 でもすべての成分があるが、その関係式が全く異なる
$(YZtw)45^\circ/45^\circ$	$R(144.736, 60, 144.736)$	$d_{31}', d_{32}', d_{33}', d_{34}', d_{35}', d_{36}'$ すべてがある ※点群 2 でもすべての成分があるが、その関係式が全く異なる



表 2.4 表 2.3 中に示した圧電定数  $d_{3j}'$  と振動モードの対応

$d_{3j}'$	振動モード
$j = 1$	長さ方向の横効果長さ伸び振動 (Transverse-effect length-extensional: TE-LE)
$j = 2$	幅方向の横効果長さ伸び振動 (Transverse-effect width-extensional: TE-WE)
$j = 3$	厚み方向の縦効果厚み振動 (Longitudinal-effect thickness-extensional: LE-TE)
$j = 4$	幅方向の縦効果厚みすべり振動 (Longitudinal-effect thickness-shear: LE-TS)
$j = 5$	長さ方向の縦効果厚みすべり振動 (Longitudinal-effect thickness-shear: LE-TS)
$j = 6$	電極面内での横効果面内すべり振動 (Transverse-effect face-shear: TE-FS)

表 2.3 中の  $d_{3j}'$  ( $j = 1, 2, 3, 4, 5, 6$ ) の示唆する振動モードは表 2.4 に示すとおりである。これらの各種振動モードと軸の関係については付録 A.6 を参照されたい。表 2.3 に示す各カットに対する材料定数(圧電定数  $d_{3j}'$ ) を基に、以下では、点群 2 のカットを利用した場合に、点群  $m$  で利用可能な振動モードならびに算出可能な材料定数について検討する。ここで、材料定数を評価するためのカットと振動モードの組み合わせは煩雑さを考慮しなければ無限に存在するため、何を優先してその組み合わせを決定するかが重要となる。表 2.4 に示すように振動モードは多数あるが、低周波数帯での励振が可能であり、かつモード同定が比較的容易な TE-LE 振動の基本共振や TE-FS 振動を多く利用することが理想である。さらに、他の材料定数を用いて煩雑な関係式により算出するよりも、可能な限り独立にそれを算出できた方が単純で良い。本研究ではカットと振動モードの選定にこれらのことを必要条件とした。

### (1) $(ZXt)\theta^0$ ( $\theta = 0$ )

点群  $m$  では、このカットの  $d_{34}'$ 、 $d_{36}'$  成分が存在しないことから、幅方向の LE-TS 振動と TE-FS 振動が励振されないことがわかる。点群 2 はこれとは逆で、 $d_{34}'$ 、 $d_{36}'$  成分が存在し、他の  $d_{3j}'$  ( $j = 1, 2, 3, 5$ ) 成分が存在しない。これより、点群 2 ではこのカットの TE-FS 振動から  $d_{36}'$ 、 $s_{66}^E$  を算出し、 $d_{36}$ 、 $s_{66}^E$  が求められる。

一方、点群  $m$  では  $d_{36}'$  成分がないため、このカットから  $d_{36}$  や  $s_{66}^E$  を直接求めることはできないが、 $d_{3j}'$  ( $j = 1, 2$ ) 成分が存在することから、TE-LE 振動より  $d_{31}$ 、 $s_{11}^E$  を、TE-WE 振動より  $d_{32}$ 、 $s_{22}^E$  をそれぞれ求めることができる。また、TE-WE 振動を用いず TE-LE 振動のみを用いて  $d_{32}$ 、 $s_{22}^E$  を求めるのであれば、このカットの代わりに  $(ZYw)0^0$  を使うことも可能である。

まとめると、点群  $m$  では、 $(ZXt)0^0$  の TE-LE 振動から  $d_{31}$ 、 $s_{11}^E$ 、 $\epsilon_{33}^T$  を、 $(ZYw)0^0$  の TE-LE 振動から  $d_{32}$ 、 $s_{22}^E$ 、 $\epsilon_{33}^T$  を求めることが可能である。

## (2) (ZXt) $\theta^\circ$ ( $\theta = 22.5, 45, 67.5$ )

点群 2 では、 $\theta = 22.5, 67.5$  で  $d_{33}' = 0$ 、 $\theta = 45$  で  $d_{33}' = d_{36}' = 0$  となる。これより点群 2 では、これらカットの TE-LE 振動から、 $s_{11}^E$ 、 $s_{22}^E$ 、 $s_{12}^E$  ならびに  $d_{36}$  が求められる。

一方、点群  $m$  ではこれらカットに対して 6 つの  $d_{3j}'$  ( $j = 1, 2, 3, 4, 5, 6$ ) 成分がすべて存在する。これより、これらカットの TE-FS 振動、TE-LE 振動の利用が考えられる。 $\theta = 22.5, 67.5$  の TE-FS 振動では、 $s_{66}^E$  と  $s_{11}^E$ 、 $s_{12}^E$ 、 $s_{22}^E$ 、 $s_{66}^E$  の関係式が得られる。また、 $\theta = 45$  では、 $s_{66}^E$  と  $s_{11}^E$ 、 $s_{12}^E$ 、 $s_{22}^E$  の関係式が得られる。これより、(ZXt) $45^\circ$  の TE-FS 振動から  $s_{12}^E$  を求めることが可能である。さらに、同カットの TE-LE 振動では  $s_{11}^E$  と  $s_{11}^E$ 、 $s_{12}^E$ 、 $s_{22}^E$ 、 $s_{66}^E$  の関係式が得られることから  $s_{66}^E$  を求めることが可能である。圧電定数に関しては、同カットの  $d_{31}'$  (TE-LE 振動) と  $d_{36}'$  (TE-FS 振動) の関係式から  $d_{31}$ 、 $d_{32}$  を求めることが可能であるが、これは (ZXt) $\theta^\circ$  ( $\theta = 0$ ) と重複する。

まとめると、点群  $m$  では (ZXt) $45^\circ$  の TE-FS 振動ならびに TE-LE 振動を用いて、それぞれ  $s_{12}^E$  と  $s_{66}^E$  ( $d_{31}$ 、 $d_{32}$ ) を求めることが可能である。但し、点群  $m$  では、圧電定数にすべりの定数  $d_{26}$  が存在するため、 $s_{66}^E$  は単独で求めるよりも  $d_{26}$  に付随するものとして同時に求める方が理にかなっており一般的である。このことについては次項で述べる。

## (3) (XYt) $\theta^\circ$ ( $\theta = 0$ )

このカットにおける点群 2 と点群  $m$  の違いは、(1) で示した (ZXt) $\theta^\circ$  ( $\theta = 0$ ) の場合と類似していた。点群  $m$  では  $d_{3j}'$  ( $j = 5, 6$ ) 成分が存在しないことから、長さ方向の LE-TS 振動と TE-FS 振動が励振されないことがわかる。点群 2 はこれとは逆で、 $d_{3j}'$  ( $j = 5, 6$ ) 成分が存在し、他の  $d_{3j}'$  ( $j = 1, 2, 3, 4$ ) 成分が存在しない。これより、点群 2 ではこのカットの TE-FS 振動から  $d_{36}'$ 、 $s_{66}^E$  を算出することで、 $d_{14}$ 、 $s_{44}^E$  が求められる。

一方、点群  $m$  では  $d_{36}'$  成分がないため、点群 2 のようにこのカットから  $d_{14}$  や  $s_{44}^E$  を直接求めることはできないが、 $d_{3j}'$  ( $j = 1, 2$ ) 成分が存在することから、TE-LE 振動より  $d_{12}$ 、 $s_{22}^E$  を、TE-WE 振動より  $d_{13}$ 、 $s_{33}^E$  をそれぞれ求めることができる。また、TE-WE 振動を用いず TE-LE 振動のみを用いて  $d_{13}$ 、 $s_{33}^E$  を求めるのであれば、このカットの代わりに (XZw) $0^\circ$  を使うことも可能である。

まとめると、点群  $m$  では、(XYt) $0^\circ$  の TE-LE 振動から  $d_{12}$ 、 $s_{22}^E$ 、 $\varepsilon_{11}^T$  を、(XZw) $0^\circ$  の TE-LE 振動から  $d_{13}$ 、 $s_{33}^E$ 、 $\varepsilon_{11}^T$  を求めることが可能である。

## (4) (XYt) $\theta^\circ$ ( $\theta = 22.5, 45, 67.5$ )

点群 2 では、 $\theta = 22.5, 67.5$  で  $d_{33}' = 0$ 、 $\theta = 45$  で  $d_{33}' = d_{36}' = 0$  となる。これは(2) で示した (ZXt) $\theta^\circ$  ( $\theta = 22.5, 45, 67.5$ ) の場合と同様である。これより点群 2 では、これらカットの TE-LE 振動から、 $s_{22}^E$ 、 $s_{23}^E$ 、 $s_{33}^E$  ならびに  $d_{14}$  が求められる。

一方、点群  $m$  ではこれらカットに対して 6 つの  $d_{3j}$  ( $j = 1, 2, 3, 4, 5, 6$ ) 成分がすべて存在する。これより、 $(ZXt)\theta^\circ$  ( $\theta = 22.5, 45, 67.5$ ) の場合と同様、これらカットの TE-FS 振動、TE-LE 振動の利用が考えられる。 $\theta = 22.5, 67.5$  の TE-FS 振動では、 $s_{66}^E$  と  $s_{22}^E, s_{23}^E, s_{33}^E, s_{44}^E$  の関係式が得られる。また、 $\theta = 45$  では、 $s_{66}^E$  と  $s_{22}^E, s_{23}^E, s_{33}^E$  の関係式が得られる。これより、 $(XYt)45^\circ$  の TE-FS 振動から  $s_{23}^E$  を求めることが可能である。さらに、同カットの TE-LE 振動では  $s_{11}^E$  と  $s_{22}^E, s_{23}^E, s_{33}^E, s_{44}^E$  の関係式が得られることから  $s_{44}^E$  を求めることが可能である。圧電定数に関しては、同カットの  $d_{31}$ ' (TE-LE 振動) と  $d_{36}$ ' (TE-FS 振動) の関係式から  $d_{12}, d_{13}$  を求めることが可能であるが、これは  $(XYt)\theta^\circ$  ( $\theta = 0$ ) と重複する。

まとめると、 $(XYt)45^\circ$  の TE-FS 振動ならびに TE-LE 振動を用いて、それぞれ  $s_{23}^E$  と  $s_{44}^E$  ( $d_{12}, d_{13}$ ) を求めることが可能である。但し、点群  $m$  では、圧電定数にすべりの定数  $d_{24}$  が存在するため、 $s_{44}^E$  は単独で求めるよりも  $d_{24}$  に付随するものとして同時に求める方が理にかなっており一般的である。このことについては次項で述べる。

#### (5) $(YZt)\theta^\circ$ ( $\theta = 0, 22.5, 45, 67.5$ )

点群 2 では  $d_{34}' = d_{35}' = 0$  であり、これらカットでは LE-TS 振動以外の振動が励振されることがわかる。これより点群 2 では、これらカットの TE-LE 振動を用いて、 $s_{35}^E, s_{13}^E, s_{55}^E, s_{15}^E$  と  $d_{21}, d_{23}, d_{25}$  が求められる。

一方、点群  $m$  ではこれらカットの  $d_{3j}$  ( $j = 4, 5$ ) 成分のみが存在し、LE-TS 振動以外の振動モードが励振されないことがわかる。本項の冒頭でも述べたが、点群  $m$  ではこのような  $Y$  板の回転カットで、TE-LE 振動や TE-FS 振動が励振されない。先述したように、TE-LE 振動や TE-FS 振動は、低周波数帯での励振が可能であり、モード同定が比較的容易であることから、材料定数の評価においてできるだけ多く利用したい振動モードである。これら  $Y$  板の回転カットの LE-TS 振動を用いた場合に得られる材料定数は、 $(YZt)0^\circ$  では  $e_{34}' = e_{26}, c_{44}^D = c_{66}^D$  ならびに  $e_{35}' = e_{24}, c_{55}^D = c_{44}^D$  である。ここで、圧電定数と弾性定数の表記が  $d$  と  $s^E$  ではなく  $e$  と  $c^D$  になっている理由は、LE-TS 振動が縦効果であり、圧電  $e$  形式に従うからである。横効果では電気的条件が  $E = 0$  (電極短絡) であるが、縦効果では  $D = 0$  (開放) となり、音波の実効弾性定数  $c_{eff}$  がそれぞれ横効果では  $c^E$ 、縦効果では  $c^D$  となる。そして、弾性定数  $c^E$  と  $c^D$  は反電界効果を介して電気機械結合係数  $k$  で結び付けられる。横効果と縦効果についての概説は付録 A.8 に記述するとし、このような LE-TS 振動を本研究で取り扱おうとした場合には、得られた  $c^D$  を  $c^E$  に変換し、それから逆マトリクス変換を経て  $s^E$  を得る必要がある。しかし、これにはいささか手間がかかる。また、LE-TS 振動は高周波数帯での励振のため、低周波数帯励振の TE-LE 振動や TE-WE 振動の高次モード(基本共振の奇数倍)が重なることが懸念される。以上より点群  $m$  では、弾性定数ならびに圧電定数の算出に、これら  $Y$  板の回転カットを用いず、誘電率  $\epsilon_{22}^T$  の評価にのみ用いることが望ましいと言える。

## (6) (XY)45°

点群  $m$  では  $d_{35}' = d_{36}' = 0$  である一方、点群 2 ではこれとは逆で  $d_{35}'$  と  $d_{36}'$  のみが存在する。これより点群 2 では、このカットの TE-FS 振動から  $s_{66}^E$  を算出し、 $s_{44}^E$ 、 $s_{66}^E$ 、 $s_{46}^E$  との関係式から  $s_{46}^E$  が求められる。また、 $d_{36}'$  から  $d_{14}$ 、 $d_{16}$ 、 $d_{34}$ 、 $d_{36}$  との関係式が得られ、さらに  $\varepsilon_{33}^T$  と  $\varepsilon_{11}^T$ 、 $\varepsilon_{33}^T$  との関係式から  $\varepsilon_{13}^T$  が求められる。

点群  $m$  では  $d_{36}' = 0$  であるため、このカットでは TE-FS 振動が励振されない。しかし、 $d_{31}'$ 、 $d_{32}'$  成分が存在するため TE-LE 振動ならびに TE-WE 振動が励振される。前者では  $d_{31}'$  と  $d_{12}$ 、 $d_{32}$  の関係式が得られるが、ともに前のカットで得られる定数であり、重複する。また、後者では  $d_{32}'$  と  $d_{11}$ 、 $d_{13}$ 、 $d_{15}$ 、 $d_{31}$ 、 $d_{33}$ 、 $d_{35}$  の関係式が得られるが、関係式中に未知数を多く含むためあまり有効ではない。従って、点群  $m$  では (XY)45° を点群 2 と同様に  $\varepsilon_{13}^T$  の評価にのみ用いることが望ましいと言える。

## (7) (YXw)45°, (ZYw)45°, (YZtw)45°/45°

これら 3 カットに関して、点群 2 と点群  $m$  ともにすべての  $d_{3j}'$  ( $j = 1, 2, 3, 4, 5, 6$ ) 成分が存在するが、圧電定数に関する関係式は両者で全く異なる。前節で述べたとおり、点群 2 ではこれら 3 カットの TE-LE 振動と(6)で示した(XY)45°の TE-FS 振動から得られるいくつかの関係式を用いて、 $d_{16}$ 、 $d_{22}$ 、 $d_{34}$ 、 $d_{25}$  ならびに  $s_{25}^E$  が求められる。ここまでで、点群 2 のカットを利用して求めることのできる点群  $m$  の材料定数は、すべての誘電率  $\varepsilon_{11}^T$ 、 $\varepsilon_{22}^T$ 、 $\varepsilon_{33}^T$ 、 $\varepsilon_{13}^T$ 、ならびに弾性定数  $s_{11}^E$ 、 $s_{22}^E$ 、 $s_{33}^E$ 、 $s_{44}^E$ 、 $s_{66}^E$ 、 $s_{12}^E$ 、 $s_{23}^E$ 、圧電定数  $d_{12}$ 、 $d_{13}$ 、 $d_{31}$ 、 $d_{32}$  である。以下、点群  $m$  でこれら 3 つの回転カットを利用して算出できる残りの材料定数とそのための振動モードについて検討する。

(YXw)45° の TE-FS 振動では、 $s_{66}^E$  と  $s_{44}^E$ 、 $s_{55}^E$  との関係式が得られ、これより  $s_{55}^E$  が求められる。また、 $d_{36}'$  と  $d_{15}$ 、 $d_{24}$  との関係式が得られるが、ここでは  $d_{15}$  と  $d_{24}$  が未知数である。同カットの TE-LE 振動では、 $s_{11}^E$  と  $s_{11}^E$ 、 $s_{12}^E$ 、 $s_{22}^E$ 、 $s_{66}^E$  との関係式が得られるが、これらはもうすでに求められる定数である。また、 $d_{31}'$  と  $d_{11}$ 、 $d_{12}$ 、 $d_{26}$  との関係式が得られるが、ここでも  $d_{11}$  と  $d_{26}$  が未知数である。次に (ZYw)45° に関して、このカットの TE-FS 振動では、 $s_{66}^E$  と  $s_{66}^E$ 、 $s_{55}^E$  との関係式が得られ、これより (YXw)45° と同様に  $s_{55}^E$  が求められる。また、 $d_{36}'$  と  $d_{26}$ 、 $d_{35}$  との関係式が得られるが、ここでも  $d_{26}$  と  $d_{35}$  が未知数である。同カットの TE-LE 振動では  $s_{11}^E$  と  $s_{22}^E$ 、 $s_{23}^E$ 、 $s_{33}^E$ 、 $s_{44}^E$  との関係式が得られるが、これらはもうすでに求められる定数である。また、 $d_{31}'$  と  $d_{32}$ 、 $d_{33}$ 、 $d_{24}$  との関係式が得られるが、ここでも  $d_{33}$  と  $d_{24}$  が未知数である。(YXw)45° と (ZXw)45° についてまとめると、弾性定数については両者の TE-FS 振動から新たに  $s_{55}^E$  が求められる。一方、圧電定数については 4 つの関係式が得られるが、未知数が 6 つあるためこの段階では求められないことがわかる。最後に、(YZtw)45°/45° であるが、点群 2 と同様に点群  $m$  でも TE-FS 振動と TE-LE 振動が励振される。前者では、 $d_{36}'$  と 10 個すべての圧電定数との関

係式が得られるが、まだそのうち 6 個は未知数である。また、 $s_{66}^E$  と  $s_{11}^E$ 、 $s_{13}^E$ 、 $s_{33}^E$ 、 $s_{44}^E$ 、 $s_{66}^E$ 、 $s_{46}^E$ 、 $s_{12}^E$ 、 $s_{15}^E$ 、 $s_{23}^E$ 、 $s_{35}^E$  との関係式が得られるが、10 個のうち 4 個が未知数である。さらに後者では、TE-FS 振動の場合と同様、 $d_{31}'$  と 10 個すべての圧電定数との関係式が得られるが、そのうち 6 個が未知数である。また、 $s_{11}^E$  と 13 個すべての弾性定数との関係式が得られるが、やはり 10 個のうち 5 個が未知数である。 $(YZtw)45^\circ/45^\circ$  についてまとめると、先から 4 つの関係式が増えただけで、新たに材料定数は求められないことがわかる。

以上、点群 2 のカットを用いた場合に点群  $m$  で利用可能な振動モードや算出可能な定数について検討した結果、4 個すべての誘電率( $\epsilon_{11}^T$ 、 $\epsilon_{22}^T$ 、 $\epsilon_{33}^T$ 、 $\epsilon_{13}^T$ )、13 個のうちの 8 個の弾性定数( $s_{11}^E$ 、 $s_{22}^E$ 、 $s_{33}^E$ 、 $s_{44}^E$ 、 $s_{66}^E$ 、 $s_{12}^E$ 、 $s_{23}^E$ 、 $s_{55}^E$ )、10 個のうちの 4 個の圧電定数( $d_{12}$ 、 $d_{13}$ 、 $d_{31}$ 、 $d_{32}$ )を算出できることがわかった。ここで重要なことは、点群 2 のカットを点群  $m$  で用いても、異方性が異なるため同一のカットで励振される振動モードや得られる材料定数は両点群で全く異なり、従って点群 2 のカットを用いた場合の点群  $m$  での振動モードと算出可能な材料定数の組み合わせを、上記の検討により一から考案した点である。その結果、点群 2 では利用できた  $(YZt)\theta^\circ$  が点群  $m$  では有効でないため  $s_{35}^E$ 、 $s_{13}^E$ 、 $s_{15}^E$  が求められないこと、圧電定数  $d_{11}$ 、 $d_{33}$ 、 $d_{15}$ 、 $d_{24}$ 、 $d_{26}$ 、 $d_{35}$  が点群 2 のカットから直接求められないことが問題であった。また、すべりの弾性定数  $s_{44}^E$  と  $s_{66}^E$  を、すべりの圧電定数  $d_{24}$  と  $d_{26}$  にそれぞれ付随するものとして、同時に求める方法が一般的である。そこで、点群 2 では利用しない新たなカットと振動モードを検討することにした。

以下、これらの問題を解消するための新たな方策について示す。まず、(i) 「側面電極を用いた縦効果面内すべり振動による評価」として、 $s_{44}^E$  と  $d_{24}$  ならびに  $s_{66}^E$  と  $d_{26}$  をそれぞれ同時に求める方法について示す。次に、(ii) 「 $(ZXw)\theta^\circ$  を用いた横効果長さ伸び振動による評価」として、点群 2 のカットを用いて算出できなかったすべての弾性定数と圧電定数を算出する方法について示す。さらに、(iii) 「棒柱試料を用いた棒の縦効果厚み伸び振動による評価」として、圧電定数  $d_{11}$  と  $d_{33}$  を直接かつ独立に評価する方法について示す。最後に、点群  $m$  に属する圧電結晶の材料定数評価に必要なカットと振動モードをまとめて示す。

#### (i) 「側面電極を用いた縦効果面内すべり振動による評価」

一般に“すべりの圧電定数”と言われる  $d_{14}(d_{36}')$  や  $d_{26}(d_{26}')$  などに関しては、モード結合さえなければ、それに付随する弾性定数を同時に求めるのが一般的である。ここで“すべり(shear)”とは圧電すべり効果のことを意味する(例えば、図 2.1(b))。すべりの定数(shear constants)の評価で多く使われる TE-FS 振動から求められる圧電定数は  $d_{36}'$  である。このことは付録 A.6 の 4 からわかる。従って、実際の圧電定数としては  $d_{14}$ 、 $d_{25}$ 、 $d_{36}$  があり、それに付随する弾性定数としては  $s_{44}^E$ 、 $s_{55}^E$ 、 $s_{66}^E$  がある。例えば、点群 2 では TE-FS 振動から、 $d_{14}$  と  $s_{44}^E$  を、 $d_{36}$  と  $s_{66}^E$  をそれぞれ

同時に求める。点群  $m$  では、点群 2 で用いる  $(ZXt)45^\circ$  や  $(XYt)45^\circ$  の TE-FS 振動を用いて  $s_{12}^E$ 、 $s_{23}^E$  を求め、さらに TE-LE 振動を用いて  $s_{44}^E$ 、 $s_{66}^E$  を求めることが可能であるが、共振子の形状によってはモード結合が懸念されるため(実際にモード結合を第 3 章で確認)、できるだけ避けたい。点群  $m$  では圧電定数  $d_{2j} = 0$  ( $j = 1, 2, 3, 5$ ) であるため、 $Y$  面に関わる圧電定数は  $d_{24}$  と  $d_{26}$  のみであり、これらはモード結合することなく純粋に分離することができる<sup>19)</sup>。ここで、モード結合とは、2 つ以上の固有の振動モードの共振周波数が近い場合に起こる結合振動のことを言う<sup>14)</sup>。付録 A.6 の 5 からわかるように、圧電定数  $d_{24}$  と  $d_{26}$  はそれ自体が縦効果面内すべり (LE-FS) 振動を意味する。このことを踏まえ、次のような方法を考案した。

図 2.7(a) に示すように、 $(XZw)0^\circ$  の  $Y$  面(2 軸に垂直な面)電極に交流電界を印加すると、 $X$  面(1 軸に垂直な面)の LE-FS 振動( $d_{24}$ )と  $Z$  面(3 軸に垂直な面)の LE-FS 振動( $d_{26}$ )が励振される。このカットの LE-FS 振動は上面( $d_{24}$ )と側面( $d_{26}$ )に 2 つ存在するが、その他の  $d_{2j}$  ( $j = 1, 2, 3, 5$ ) 成分が存在しないため、これらはモード結合することなくそれぞれが純粋に(他の振動モードは励振されずに)励振される。また、面内すべり (Face-shear: FS) 振動であるため、すべりの弾性定数  $s_{44}^E$  を  $d_{24}$  と同時に、 $s_{66}^E$  を  $d_{26}$  と同時にそれぞれ評価することが可能である。同様に、図 2.7(b) に示すように、 $(ZXw)0^\circ$  の  $Y$  面(2 軸に垂直な面)電極に交流電界を印加すると、 $X$  面(1 軸に垂直な面)の FS 振動( $d_{24}$ )と  $Z$  面(3 軸に垂直な面)の FS 振動( $d_{26}$ )が励振される。これより、すべりの弾性定数  $s_{66}^E$  を  $d_{26}$  と同時に、 $s_{44}^E$  を  $d_{24}$  と同時に評価することが可能である。このように、2 つの  $Y$  面電極カットのうち一方のみを用いて、圧電定数  $d_{24}$ 、 $d_{26}$  ならびに弾性定数  $s_{44}^E$ 、 $s_{66}^E$  を評価することが可能であるが、カット上面での FS 振動( $d_{26}'$ )の方が側面でのそれ( $d_{24}'$ )と比べて音波の波長が長く、より低周波数帯に励振されるため、カット上面で励振される FS 振動( $d_{26}'$ )を利用の方が望ましい。これより、 $d_{24}$  と  $s_{44}^E$  の評価には、 $(XZw)0^\circ$  の  $Y$  面電極による LE-FS 振動( $d_{26}'$ )を用い、 $d_{26}$  と  $s_{66}^E$  の評価には、 $(ZXw)0^\circ$  の  $Y$  面電極による LE-FS 振動( $d_{26}'$ )を用いることが有効である。但し、カット形状としては、電極面積を広くとるため長さ方向を長く、幅方向(電極間距離)を短くする必要がある。

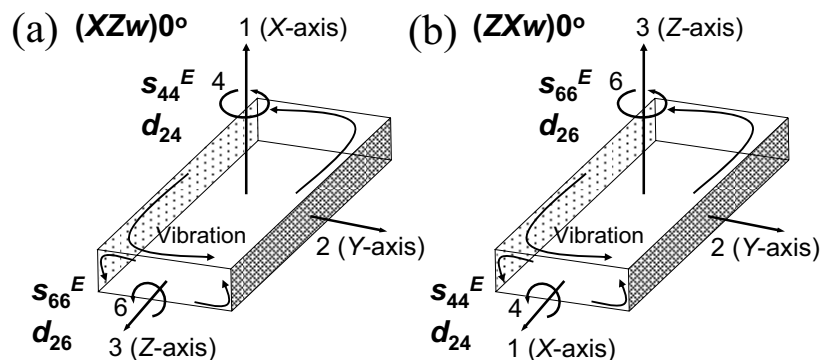


図 2.7  $d_{24}$  と  $s_{44}^E$  ならびに  $d_{26}$  と  $s_{66}^E$  をそれぞれ同時に求めるための側面( $Y$  面)電極励振による縦効果面内すべり (LE-FS) 振動. (a)  $Y$  面電極  $(XZw)0^\circ$ , (b)  $Y$  面電極  $(ZXw)0^\circ$ .

(ii) 「(ZXw) $\theta^\circ$ を用いた横効果長さ伸び振動による評価」

点群 2 で(YZt) $\theta^\circ$  ( $\theta = 0, 22.5, 45, 67.5$ )の TE-LE 振動を用いて算出する弾性定数  $s_{13}^E$ 、 $s_{15}^E$ 、 $s_{35}^E$ を点群  $m$  で求めるためのカットを検討した結果、(ZXw) $0^\circ$ を  $Y$  軸周りに回転させた(ZXw) $\theta^\circ$  が有効であることがわかった。以下、その回転角 $\theta$ の組み合わせによって異なる2つの方法(評価①と評価②)を示す。

回転角 $\theta$ の組み合わせの1つ(評価①)が、図 2.8 に示す $\theta = 22.5, 45, 135$ の3つのカットの組み合わせである。これら3つのカットは  $d_{34}' = d_{36}' = 0$  であるため幅方向の LE-TS 振動と TE-FS 振動は励振されないが、 $d_{3j}'$  ( $j = 1, 2, 3, 5$ )成分が存在するため、低周波数帯での励振が可能な TE-LE 振動が励振される。(ZXw) $\theta^\circ$  ( $\theta = 22.5, 45, 135$ )の TE-LE 振動から得られる  $s_{11}^E$ の連立方程式により、弾性定数  $s_{13}^E$ 、 $s_{15}^E$ 、 $s_{35}^E$ を求めることができる。これより、(7)で述べた(YZtw) $45^\circ/45^\circ$ から得られる弾性定数に関する2つの関係式を用いて、残りの  $s_{25}^E$ と  $s_{46}^E$ を求めることができ、点群  $m$ における13個すべての弾性定数を算出することができる。また、(ZXw) $\theta^\circ$  ( $\theta = 45, 135$ )の TE-LE 振動からそれぞれ得られる  $d_{31}'$ を用いて、圧電定数  $d_{15}$ と  $d_{35}$ を求めることができる。低周波数帯での励振が可能であると同時にモード同定が容易な TE-LE 振動のみを利用して、すべりの圧電定数  $d_{15}$ と  $d_{35}$ を算出できることは有効的である。

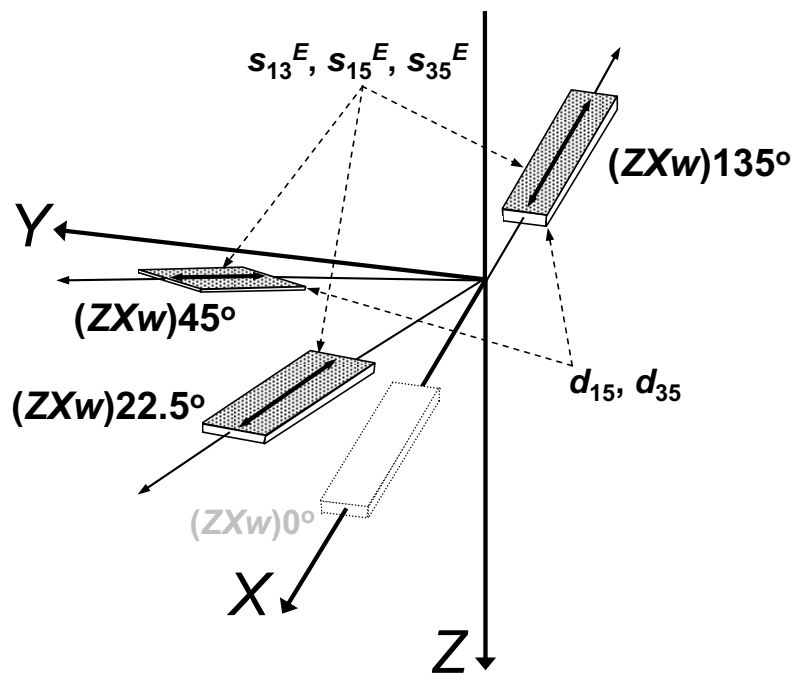


図 2.8 弾性定数  $s_{13}^E$ 、 $s_{15}^E$ 、 $s_{35}^E$ ならびに圧電定数  $d_{15}$ 、 $d_{35}$ を求めるための横効果長さ伸び(TE-LE)振動を励振する(ZXw) $\theta^\circ$  ( $\theta = 22.5, 45, 135$ ).

もう 1 つの組み合わせ(評価②)は、図 2.9 に示す  $\theta = \pm 22.5, 45$  の 3 つのカットの組み合わせである。評価①の  $\theta = 135$  を  $\theta = -22.5$  とした組み合わせでも、同様に TE-LE 振動から得られる 3 つの  $s_{11}^E$  に関する連立方程式により、弾性定数  $s_{13}^E$ 、 $s_{15}^E$ 、 $s_{35}^E$  を求めることができる。これより、評価①と同様、(7)で述べた  $(YZw)45^\circ/45^\circ$  から得られる弾性定数に関する 2 つの関係式を用いて、残りの  $s_{46}^E$  と  $s_{25}^E$  を求めることができ、点群  $m$  における 13 個すべての弾性定数を算出することができる。さらに、 $(ZXw)\theta^\circ$  ( $\theta = \pm 22.5$ ) の TE-LE 振動からそれぞれ得られる  $d_{31}'$  を用いて、圧電定数  $d_{15}$  と  $d_{35}$  を求めることができる。

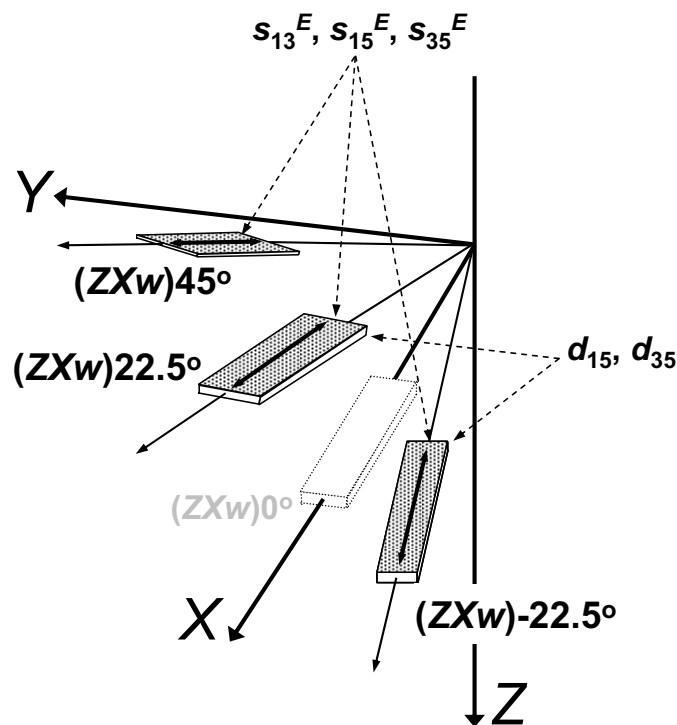


図 2.9 弾性定数  $s_{13}^E, s_{15}^E, s_{35}^E$  ならびに圧電定数  $d_{15}, d_{35}$  を求めるための横効果長さ伸び(TE-LE)振動を励振する  $(ZXw)\theta^\circ$  ( $\theta = \pm 22.5, 45$ ).

### (iii) 「棒柱試料を用いた棒の縦効果厚み伸び振動による評価」

$(YXw)45^\circ$  の TE-LE 振動から得られる  $d_{31}'$  と  $d_{12}((XYt)0^\circ$  の TE-LE 振動より)、 $d_{26}$ (Y面電極  $(ZXw)0^\circ$  の LE-FS 振動より)から  $d_{11}$  を、 $(ZYw)45^\circ$  の TE-LE 振動から得られる  $d_{31}'$  と  $d_{32}((ZYw)0^\circ$  の TE-LE 振動より)、 $d_{24}$ (Y面電極  $(XZw)0^\circ$  の LE-FS 振動より)から  $d_{33}$  をそれぞれ求めることができる。この方法については付録 A.9 を参照されたい。しかし、圧電定数  $d_{11}$  と  $d_{33}$  の評価には、ピエゾ縦効果を利用した次に示す方法が単純で有効である。



圧電定数  $d_{11}$  と  $d_{33}$  はピエゾ縦効果であるため、棒柱試料の縦効果厚み伸び(LE-TE)振動により、直接的かつ独立に  $d_{33}$  を評価することができる。付録 A.6 の 2 にあるような板の縦効果厚み振動についても同様に利用可能ではあるが、これは音波の波長が短く高周波での励振になり、モード同定が難しくなる点や低周波数帯励振の TE-LE 振動の高次モードとの結合によりスプリアス共振を起こす点などの懸念があるため、避けたい。図 2.10(a)と(b)に示すように、圧電定数  $d_{11}$  の評価に  $X$  面電極棒柱試料  $X$ -bar の LE-TE 振動を、圧電定数  $d_{33}$  の評価に  $Z$  面電極棒柱試料  $Z$ -bar の LE-TE 振動を用いる。但し、棒柱試料は電極面積が狭く、電極間距離が長い形状をしていることから、誘電率  $\epsilon_{11}^T$ 、 $\epsilon_{33}^T$  の小さい材料の場合、電束漏れが無視できないため、縦効果の電氣的条件が破綻してしまう。

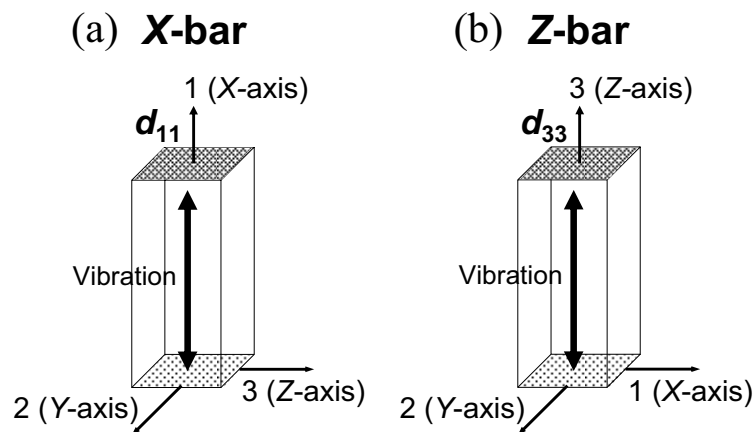


図 2.10 圧電定数  $d_{11}$  と  $d_{33}$  を評価するための縦効果厚み伸び(LE-TE)振動を励振する棒柱試料 (a) $X$ -bar, (b) $Z$ -bar.

以上、点群 2 では利用しない新たなカットと振動モードを検討し、点群 2 のカットを利用して評価することができなかつた材料定数を、新たに評価するための方策を考案した。最後に、ここまで議論した材料定数を評価するためのカットと振動モード、そこから得られる材料定数を整理し、表 2.5 に算出式とともにその一覧をまとめる。表 2.5 に示すように、確立した点群  $m$  における材料定数の評価では、横効果(Transverse-effect: TE)と縦効果(Longitudinal-effect: LE)の 4 種類の振動モードを励振させる 17 種類のカットを相補的に使い、27 個すべての材料定数を評価する。その評価に必要なカットの模式図を、振動モードとそこから得られる材料定数とともに、図 2.11、図 2.12、図 2.13 に示す。

表 2.5 点群  $m$  における材料定数評価のための一覧表

カット	モード*	材料定数の算出式	定数
X-bar Z-bar	LE-TE	$d_{33}' = d_{11}$ $d_{33}' = d_{33}$	$d_{11}$ $d_{33}$
(ZYw)0° (ZXw)0° (XYt)0° (XZw)0°	TE-LE	$d_{31}' = d_{32}, s_{11}^E = s_{22}^E, \epsilon_{33}^T = \epsilon_{33}^T$ $d_{31}' = d_{31}, s_{11}^E = s_{11}^E, \epsilon_{33}^T = \epsilon_{33}^T$ $d_{31}' = d_{12}, s_{11}^E = s_{22}^E, \epsilon_{33}^T = \epsilon_{11}^T$ $d_{31}' = d_{13}, s_{11}^E = s_{33}^E, \epsilon_{33}^T = \epsilon_{11}^T$	$d_{31}$ $d_{32}$ $d_{12}$ $d_{13}$ $s_{11}^E$ $s_{22}^E$ $s_{33}^E$ $\epsilon_{11}^T$ $\epsilon_{33}^T$
(XZw)0° (Y電極)	LE-FS	$d_{26}' = d_{24}$ $s_{66}^E = s_{44}^E$	$d_{24}$ $s_{44}^E$
(ZXw)0° (Y電極)	LE-FS	$d_{26}' = d_{26}$ $s_{66}^E = s_{66}^E$	$d_{26}$ $s_{66}^E$
(YXw)45°	TE-FS	$s_{66}^E = 1/2(s_{44}^E + s_{55}^E)$ $d_{36}' = 1/2(d_{15} - d_{24})$	$s_{55}^E$ $d_{15}$
	TE-LE	$s_{11}^E = 1/4(s_{11}^E + 2s_{12}^E + s_{22}^E + s_{66}^E)$ $d_{31}' = -0.354(d_{11} + d_{12} - d_{26})$	$s_{12}^E$
(ZYw)45°	TE-FS	$s_{66}^E = 1/2(s_{55}^E + s_{66}^E)$ $d_{36}' = 1/2(d_{26} - d_{35})$	$s_{55}^E$ $d_{35}$
	TE-LE	$s_{11}^E = 1/4(s_{22}^E + 2s_{23}^E + s_{33}^E + s_{44}^E)$ $d_{31}' = 0.354(d_{33} + d_{32} - d_{24})$	$s_{23}^E$
評価① (ZXw) $\theta$ ° $\theta = 22.5, 45, 135$	TE-LE	$s_{11}^E(45^\circ) + s_{11}^E(135^\circ) = 1/2(s_{11}^E + 2s_{13}^E + s_{33}^E + s_{55}^E)$ $s_{11}^E(45^\circ) - s_{11}^E(135^\circ) = s_{15}^E + s_{35}^E$ $s_{11}^E(22.5^\circ) = 0.729s_{11}^E + 0.25s_{13}^E + 0.604s_{15}^E$ $\quad + 0.0214s_{33}^E + 0.104s_{35}^E + 0.125s_{55}^E$ $d_{31}'(45^\circ) = 0.354(d_{11} + d_{13} - d_{35} + d_{15} - d_{33} - d_{31})$ $d_{31}'(135^\circ) = 0.354(d_{11} + d_{13} - d_{35} - d_{15} + d_{33} + d_{31})$	$s_{13}^E$ $s_{15}^E$ $s_{35}^E$ $d_{15}$ $d_{35}$
評価② (ZXw) $\theta$ ° $\theta = \pm 22.5, 45$	TE-LE	$s_{11}^E(22.5^\circ) + s_{11}^E(-22.5^\circ) = 1.457s_{11}^E + 0.5s_{13}^E$ $\quad + 0.0429s_{33}^E + 0.25s_{55}^E$ $s_{11}^E(22.5^\circ) - s_{11}^E(-22.5^\circ) = 1.207s_{15}^E + 0.207s_{35}^E$ $s_{11}^E(45^\circ) = 0.25s_{11}^E + 0.5s_{13}^E + 0.5s_{15}^E + 0.25s_{33}^E$ $\quad + 0.5s_{35}^E + 0.25s_{55}^E$ $d_{31}'(-22.5^\circ) + d_{31}'(22.5^\circ) = -0.271d_{15} + 1.58d_{31} + 0.271d_{33}$ $d_{31}'(-22.5^\circ) - d_{31}'(22.5^\circ) = 0.653d_{11} + 0.112d_{13} - 0.653d_{35}$	$s_{13}^E$ $s_{15}^E$ $s_{35}^E$ $d_{15}$ $d_{35}$
(YZtw)45°/45°	TE-FS	$s_{66}^E = 1/4(2s_{11}^E - 4s_{13}^E + 2s_{33}^E + s_{44}^E + s_{66}^E - 2s_{46}^E)$ $\quad - (1.924 \times 10^{-5})(s_{12}^E + s_{15}^E - s_{23}^E - s_{35}^E)$	$s_{46}^E$
	TE-LE	$s_{11}^E = 1/16(s_{11}^E + s_{33}^E + s_{55}^E) + 1/14(s_{12}^E + s_{22}^E + s_{23}^E)$ $\quad + s_{25}^E + s_{46}^E) + 1/8(s_{13}^E + s_{15}^E + s_{35}^E + s_{44}^E + s_{66}^E)$	$s_{25}^E$
(XYt)45°	—	$\epsilon_{33}^T = 1/2(\epsilon_{11}^T - 2\epsilon_{13}^T + \epsilon_{33}^T)$	$\epsilon_{13}^T$
Y-cut	—	$\epsilon_{33}^T = \epsilon_{22}^T$	$\epsilon_{22}^T$

\*LE-TE (Longitudinal-effect thickness-extensional) : 縦効果厚み伸び振動

TE-LE (Transverse-effect length-extensional) : 横効果長さ伸び振動

LE-FS (Longitudinal-effect face-shear) : 縦効果面内すべり振動

TE-FS (Transverse-effect face-shear) : 横効果面内すべり振動

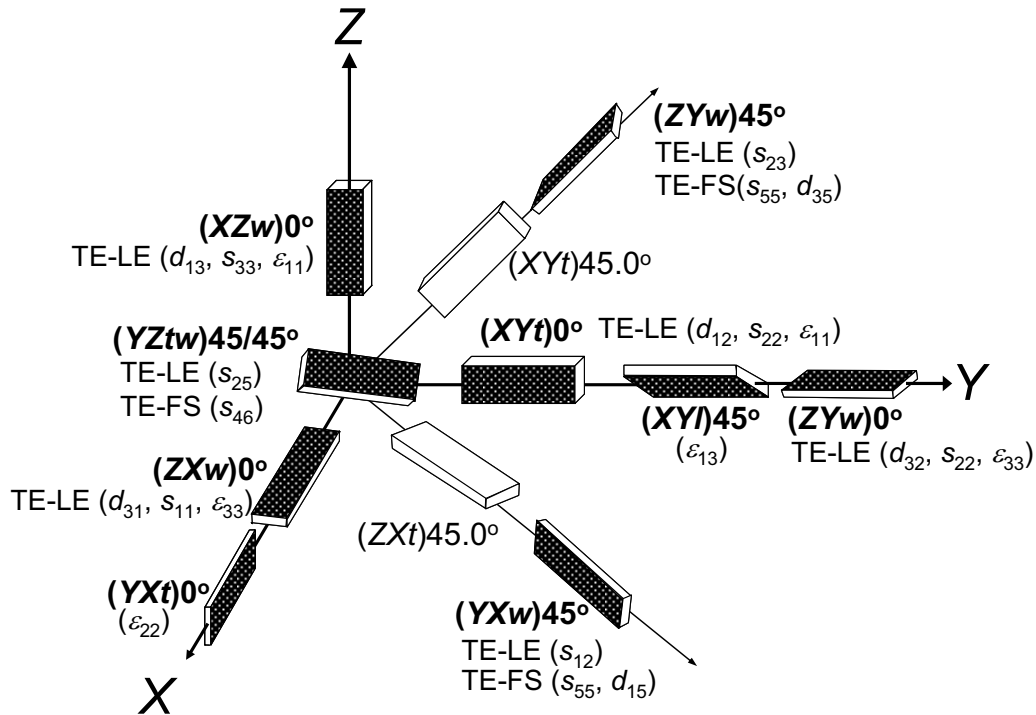


図 2.11 点群  $m$  の材料定数評価に必要な横効果共振子用のカットと励振される振動モード、算出可能な材料定数. 白色のカットはモード結合が懸念されるカット.

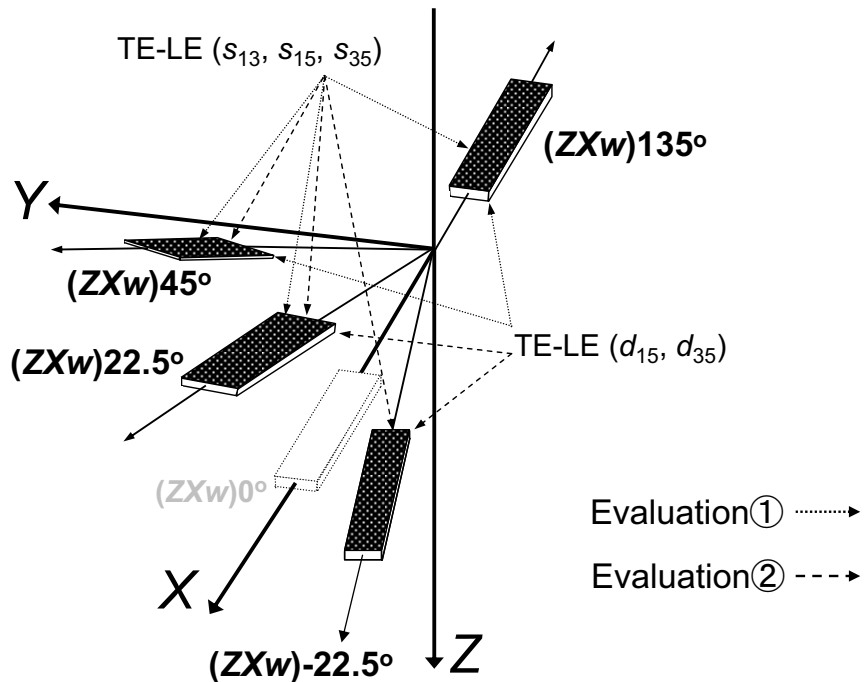


図 2.12 点群  $m$  の材料定数評価に必要な横効果共振子用のカットと励振される振動モード、算出可能な材料定数. 評価① :  $(ZXw)\theta^\circ (\theta = 22.5, 45, 135)$  の横効果長さ伸び振動, 評価② :  $(ZXw)\theta^\circ (\theta = \pm 22.5, 45)$  の横効果長さ伸び振動.

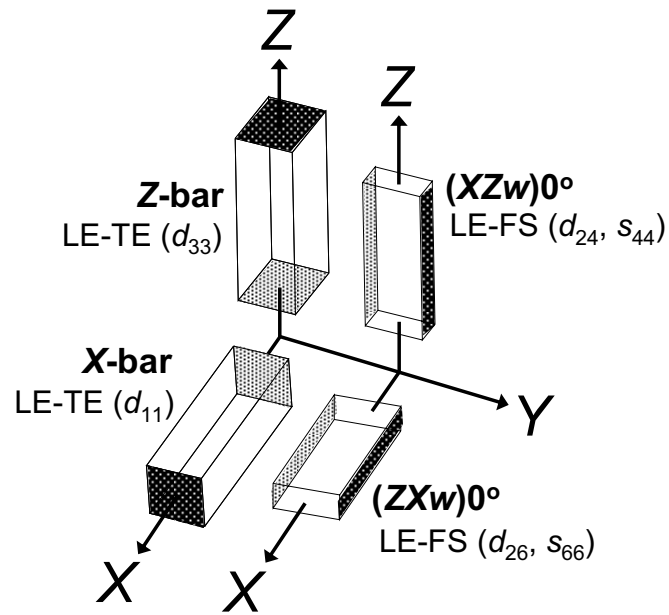


図 2.13 点群  $m$  の材料定数評価に必要な縦効果共振子用のカットと励振される振動モード、算出可能な材料定数.

## 2.4 結言

本章では、点群  $m$  における材料定数の評価方法の確立を目指し、Warren P. Mason による単斜晶系の点群 2 における材料定数の評価方法を礎に、それを確立した結果について述べた。以下、その内容をまとめる。

圧電性を示す 2 つの単斜晶系の点群(2 と  $m$ )で、材料定数の対称性が異なるのは圧電定数のみであり、誘電率と弾性定数に違いがないことから、まず点群 2 の材料定数評価方法を検討した。Warren P. Mason の点群 2 における材料定数評価方法では、16 種類のカットならびに比較的振動モードの同定が容易でありかつ低周波数帯で励振される横効果長さ伸び振動と横効果面内すべり振動の 2 種類の振動モードを用いる。この点群 2 のカットを用いた場合に点群  $m$  で利用可能な振動モードや算出可能な定数について検討した結果、4 個すべての誘電率、13 個のうちの 8 個の弾性定数、10 個のうちの 4 個の圧電定数を算出できることがわかった。しかし、点群 2 では利用できる  $(YZt)\theta^\circ$  ( $\theta = 0, 22.5, 45, 67.5$ ) が点群  $m$  では有効でないため、弾性定数  $s_{13}^E, s_{15}^E, s_{35}^E$  が求められないこと、点群 2 では存在しない圧電定数  $d_{11}, d_{33}, d_{15}, d_{24}, d_{26}, d_{35}$  が点群 2 の既存カットから直接求められないことが示唆された。そこで、点群  $m$  で新たなカットを検討し、次のような方法を考案した。

- すべりの弾性定数  $s_{44}^E, s_{66}^E$  を、共振子の形状によってはモード結合が危惧される  $(XYt)45^\circ, (ZXt)45^\circ$  を用いて評価するのではなく、モード結合がなく純粹に励振される  $d_{26}$  縦効果面内すべり振動を用いて、圧電定数  $d_{24}, d_{26}$  とともに算出する方法を考えた。 $d_{24}$  と  $s_{44}^E$  の評価には  $Y$  面電極  $(XZw)0^\circ$  を用い、 $d_{26}$  と  $s_{66}^E$  の評価には  $Y$  面電極  $(ZXw)0^\circ$  を用いる。
- 点群 2 のカットを用いて算出できない弾性定数  $s_{13}^E, s_{15}^E, s_{35}^E$  を、 $(ZXw)\theta^\circ$  ( $\theta = 22.5, 45, 135$  あるいは  $\pm 22.5, 45$ ) の横効果長さ伸び振動を用いて算出可能であることを明らかにした。これより、弾性定数  $s_{13}^E, s_{15}^E, s_{35}^E$  が算出可能になり、結果  $s_{25}^E, s_{46}^E$  も算出可能になったことで、点群  $m$  における 13 個すべての弾性定数の算出が可能になった。それと同時に、 $(ZXw)\theta^\circ$  ( $\theta = 45, 135$  あるいは  $\pm 22.5$ ) の横効果長さ伸び振動を用いて、すべりの圧電定数  $d_{15}, d_{36}$  を算出可能であることを明らかにした。
- 圧電定数  $d_{11}, d_{33}$  の直接的かつ独立な評価に、棒柱試料  $X\text{-bar}$  と  $Z\text{-bar}$  の縦効果厚み伸び振動を用いることを考案した。但し、棒柱試料は電極面積が狭く、電極間距離が長い形状をしていることから、誘電率  $\epsilon_{11}^T, \epsilon_{33}^T$  の小さい材料の場合、電束漏れが無視できないため、縦効果の電氣的条件が破綻してしまう。

以上、17 種類のカットを相補的に用い、それらカットの横効果と縦効果の 4 種類の振動モードを利用し、点群  $m$  に属する圧電結晶の材料定数を評価する方法を確立した。

## 参考文献

- 1) R. Bechmann, A. D. Ballato and T. J. Lukaszek: "Higher-Order Temperature Coefficients of the Elastic Stiffness and Compliances of Alpha-Quartz", Proc. IRE, Vol. 50, pp. 1812-1822 (1962).
- 2) B. J. James: "A New Measurement of the Basic Elastic and Dielectric Constants of Quartz", Proc. 42nd Annual Freq. Contr. Symp., pp. 146-154 (1988).
- 3) J. Kushibiki, I. Takanaga and S. Nishiyama: "Accurate Measurements of the Acoustical Physical Constants of Synthetic  $\alpha$ -quartz for SAW Devices", IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control, Vol. 49, No. 1, pp. 125-135 (2002).
- 4) Yu. V. Pisarevsky, P. A. Senushcov, P. A. Popov and B. V. Mill: "New Strong Piezoelectric  $\text{La}_3\text{Ga}_{5.5}\text{Nb}_{0.5}\text{O}_{14}$  with Temperature Compensation Cuts", 1995 Proc. IEEE Int. Freq. Contr. Symp., pp. 653-656 (1995).
- 5) S. Sakharov, P. Senushencov, A. Medvedev and Yu. Pisarevsky: "New Data on Temperature Stability Acoustical Losses of Langasite Crystals", Proc. IEEE Freq. Contr. Symp., pp. 647-652 (1995).
- 6) K. Inoue and K. Sato: "Propagation Characteristics of Surface Acoustic Waves on Langasite", Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 37, No. 5, pp. 2909-2913 (1998).
- 7) A. Bungo, C-Y. Jian, K. Yamaguchi, Y. Sawada, S. Uda and Yuri. P. Pisarevsky: "Analysis of Surface Acoustic Wave Properties of the Rotated Y-cut Langasite Substrate", Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 38, No. 5, pp. 3239-3243 (1999).
- 8) M. Adachi, T. Karaki and W. Miyamoto: "Surface Acoustic Wave Properties of  $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$  (Langasite) and Single Crystal", Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 38, No. 5, pp. 3283-3287 (1999).
- 9) A. W. Warner, M. Onoe and G. A. Coquin: "Determination of elastic and piezoelectric constants for crystals in class (3m)", J. Acoust. Soc. Amer., Vol. 42, No. 6, pp. 1223-1231 (1967).
- 10) R. T. Smith and F. S. Welsh: "Temperature Dependence of the Elastic, Piezoelectric, and Dielectric Constants of Lithium Tantalate and Lithium Niobate", J. Appl. Phys., Vol. 42, No. 6, pp. 2219-2230 (1971).
- 11) 尾上守夫・監修: "電気電子のための固体振動論の基礎", オーム社 (1982).
- 12) 小川智哉・著: "結晶物理工学 第10版", 裳華房 (1996).
- 13) 日本学術振興会弾性波素子技術第150委員会・編: "弾性波素子技術ハンドブック", オーム社 (1991).
- 14) 池田拓郎・著: "圧電材料学の基礎", オーム社 (1984).
- 15) T. Ikeda: "Fundamentals of Piezoelectricity", Oxford University Press (1996).

- 16) 日本学術振興会弾性波素子技術第 150 委員会・編: “弾性波デバイス技術”, オーム社 (2004).
- 17) IEEE Standard on Piezoelectricity, ANSI/IEEE Std 176-1987, pp. 1-54 (1987).
- 18) Warren P. Mason: “Properties of Monoclinic Crystals”, Phys. Rev., Vol. 70, pp. 705-728 (1946).
- 19) Dr T. Karaki at Toyama Prefecture University: “Private communication”, Nara, Japan (2004).

# 第3章 希土類カルシウムオキソボレート結晶の材料定数評価

## 3.1 緒言

RCOB 結晶は優れた非線形光学効果を示すことから、圧電特性ならびに弾性表面波(Surface Acoustic Wave: SAW)特性への興味を持たれることを第1章で述べた。中でも、*R*サイトを La、Gd、Y とした  $\text{LaCa}_4\text{O}(\text{BO}_3)_3$  (以下、LaCOB)、 $\text{GdCa}_4\text{O}(\text{BO}_3)_3$  (以下、GdCOB)、 $\text{YCa}_4\text{O}(\text{BO}_3)_3$  (以下、YCOB)は優れた非線形光学効果を示す点や原料が安価などの利点があると同時に、クラックフリーかつ各種特性を評価するに十分な大きさのバルク単結晶が作製可能であることが先行研究から伺えた。本研究では、先行研究と同様にチョクラルスキー(Czochralski: Cz)法を用い、上記の結晶のバルク単結晶作製を行い、それらの結晶学的評価を行った。さらに、第2章で確立した点群 *m* の材料定数評価方法<sup>1,2)</sup>をそれら結晶の材料定数評価に適用し、材料定数を決定した。また、一部の材料定数の温度係数ならびに熱膨張係数を評価した。

本章 3.2 節では、結晶作製方法と作製結果について述べた後、作製結晶の結晶学的評価の結果を示す。また、材料定数を評価するためにまず必要な結晶軸と圧電軸の対応関係について述べ、作製結晶の形状と結晶軸、圧電軸の関係を示す。3.3 節では、材料定数を評価するための共振子の作製、その圧電特性の測定方法である共振 - 反共振法について述べ、その後で確立した材料定数評価方法を実際に適用し、作製結晶の材料定数を決定した結果について述べる。さらに 3.4 節で、一部の材料定数の温度係数ならびに圧電軸方向の熱膨張係数を評価した結果について述べる。最後に 3.5 節で、本章で得られた結果をまとめる。

## 3.2 バルク単結晶の作製とその諸特性評価

### 3.2.1 作製方法と作製結果

#### (1) 作製方法

結晶作製にはチョクラルスキー(Czochralski: Cz)法を用いた。この方法は溶融引き上げ法とも呼ばれ、1916年に Czochralski が鉛の表面張力を測定するために考案した手法<sup>3)</sup>に端を発し、有機化合物に対しても同じ頃から使われている方法である。Cz 法は融液(メルト)状態になった原料に上方から種結晶(シード)をメルト表面に浸け(シードタッチ)、シードを回転しながら少しずつ引き上げていく方法である。



Cz法の利点は、

- 1) 作製結晶が坩堝に直接接することがないため坩堝からの応力、不純物の影響を受けにくい
- 2) 任意の結晶方位に単結晶を作製することができる
- 3) 大型の結晶が再現性よく得られる
- 4) 作製中の状態を観察できる

などである。一方、欠点としては以下のようなことが挙げられる。

- 1) 坩堝材料の融点以上の結晶は作製困難である
- 2) 作製する材料の融液が分解溶解しない場合のみ良好な結晶が得られる (コングルエント溶解、あるいは調和溶解と称される)
- 3) 歩留まりが悪い

Cz法は半導体の結晶作製のために生産過程の中に取り入れられたことから作製技術の改善が行われ、現在ではすべての作製方法の中で最もよく原理と装置が確立されている。熱源としては高周波加熱の他に黒鉛抵抗加熱がよく用いられているが、電子ビーム加熱により太いインゴットの中心部に融液のプールを作り、その中から結晶を引き上げるものもある。

本研究で結晶作製に用いた装置は、高周波誘導加熱型単結晶引き上げ装置(G20-200K: テクノサーチ)である。本装置の写真と概略図を図 3.1 に示す。結晶作製温度が 1500°C 近辺まで上がることがあるため、坩堝には白金ではなくイリジウム(田中貴金属工業株式会社製)のものを用いた。坩堝の寸法は直径 50 mm、高さ 50 mm、厚さ 1 mm のものを使用した。坩堝の周りにはアルミナバブルを敷き詰め、その外側はアルミナ坩堝で二重に覆われている。坩堝の上方には単結晶引き上げの際に、極力温度勾配を減少させるため、アルミナあるいはジルコニアを加工して作製した保温筒が組まれている。それらの一番外側は、Ar 雰囲気中で作製するために、石英ガラス管で覆われている。これはイリジウム坩堝の酸化を防ぐためである。種結晶を固定するアルミナ棒、さらにそれに接続する装置の回転軸には、固形酸化物用引き上げ重量検出用ロードセルが取り付けられている。このロードセルは、回転しつつ成長する固形酸化物の重量変化を検出して、電圧値の信号に変換するものである。

LaCOB 結晶、GdCOB 結晶、YCOB 結晶の作製に用いた原料粉末を表 3.1 に示す。これら使用原料がすべて水を含みやすいため、灼熱減量を考慮した上で秤量し、化学両論組成になるように大気中で混合した。灼熱減量の条件は各原料の示差熱重量分析(Thermogravimetry-Differential Thermal Analysis: TG-DTA)の結果と文献 4)を考慮し、La<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 粉末、Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 粉末、Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 粉末では 1000°C とし、CaCO<sub>3</sub> 粉末と B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

粉末では 500°C とした。ここで、TG-DTA には、マックサイエンス社製の TG-DTA2020S を用いた。3 結晶すべてにおいて、混合粉末を電気炉(SB-2025D: モトヤマ)で 1000°C ならびに 1100°C でそれぞれ 2 時間大気中にて仮焼し、得られた仮焼粉末を 1200°C で 2 時間大気中にて本焼後、LaCOB 粉末、GdCOB 粉末、YCOB 粉末の圧密体を得た。これを Ar 雰囲気中で高周波誘導加熱によりイリジウム坩堝中に全溶解させた。この際、温度勾配を考慮し坩堝をアルミナバブルと保温筒で囲み、それ全体を石英管の中に置いた。また、石英管中を Ar 雰囲気にし、高温におけるイリジウム坩堝の酸化を防いだ。高周波誘導加熱時の昇温速度はプログラム制御により 200 °C/h で行った。結晶作製では、坩堝中のメルトに種結晶をタッチした後ネッキング<sup>5)</sup>を行い、そこから徐々に太らせ、ある程度の直径を維持した状態で回転させながら引き上げることで、メルトを固化させ結晶化させた。尚、ロードセルの電圧値の変化を読み取りながら、手動で高周波加熱コイルのアノード出力を調整し、作製される単結晶の直径を随時制御した。また、冷却はクラック発生を避けるため 24 時間以上かけて(~60 °C/h)徐々に降温させた。得られた As-grown 結晶には歪みが存在するため、それを緩和する目的で 10 時間のポストアニールを行った。作製条件の詳細を表 3.2 にまとめる。ここで、表 3.2 中の融点の値は作製結晶の TG-DTA 結果から求めたものである。図 3.2 に示すように、これらの値は文献 6)の結果と一致し、R サイトを占有する元素のイオン半径と結晶融点との関係を確認することができた。ここで、R サイトを占有する元素のイオン半径については文献 7)の値を引用した。

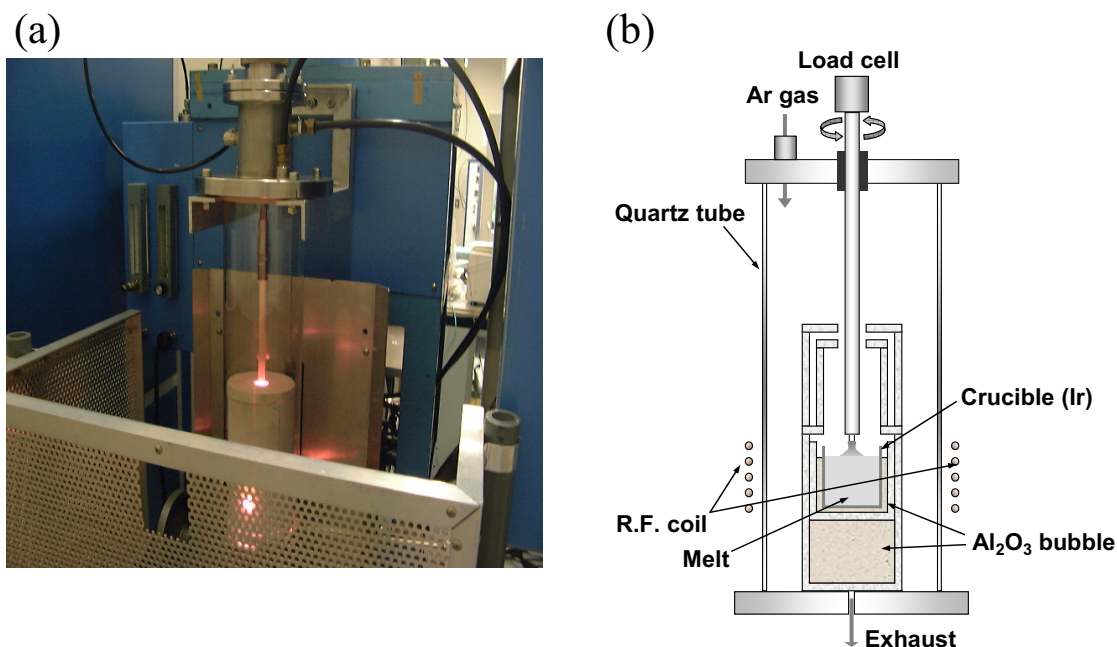


図 3.1 高周波誘導加熱型単結晶引き上げ装置 (a)結晶作製中の装置の写真(炉内温度は 1500°C 程度), (b)装置の概略図.

表 3.1 結晶作製に用いた原料粉末\*

	希土類原料	カルシウム原料	ホウ素原料
LaCOB 結晶	La <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	CaCO <sub>3</sub>	B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>
製造会社	レアメタリック	レアメタリック	添川理化学
GdCOB 結晶	Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	CaCO <sub>3</sub>	B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>
製造会社	レアメタリック	レアメタリック	添川理化学
YCOB 結晶	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	CaCO <sub>3</sub>	B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>
製造会社	レアメタリック	レアメタリック	添川理化学

\*純度はすべて 99.99%である

表 3.2 各結晶の作製条件

	LaCOB	GdCOB	YCOB
種結晶	LaCOB	GdCOB	YCOB
融点	1420°C	1500°C	1520°C
坩堝	イリジウム		
成長方位	<i>b</i> 軸 [010]		
雰囲気	Ar (1.8~2.0 L/min)		
回転速度	20 rpm		
引き上げ速度	2 mm/h	3 mm/h	3 mm/h
ポストアニール	1000°C-10 h	1100°C-10 h	1300°C-10 h

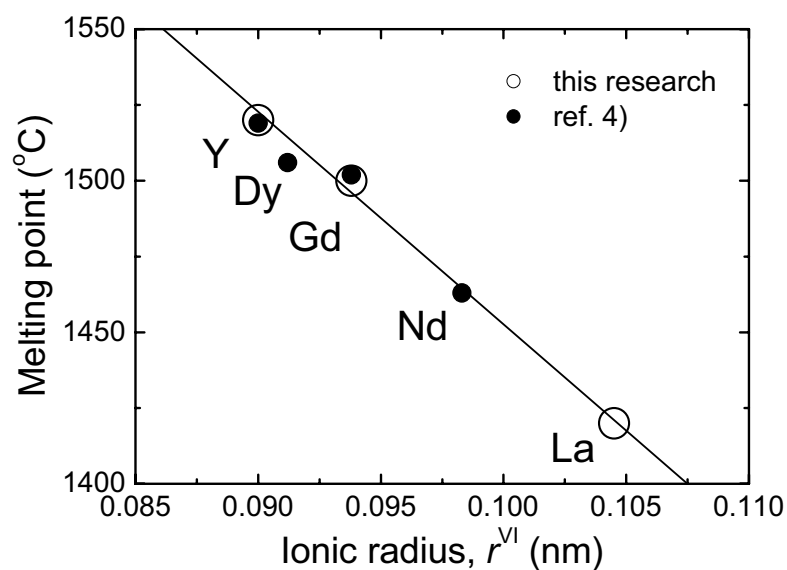


図 3.2 R サイトを占有する元素のイオン半径と結晶融点との関係。イオン半径の増加に伴い、融点は低下する。白丸は本研究でのデータ、黒丸は報告値<sup>4)</sup>。

## (2) 作製結果

LaCOB 結晶、GdCOB 結晶、YCOB 結晶の作製結果について述べる前に、先行研究におけるこれら結晶作製の実績について少し記述する。

1999 年に Qing Ye らは、種々の希土類元素で置換した結晶の熱挙動を評価し、YCOB 結晶の R サイトの置換限界を見積もった<sup>8)</sup>。彼らの示した YCOB 結晶における希土類元素の固溶限界を図 3.3 に示す。これによると、100%ドーピングできる GdCOB と YCOB はそれぞれ単結晶として作製可能であるが、それら以外の希土類の置換限界は 50%以下であるため、 $R = \text{Lu}, \text{Yb}, \text{Nd}, \text{La}$  の単一な希土類元素のみからなる結晶は作製できないとされた。このことを受け、大阪大学の中尾は、希土類元素のうち  $\text{Gd}^{3+}$  と  $\text{Y}^{3+}$  の中間のイオン半径を有する Dy ( $r^{\text{VI}} = 0.0912 \text{ nm}^7$ ) が単一な希土類結晶が作製できる最も有力な元素であると考えた<sup>6)</sup>。さらに彼は、図 3.3 では単結晶が作製できないとされた  $\text{Gd}^{3+}$  と  $\text{Y}^{3+}$  よりもイオン半径の大きな  $\text{Nd}^{3+}$ 、イオン半径の小さな  $\text{Tm}^{3+}$  と  $\text{Lu}^{3+}$  の置換の可能性についても検証した。その結果、DyCOB と NdCOB で透明な結晶の作製に成功したこと、TmCOB と LuCOB では多結晶化してしまい単結晶が得られないことを見出しており、これより R サイトが許容できる元素のサイズは Qing Ye らの見積もりよりも大きいことが示唆された。実際にその後、アメリカの J. J. Adams や中国の H. J. Zhang らによって、ランタノイド系列の中でイオン半径が最大の  $\text{La}^{3+}$  を用いた LaCOB 結晶に関してその作製結果が報告されており<sup>9, 10)</sup>、筆者らも時期を同じくして LaCOB 結晶の作製に着手した<sup>11)</sup>。

本研究で作製した LaCOB 結晶、GdCOB 結晶、YCOB 結晶の作製結果をそれぞれ図 3.4、図 3.5、図 3.6 に示す。尚、ここに示した結晶にはすべてポストアニールが施されている。また、実際に作製した結晶は多数あるが、ここには代表的なものを記載した。

これらの結晶はすべて平滑平面であり無色透明であった。また、インクルージョン、バブル、クラックなどは見られず、作製結晶にマクロ欠陥がないことを確認した。これらのことは As-grown 結晶でも同様であった。作製結晶の直径は LaCOB 結晶で 1.5~2.0 cm、GdCOB 結晶で 2.5~3.0 cm、YCOB 結晶で 1.5~2.0 cm であった。GdCOB 結晶ならびに YCOB 結晶は先行の光学研究で多くの報告例があり<sup>12-20)</sup>、2.5~4.0 cm の大型結晶の作製が比較的容易に行えることがわかっている。LaCOB 結晶に関しては、先述した J. J. Adams や H. J. Zhang らの報告<sup>9, 10)</sup>でも、それほど大きな結晶は得られておらず、前者では 2.5 cm、後者では 1.8 cm 程度にとどまっている。本研究で作製した LaCOB 結晶では、図 3.4 に示すように、直径が 2.5 cm 程度の大型結晶を作製するとクラックが発生し、良好な結晶は得られなかった。これは、R サイトをイオン半径の大きな  $\text{La}^{3+}$  が占有していることで、結晶が作製中の温度変動や結晶冷却中の温度変化に対して不安定になっているためと考えられる。

作製した LaCOB 結晶、GdCOB 結晶、YCOB 結晶に共通した知見として、次のことが挙げられる。3.2.3 項に示す図 3.19 からわかるように、直胴部に  $\{101\}$  と

{20 $\bar{1}$ }が発達し、それらの面に囲まれた四辺形状をしていた。このファセット成長については Z. Shujun からも報告している<sup>21)</sup>。さらに、2本の成長稜が観測され、一方は(101)と(20 $\bar{1}$ )ファセット間、もう一方は( $\bar{1}0\bar{1}$ )と( $\bar{2}01$ )ファセット間に見られた。3.2.3項で述べるが、本研究でこの成長稜と圧電軸の関係を初めて見出した。

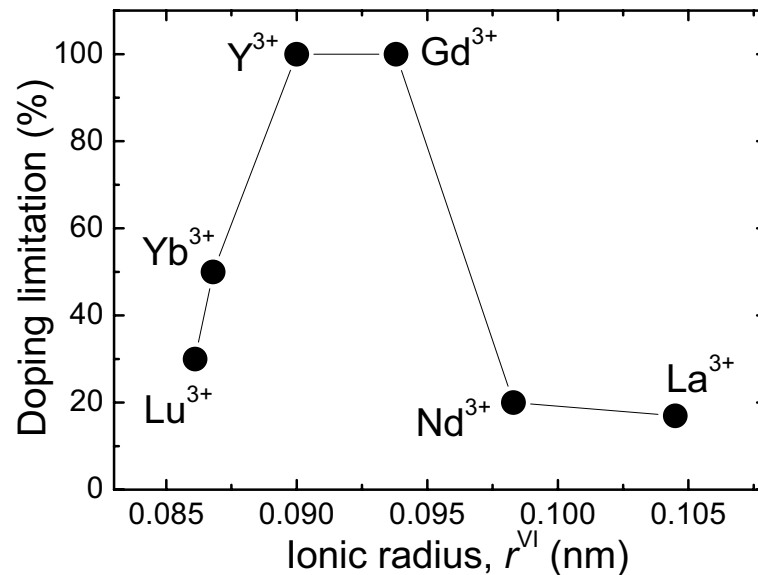


図 3.3 YCOB 結晶における希土類元素の固溶限界<sup>8)</sup>。100%ドーピング可能な GdCOB と YCOB はそれぞれ単結晶として作製可能, それら以外の希土類の置換限界は 50%以下。



図 3.4 ポストアニールを施した LaCOB 結晶. 直径は 1.5~2.0 cm. 写真はカラー撮影.



図 3.5 ポストアニールを施した GdCOB 結晶. 直径は 2.5~3.0 cm. 写真はカラー撮影.

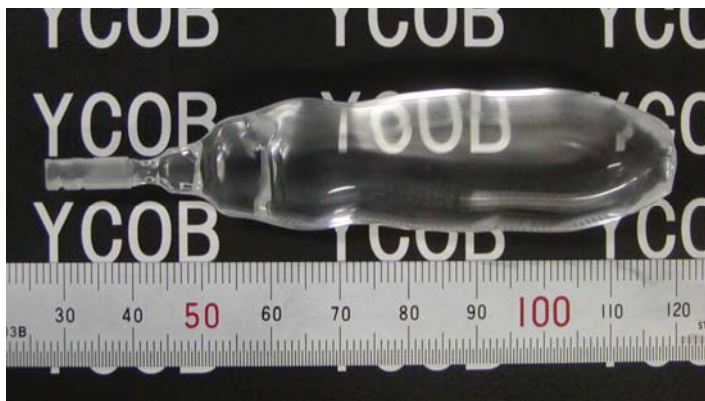


図 3.6 ポストアニールを施した YCOB 結晶. 直径は 1.5~2.0 cm. 写真はカラー撮影.



図 3.7 2.5 cm 程度の直径で作製したクラックの入った LaCOB As-grown 結晶. 写真はカラー撮影.

## 3.2.2 作製結晶の結晶学的評価

### (1) 成長方位の決定

作製結晶の成長方位は  $b$  軸[010]であるが、それを背面反射ラウエ X 線によりすべての結晶に対して確認した。まず、ポストアニールを施した結晶を成長方位と垂直方向にダイヤモンドカッター(ISOMET: BUEHLER)により切断し、擬似  $b(ac)$ 面を出した。図 3.8(a)に示すように、擬似  $b$  面の出た結晶を回転式治具にマウントし、それを背面反射ラウエ X 線装置(M03XHF: マックサイエンス)にセットし、ラウエ写真の撮影を行った。X線源としては、強い連続 X 線が得られる W、Mo のような重金属をターゲットに用いると線状に連なったラウエスポットが得られ、解析が容易になる。一方、Cu ターゲットを X 線源として使用するとラウエスポットがあまり観測されずに方位決定に苦慮する場合が多い。そのため本研究では W ターゲットを用いた。また、用いた装置の連続定格は 3 kW であり、ラウエ写真撮影の際の管電圧、管電流はそれぞれ 40 kV、30 mA であった。X 線の照射時間は結晶により異なり、1分から3分であった。図 3.9(a)と(b)に、撮影した LaCOB 結晶  $b$  面のラウエ写真とラウエ斑点の模式図をそれぞれ示す。これより、 $b$  面における 2 回の対称性を確認した。点群  $m$  では、実空間で  $b$  面に 2 回対称軸はなく、鏡面のみが存在する。しかし、付録 A.2 に示すように、ラウエ群は  $2/m$  であり、 $b$  面内には 2 回の対称性がある。図 3.9(b)のように、ラウエ斑点を結んだ直線の交点の中心にくるように結晶を煽り、成長方位( $b$  軸)を決定した。図 3.10 ならびに図 3.11 はそれぞれ GdCOB 結晶、YCOB 結晶のラウエ写真を示しており、双方の結晶についても同様に成長方位の決定を行った。また、図 3.8(b)に示すように、方位の決定がなされた結晶をそのままのマウント状態で、ダイヤモンドカッター(MPC200: ムサシノ電子)により切断することで正確に  $b$  面を露出した。

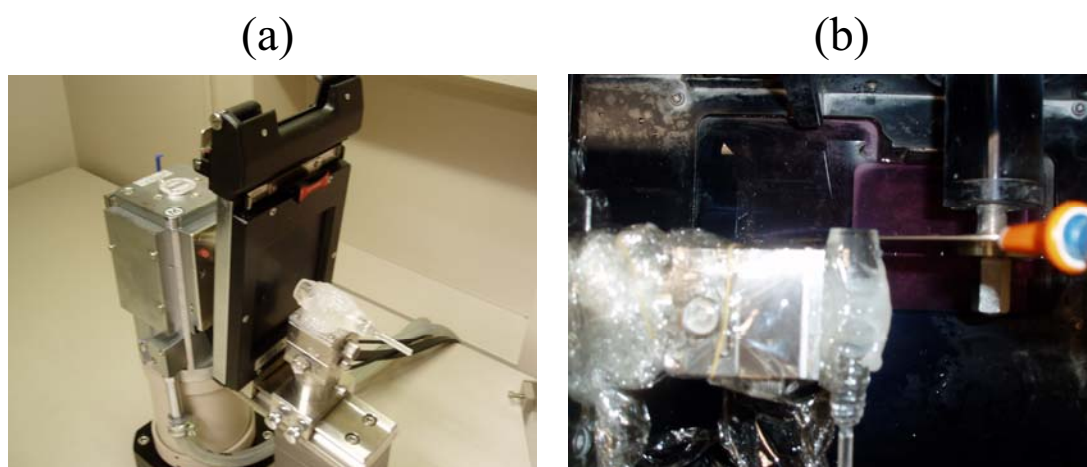


図 3.8 (a)背面反射ラウエ X 線の光学系, (b)カッターによる面出し. (a)では回転式治具にマウントした結晶を煽り, 成長方位を決定. そのまま(b)のようにカッターで面出し.

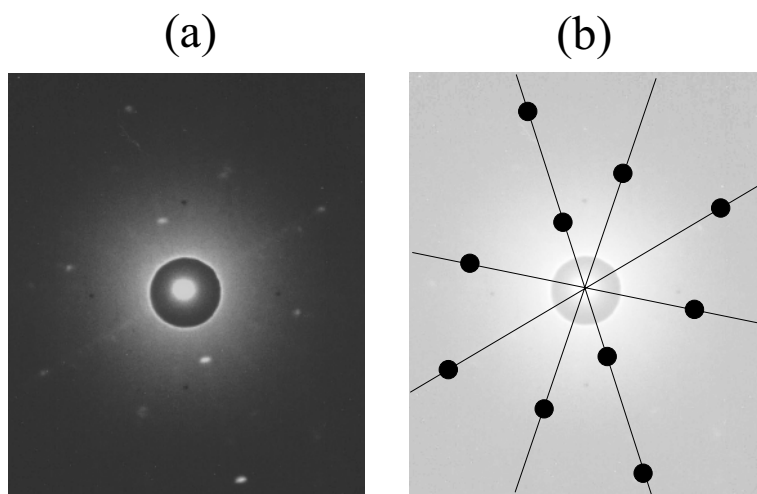


図 3.9 (a)LaCOB 結晶  $b$  面のラウエ写真, (b)模式図.

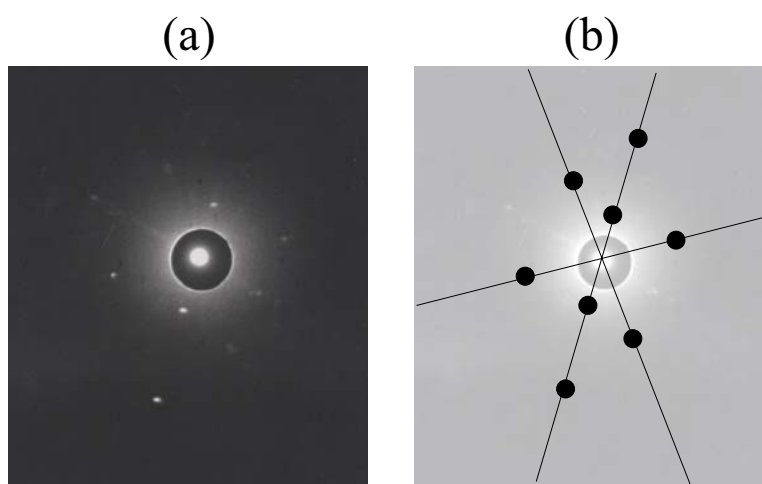


図 3.10 (a)GdCOB 結晶  $b$  面のラウエ写真, (b)模式図.

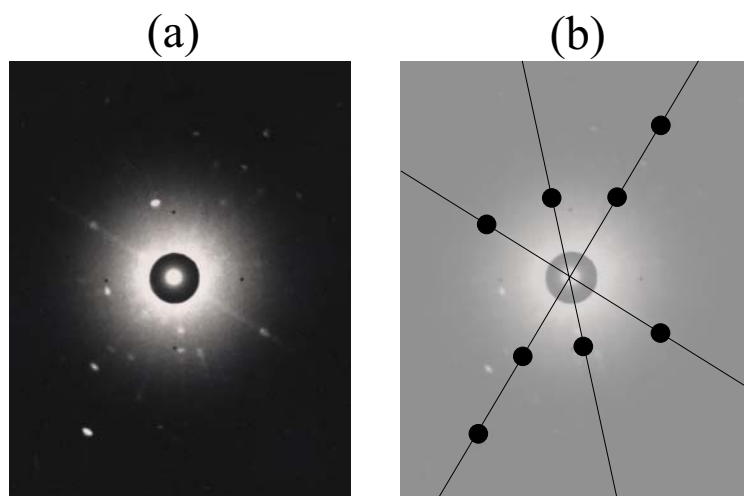


図 3.11 (a)YCOB 結晶  $b$  面のラウエ写真, (b)模式図.



## (2) 相の同定

作製した LaCOB 結晶、GdCOB 結晶、YCOB 結晶が不純物を含まない単相であることを確認するため、粉末 X 線回折(X-ray Diffraction: XRD)測定を行った。測定試料には、各結晶の切片をメノウ乳鉢により粉砕したものをを用い、装置は Rigaku 製の RINT-2200VL を用いた。線源は  $\text{CuK}\alpha$  線であり、測定時の管電圧と管電流はそれぞれ 40 kV、30 mA であった。測定は $\theta$ - $2\theta$ スキャンであり、測定範囲は  $15^\circ$  から  $60^\circ$  までとし、ゴニオメータのステップは  $0.02^\circ$  とした。図 3.12、図 3.13、図 3.14 に LaCOB 結晶、GdCOB 結晶、YCOB 結晶の XRD プロファイルを示す。結晶系が単斜晶系であるため回折線の数が非常に多い。ICDD カードの索引を用いて回折線の指数付け、相同定を行い、LaCOB 結晶、GdCOB 結晶、YCOB 結晶が不純物を含まない単相であることを確認した。

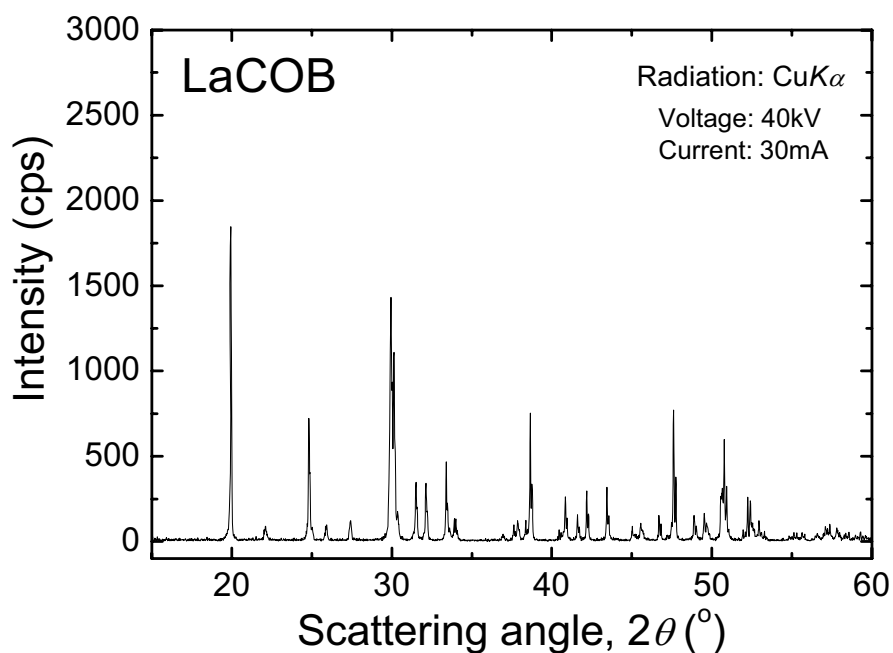


図 3.12 LaCOB 結晶の XRD プロファイル。線源は  $\text{CuK}\alpha$  線、管電圧と管電流はそれぞれ 40 kV、30 mA。測定は $\theta$ - $2\theta$ スキャンで、測定範囲は  $15^\circ$  から  $60^\circ$ 、ゴニオメータのステップは  $0.02^\circ$ 。

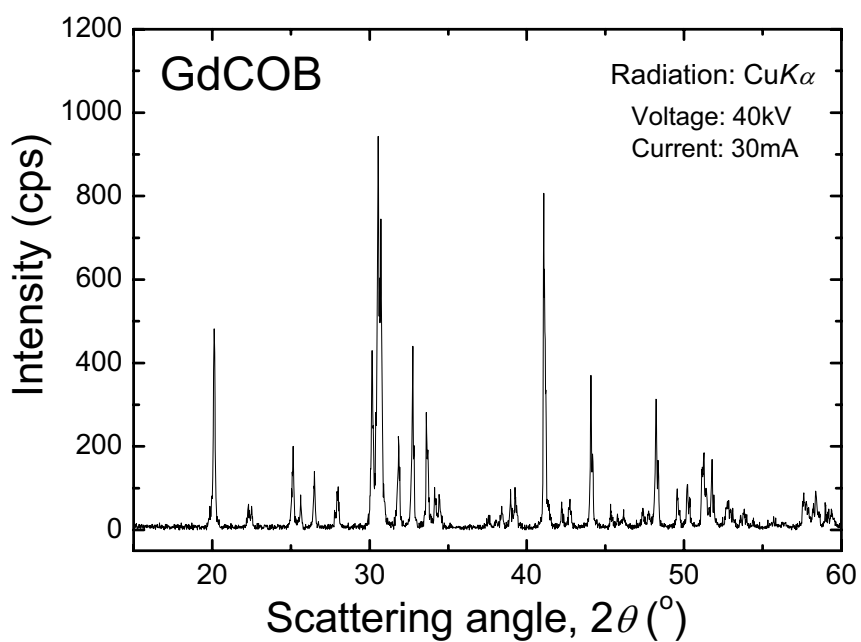


図 3.13 GdCOB 結晶の XRD プロファイル. 線源は  $\text{CuK}\alpha$  線, 管電圧と管電流はそれぞれ 40 kV, 30 mA. 測定は $\theta$ - $2\theta$ スキャンで, 測定範囲は  $15^\circ$  から  $60^\circ$ , ゴニオメータのステップは  $0.02^\circ$ .

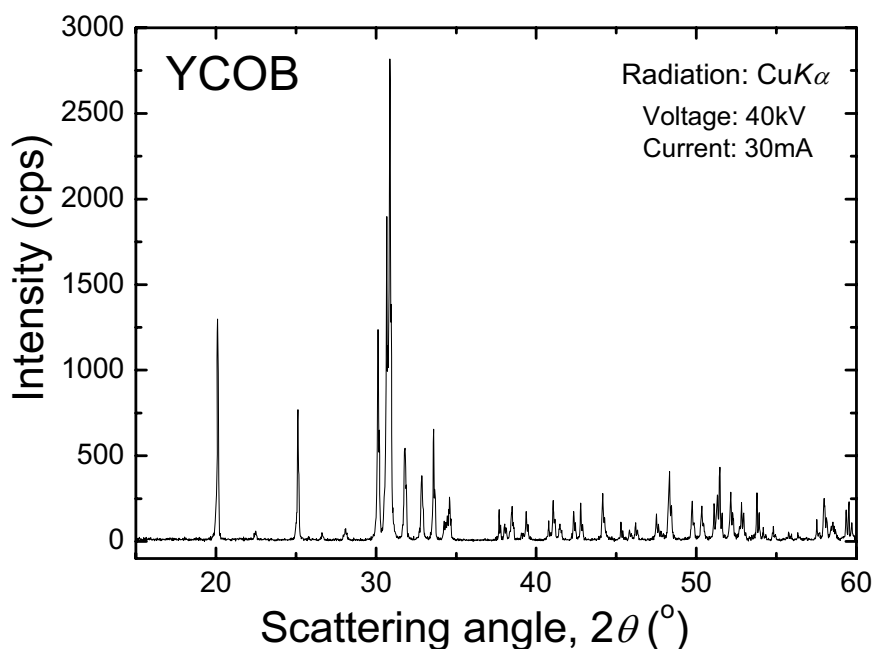


図 3.14 YCOB 結晶の XRD プロファイル. 線源は  $\text{CuK}\alpha$  線, 管電圧と管電流はそれぞれ 40 kV, 30 mA. 測定は $\theta$ - $2\theta$ スキャンで, 測定範囲は  $15^\circ$  から  $60^\circ$ , ゴニオメータのステップは  $0.02^\circ$ .

### (3) 組成分析

誘導結合プラズマ発行分光分析(Inductively Coupled Plasma Emission Spectroscopy: ICP-ES)により、結晶成長方向(上部、中部、下部)における組成分析を行った。測定にはセイコーインスツルメンツ社製の SPS1700HVR を用いた。測定により得られた各元素(希土類、Ca、B)の重量パーセントから、正規の重量に対する試料重量分の割合を算出し、そこから各元素の原子量比(化学式より正規の量が 1 : 4 : 3 とした)を得た。各結晶における組成分析結果を、図 3.15(LaCOB 結晶)、図 3.16(GdCOB 結晶)、図 3.17(YCOB 結晶)に示す。LaCOB 結晶の組成変動は±2%以内、GdCOB 結晶と YCOB 結晶では±4%以内であり、成長方向で組成が均一になっていることを確認した。また、これが出発原料組成と等しかったことから、化学両論組成がほぼコングルエント組成に等しいことがわかった。

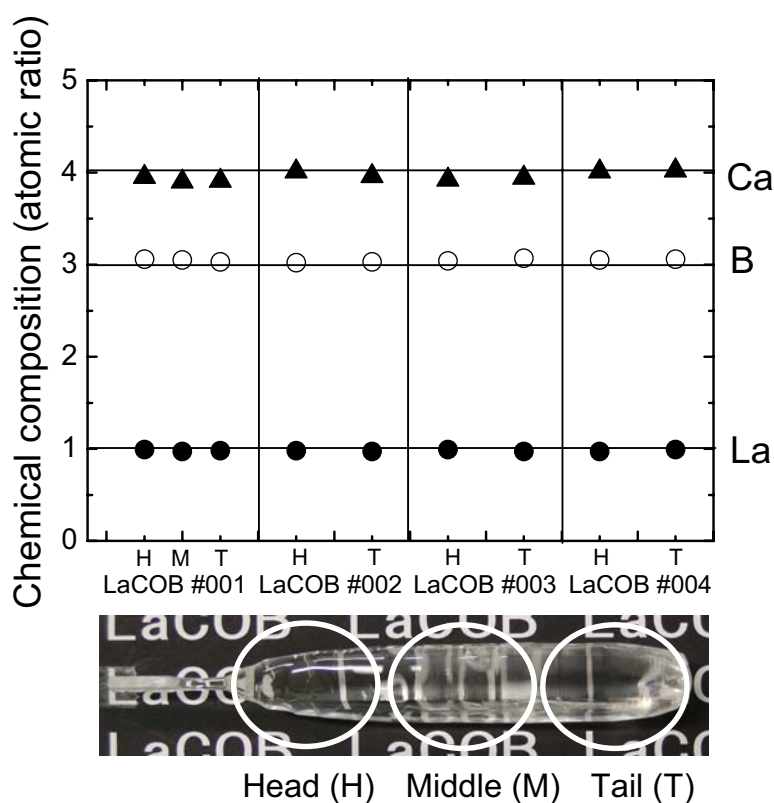


図 3.15 LaCOB 結晶の上部(H), 中部(M), 下部(T)における構成元素の組成分析結果. 組成変動は成長方向で±2%以内.

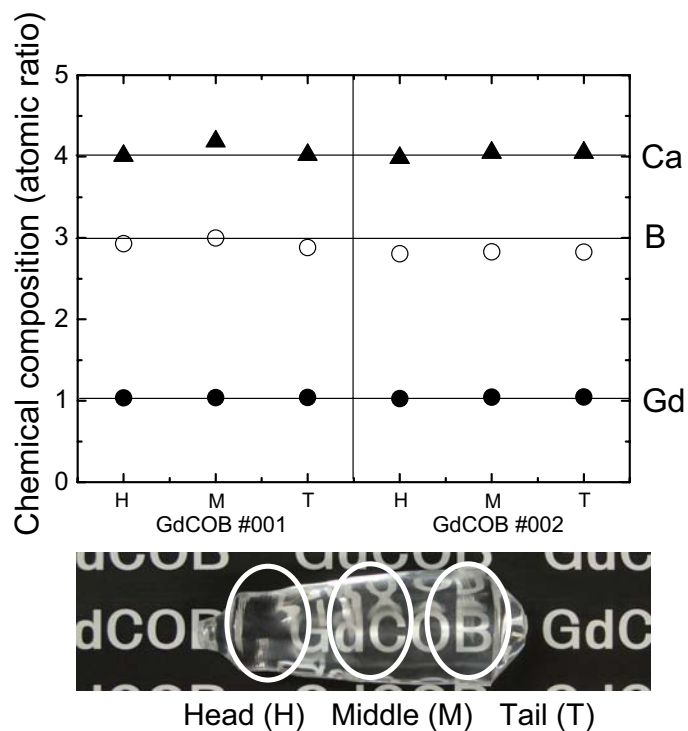


図 3.16 GdCOB 結晶の上部(H), 中部(M), 下部(T)における構成元素の組成分析結果. 組成変動は成長方向で±4%以内.

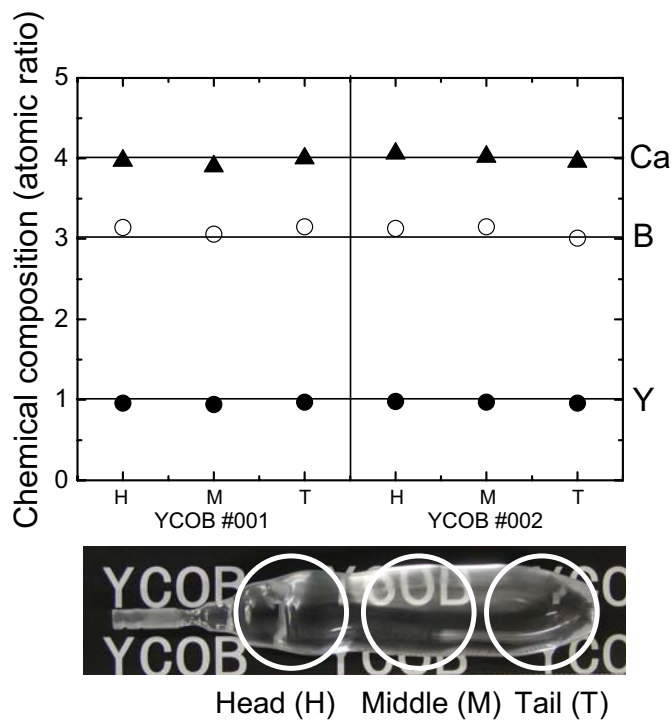


図 3.17 YCOB 結晶の上部(H), 中部(M), 下部(T)における構成元素の組成分析結果. 組成変動は成長方向で±4%以内.

### 3.2.3 結晶軸と圧電軸

圧電結晶の圧電特性を評価する場合、まず圧電軸(電氣的直交座標軸) $X, Y, Z$ を決定しなければならない。圧電軸  $X, Y, Z$  は結晶軸  $a, b, c$  とは必ずしも一致せず、その対応関係はその結晶の属する点群に依存する。 $RCOB$  結晶は点群  $m$  に属するため、結晶軸と圧電軸とで一致するのは  $b$  軸と  $Y$  軸、 $c$  軸と  $Z$  軸であり、 $a$  軸と  $X$  軸は一致しない。このことは IEEE Standard on Piezoelectricity<sup>22)</sup>に記述されている。点群  $m$  に属する結晶では、まず  $a, c$  軸に直交する  $b$  軸を  $Y$  軸に、 $c$  軸を  $Z$  軸にとり、 $Y$  軸ならびに  $Z$  軸と右手直交関係になるように  $X$  軸をとる。軸角  $\beta$  は鈍角にとられるので、 $X$  軸は  $ac$  面内に存在することになり、 $a$  軸と  $c$  軸の間にくる。これらを踏まえ、図 3.18 に点群  $m$  における結晶軸と圧電軸の幾何学的対応関係を示す。但し、図では  $X, Y, Z$  の極性は無視しており、ただの直交系である。本研究では、次のようにして結晶軸ならびに圧電軸とその極性を決定した。

前項で述べたように、まず背面反射ラウエ X 線により 2 回対称性を確認した上で  $b$  軸を決定し、これを  $Y$  軸とした。次に、(200)と(400)の回折ピークより逆格子の  $a^*$ 軸(100 方位)を決定し、これを  $X$  軸とした。残りの  $Z$  軸は、 $Y$  軸を回転軸として  $X$  軸から  $90^\circ$  回転した方向とした。これより、図 3.18 に示すような対応関係を得ることができた。次に、圧電軸には極性が存在するため、これを決めなければならない。圧電軸の方位については結晶軸との対応から X 線により知り得るが、その極性までは X 線で判断することはできない。この圧電極性の決定には、一般にスクイズテスト<sup>23)</sup>を用いることが多い。また、化学腐蝕法によるエッチピット(蝕像)観察もスクイズテストと同様、その良い判定手段である<sup>24)</sup>。本研究ではスクイズテストにより極性判定を行った。その方法については本節の最後で述べる。極性判定の結果、結晶軸と圧電軸との関係が明らかになり、結晶側面の明瞭な成長稜が 100 方位、即ち  $X$  軸に対応していることがわかった。図 3.19 に、 $Y$  面における結晶形状と結晶軸、圧電軸の関係を示す。3.2.1 項でも述べたように、2 本の成長稜のうち 1 本は(101)ファセットと(20 $\bar{1}$ )ファセット間、もう一方は( $\bar{1}$ 0 $\bar{1}$ )ファセットと( $\bar{2}$ 01)ファセット間に見られた。前者の成長稜はもう一方に比べ明瞭であり、これが  $+X$  軸方向を示すことが極性判定によりわかった。同時に、後者の成長稜が  $-X$  軸方向を示すことがわかった。図 3.20、図 3.21、図 3.22 に LaCOB 結晶、GdCOB 結晶、YCOB 結晶の成長稜をそれぞれ示す。(b)  $-X$  軸方向よりも(a)  $+X$  軸方向の成長稜の方が明瞭に現れていることがわかる。但し、図 3.20 に示した LaCOB 結晶のみは他の 2 結晶とは異なり、 $-X$  軸方向の成長稜が三角形状をしており、特徴的な成長癖であることがわかった。 $+X$  軸方向の成長稜は他の 2 結晶と類似していた。

以上、 $RCOB$  結晶における結晶形状と結晶軸、圧電軸の関係が明らかになったことで、結晶の方位カット(切断加工)を容易に行えるようになった<sup>25)</sup>。

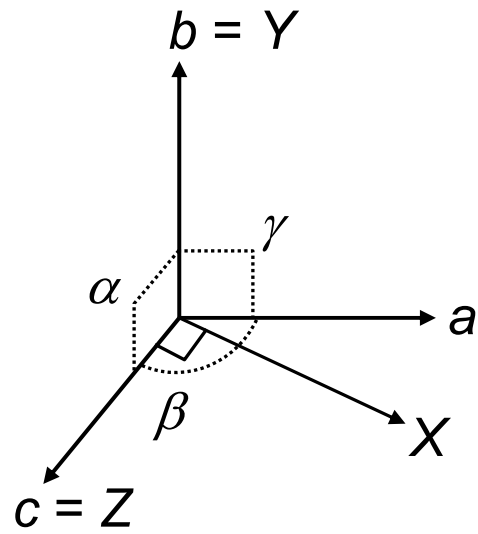


図 3.18 点群  $m$  における結晶軸  $a, b, c$  と圧電軸  $X, Y, Z$  の幾何学的対応関係. 点群  $m$  では  $a$  軸と  $c$  軸のなす角  $\beta$  が鈍角. 結晶軸  $a$  と圧電軸  $X$  は異なる.

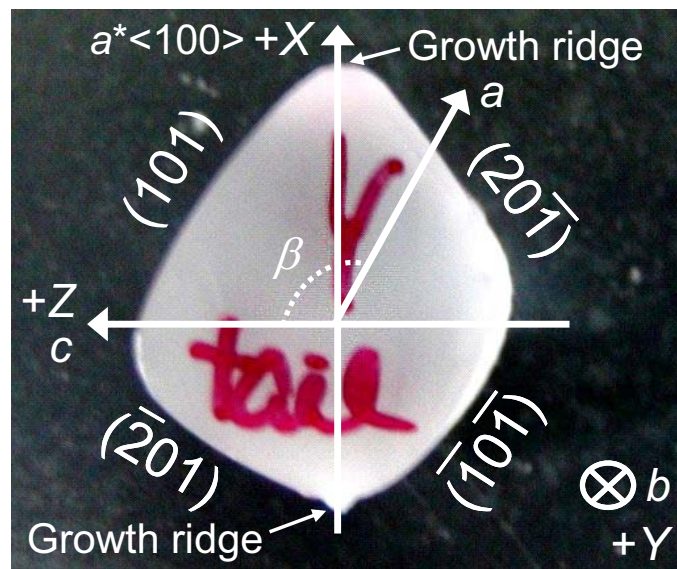


図 3.19 結晶形状と結晶軸、圧電軸の関係 (LaCOB 結晶の  $Y$  面). 逆格子の  $a^*$  軸が圧電軸の  $X$  軸と等しい. 四辺形状の  $Y$  面において長い対角方向 ( $X$  軸) に 2 本の成長稜.

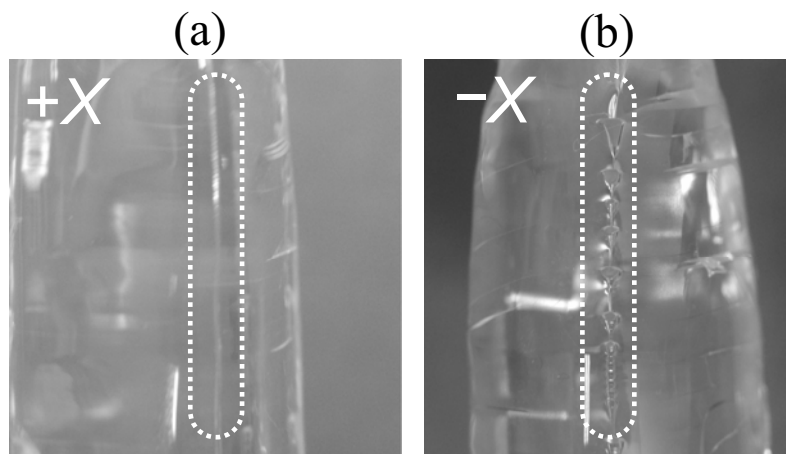


図 3.20 LaCOB 結晶の成長稜 (a)+ $X$  軸方向, (b)- $X$  軸方向.

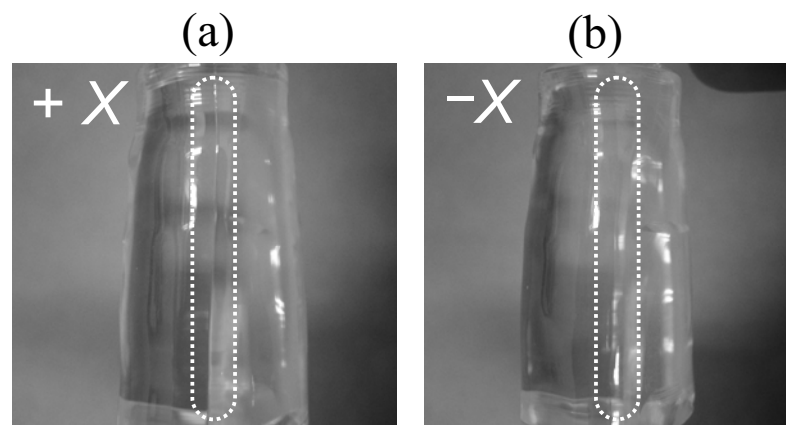


図 3.21 GdCOB 結晶の成長稜 (a)+ $X$  軸方向, (b)- $X$  軸方向.

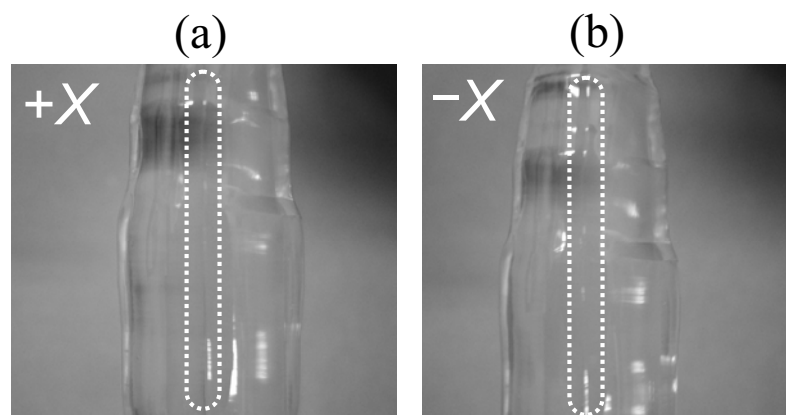


図 3.22 YCOB 結晶の成長稜 (a)+ $X$  軸方向, (b)- $X$  軸方向.

以下、圧電軸の極性判定のために行ったスクイズテストならびに化学腐蝕法によるエッチピット観察について述べる。

### (1) スクイズテストによる極性判定

圧電振動などの通常の交流測定では圧電軸の正負についての判別は難しく、既存の方法としては、レーザ干渉計、SPM 圧電測定、スクイズテスト(ノックテスト)、エッチピット観察などがあるが、本研究では機械的で簡単なスクイズテストにより極性判定を行った。スクイズテストは、機械的な衝撃を試料に加えた場合の圧電パルスをオシロスコープで観測する方法であり、オシロスコープだけで極性を判定することのできる方法である。スクイズテストの実験系を図 3.23 に示す。試料を導電性の良い銅やアルミなどの金属板の上のせ、これをオシロスコープ(SS-7804: IWATSU)のアースにつなぎ、電極の着いた試料表面をプローブの先端でたたき、圧電パルス波形の立ち上がりの正負を調べる。本測定では、オシロスコープの遅延掃引機能を用いて、圧電効果によるインパルス応答波形の拡大測定を行った。また、試料には  $X$  面、 $Z$  面にスパッタリング法により Au 電極を作製した結晶基板を用いた。圧電符号の定義は、張力に対して座標軸の正の向きに正の電荷を生じるとき、正と定められている。IEEE Standard on Piezoelectricity<sup>22)</sup>に説明がある通り、点群  $m$  では  $d_{11}$  が正となる方向を  $+X$  軸方向、 $d_{33}$  が正となる方向を  $+Z$  軸方向にとることになっている。これに従って、 $+X$  軸方向と  $+Z$  軸方向を決定し、残る  $+Y$  軸方向も右手直交系により決定した。その結果、図 3.19 に示した結晶形状と結晶軸、圧電軸の関係を本研究で見出した。

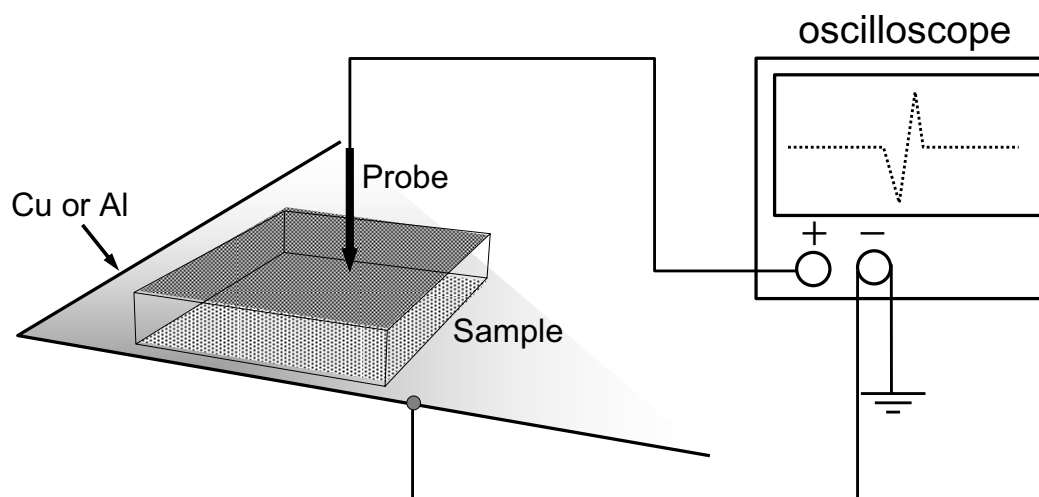


図 3.23 スクイズテストの実験系. オシロスコープに連結したプローブで電極面をたたき、圧電パルス波形を観測することで圧電極性を判定.



## (2) 化学腐蝕法によるエッチピット観察

スクイズテストの結果、結晶外形と結晶軸  $a$ 、 $b$ 、 $c$  ならびに圧電軸  $X$ 、 $Y$ 、 $Z$  との関係がわかったので、これを基に $\pm X$ 、 $\pm Y$ 、 $\pm Z$ 面の露出した直方体を各結晶から切り出し、化学腐蝕法によるエッチピット観察を行った。これはエッチピットパターンと結晶軸、圧電軸との関係を調べるためである。切り出した直方体表面を、粒度#2000のカーボン粉末(C2000: マルトー)で研磨した。エッチ液には0.01 N 塩酸(SDH 5326: 和光純薬)を用い、磁気回転子で回転を与えた状態で室温にてエッチングを行った。パターンの経時変化を見るため、時間ごとに試料を液中から取り出し、光学顕微鏡(BX60: OLYMPUS)により表面の観察を随時行った。表 3.3、表 3.4、表 3.5 に、エッチング 30 分後に撮影した LaCOB 結晶、GdCOB 結晶、YCOB 結晶のエッチピットパターンをそれぞれ示す。すべての結晶の $\pm X$ 、 $\pm Y$ 、 $\pm Z$ 面で共通したエッチピットパターンが得られた。以下、各面に関して得られた知見を述べる。

### ○RCOB 結晶の $Y$ 面

$Y$  面では正負両面で特徴的なパターンが観測されたが、 $+Y$  面と $-Y$  面とでパターンに違いはほとんどなかった。これより、 $Y$  面ではエッチピットパターンから圧電極性を判断することはできないことが示唆された。しかし、 $+Y$  面の方が $-Y$  面よりも速くエッチングされたことから、このエッチング速度の違いにより極性判定が可能であることがわかった。実際に、 $+Y$  面の方が $-Y$  面よりも早くエッチピットが現れた。また、パターンと結晶方位との関係も見出された。 $Y$  面ではほぼ(101)ファセットに平行にエッチピットが配列した。これは、GdCOB 結晶における(010)面のエッチピットパターンについての報告のある文献<sup>14-16)</sup>の結果と一致する。本研究ではさらに、 $Y$  面において楕円状のエッチピットの細かい方が常に( $+Z$  軸、 $-X$  軸)方向に配列することを見出した。

### ○RCOB 結晶の $X$ 面

$X$  面では正負両面で大きな違いが見られ、エッチピットパターンから極性判定が可能であることが示唆された。 $+X$  面では長形状のエッチピットが  $Z$  軸方向に配列し、 $-X$  面では左右に入り組むようなエッチピットが同じく  $Z$  軸方向に配列することがわかった。特に、 $+X$  面では特徴的なパターンが観測され、長形状のエッチピットの深さが $+Z$  軸方向と $-Z$  軸方向とで異なり、深い方が常に $-Z$  軸方向を向くことがわかった。また、 $Y$  面の場合と同様、 $+X$  面の方が $-X$  面よりも速くエッチングされたことから、エッチング速度の違いでもまた極性判定が可能であることが明らかになった。

### ○RCOB 結晶の $Z$ 面

$Z$  面では明瞭なエッチピットパターンは正負両面ともに観測されなかった。この結果は文献<sup>14-16)</sup>の結果と一致する。

これより RCOB 結晶の圧電極性の判定には、スクイズテストのみならず化学腐蝕法も有効であることがわかった。尚、RCOB 結晶に関するエッチピットパターンと結晶軸、圧電軸の関係は本研究で初めて明らかにされた知見である。また、 $X$  面と  $Y$  面とで正極性の面の方が負極性の面よりも速く腐蝕されることも、また新しく得られた知見である。

表 3.3 LaCOB 結晶のエッチピットパターン (200 倍)

	＋面	－面
$Y$		
$X$		
$Z$		

表 3.4 GdCOB 結晶のエッチピットパターン (200 倍)

	＋面	－面
Y		
X		
Z		

表 3.5 YCOB 結晶のエッチピットパターン (200 倍)

	＋面	－面
Y		
X		
Z		

### 3.3 確立した評価方法を適用しての材料定数評価

#### 3.3.1 共振子の作製方法

材料定数の評価では、弾性波動の伝搬方向や振動面が異なる多くのカットを用いる。第 2 章で、点群  $m$  の材料定数評価に必要なカットを振動モードとともに確立したことを述べた。ここでは、それらカットに電極を施し、共振子を作製するまでの一連の流れを示す。

- ① 結晶軸  $a, b, c$  と圧電軸  $X, Y, Z$  との対応関係を基に、ポストアニールを施した結晶から第 2 章で示した板状および棒柱状のカットをダイヤモンドカッター (ISOMET: BUEHLER) により切り出した。
- ② 平行度を確保するため、SUS 製の研磨治具にカットをワックス(アクアワックス: マルトー)で固定し、硝子盤の上で粒度#2000 のカーボン粉末(C2000: マルトー)により両面を研磨した。
- ③ ②と同様、粒度#2000 のカーボン粉末でカットを板状あるいは棒状に研磨し、ダイヤモンドスラリー(アクアダイヤ液: マルトー)を用いて平均粒度  $3.0 \mu\text{m}$ 、 $1.5 \mu\text{m}$ 、 $0.5 \mu\text{m}$  の順で、電極面が光学的フラットになるように鏡面研磨した。
- ④ 研磨処理を施したカットに電極を作製する前に、形状測定ならびに密度測定を行った。形状測定にはマイクロメータ(BMD-25DM, MDC-25M: Mitutoyo)を用い、密度測定にはアルキメデス法を用いるかあるいは試料の形状と重量から算出した。
- ⑤ 鏡面研磨した面にスパッタリング法により(VPS-020 型 QUICK COATER)、Au 電極を作製した。透けない程度に電極面が厚くなるように堆積させた( $800\text{\AA}$  から  $1000 \text{\AA}$ )。電極面以外の面にはマスクを施し、Au 電極が形成されないようにした。
- ⑥ 最後に、電極面に  $\phi = 0.05 \text{ mm}$  の Au 線(0.05MMDX1M: 田中貴金属工業)を、Ag ペースト(ドータイト: 藤倉化成)により固定した。尚、Ag ペーストは、共振子への荷重の影響を考慮し極力少量におさえ、Au 線は Au 電極部に接触させた状態で Ag ペーストにより固定した。

以上の工程により、材料定数を評価するために行う圧電特性測定用の共振子を作製した。鏡面研磨処理を施した面に Au 電極を作製した共振子の模式図を図 3.24 に示す。共振子に固定した Au 線をインピーダンス/ゲインフェイズアナライザ (HP4194A: Hewlett Packard) に連結したプローブでつまみ、圧電特性の測定を行った。次項で、その測定原理を示す。

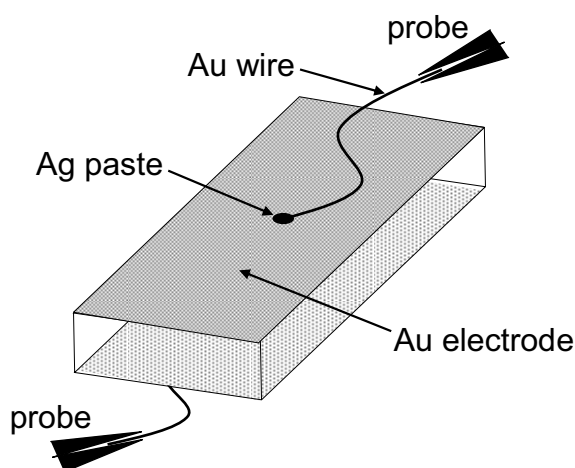


図 3.24 鏡面研磨処理を施した面に Au 電極を作製した共振子の模式図. 電極面には Au 線を Ag ペーストにより固定し, 測定の際インピーダンス/ゲインフェイズアナライザに連結したプローブではさむ.

### 3.3.2 共振 - 反共振法<sup>26)</sup>

圧電体共振子に交流信号を印加して周波数を変化させていくと、ある周波数において非常に強く共振する周波数が現れる。この周波数は圧電体共振子の形状に依存する弾性固有振動によって決定され、共振周波数という。弾性波動特性に異方性がある圧電結晶は、共振子形状と電界印加方向により様々な振動モードを励振し、それら振動モードは固有の共振周波数を示す。本研究では、一般的な共振 - 反共振法により共振子の各種振動モードの共振周波数を測定することで、材料定数を評価した。材料定数評価のために用いるカットや振動モードについては、第 2 章でその詳細を示した。以下、共振 - 反共振法による測定原理について概説する。

共振現象は圧電方程式を解くことにより求められ、図 3.25 に示すように、電気側 2 端子、機械側 4 端子の等価回路において、共振子の両端を自由、即ち機械側を短絡した 2 端子等価回路(Mason の等価回路)で表すことができる。この回路における共振周波数を測定することで、弾性定数や電気機械結合係数を決定することができるが、その詳細は後で述べることにする。共振周波数付近におけるアドミッタンス  $Y (= G + jB)$  とインピーダンス  $Z (= R + jX)$  は

$$Y = \frac{1}{Z} = \frac{1}{j\omega C_0} + \frac{1}{R + j(\omega L + 1/\omega C)} \quad (3-1)$$

で表され、 $\omega$  は角周波数であり  $\omega = 2\pi f$  と定義される。尚、 $Y$  と  $Z$  は複素数である。式(3.1)中の第2項は、共振子の機械的振動の運動エネルギーと弾性エネルギー、それに弾性的損失を、圧電性を介して電気回路に組み込んだ動アドミッタンス  $Y_m$  である。

周波数  $f$  を変化させたときの  $Y$  あるいは  $Z$  の軌跡を複素平面上に描くと図3.26のようになる。また、そのまま周波数  $f$  に対して  $Z$  をプロットすると図3.27のようになる。図3.26ならびに図3.27中に示す共振に関する特性周波数は、それぞれ次のように定義される。

- $f_m, f_n$  : アドミッタンス  $|Y|$  が最大 ( $f_m$ )、最小 ( $f_n$ ) になる周波数
- $f_s, f_p$  : アドミッタンス  $Y$  の実部であるコンダクタンス  $G$  が最大 ( $f_s$ )、インピーダンス  $Z$  の実部である抵抗  $R$  が最大 ( $f_p$ ) になる周波数
- $f_r, f_a$  : 位相が  $0$  となる周波数のうち高い方 ( $f_a$ ) と低い方 ( $f_r$ ) の周波数
- $f_1, f_2$  : アドミッタンス  $Y$  の虚部であるサセプタンス  $B$  の周波数による微分が  $0$  となる周波数

このうち  $f_s$  と  $f_p$  は、図 3.25 の等価回路の直列ならびに並列共振周波数であり、

$$f_s = \frac{1}{2\pi\sqrt{LC}} \tag{3-2}$$

$$f_p = \frac{1}{2\pi\sqrt{L/(1/C + 1/C_0)}}$$

と表される。 $f_r$  と  $f_a$  はそれぞれ共振周波数、反共振周波数と呼ばれ、 $f_r < f < f_a$  を満たす周波数  $f$  で電氣的等価回路は誘導的になるので、 $f_a - f_r$  は共振子の帯域幅を示す。弾性的に蓄えられているエネルギーと 1 サイクル中に失われる弾性的損失の比を機械品質係数といい  $Q_m$  で表し、

$$Q_m = \frac{1}{2\pi f_s RC} \approx \frac{f_s}{f_2 - f_1} \tag{3-3}$$

で与えられる。この  $Q_m$  は圧電共振子の共振点での振る舞いを支配する重要な要素であり、圧電体共振子の性能を表す一つの指数である。圧電現象とは電氣的エネルギーと機械的エネルギーの相互変換により起こる現象である。電氣的エネルギーと機械的エネルギーの変換の効率を電気機械結合係数 (Electromechanical coupling coefficient)  $k$  といい、圧電定数  $d$  [C/N]、誘電率  $\epsilon^T$  [F/m]、弾性コンプライアンス  $s^E$  [m<sup>2</sup>/N] を用いて、

$$k = \sqrt{\frac{d^2}{\epsilon^T s^E}} \tag{3-4}$$

で表される。 $k$  は共振周波数( $f_s$ ,  $f_r$ )と反共振周波数( $f_p$ ,  $f_a$ )により決まり、その決め方は横効果(電界印加方向と機械的振動方向が異なる)と縦効果(電界印加方向と機械的振動方向が同じ)で異なる。このことの詳細は、付録 A.6 ならびに A.8 を参照されたい。圧電媒体中を伝搬する波動の音速は、その試料形状や振動モードによりある一定の値を持つ。この値は振動長さ(波動伝搬距離)を  $l$  とすると横効果の場合は直列共振周波数( $f_s$ )と長さ( $l$ )の積、縦効果の場合は並列共振周波数( $f_p$ )と長さ( $l$ )の積で表され、これは一般に周波数定数  $N$  [kHz·mm]と呼ばれている。この  $N$  の値は、共振周波数あるいは反共振周波数と弾性定数、試料密度、振動長さに関係する。また振動モードにより値が異なるため、図 3.28 に示すように、1つの共振子において複数の共振が観測された場合に、その共振の振動モードを同定するのに便利である。本研究でも、周波数定数を1つの同定手段として用いた。

以上のように、共振 - 反共振法は、共振子で励振される各種振動モードの共振周波数を主に測定する方法である。本研究ではインピーダンス/ゲインフェイズアナライザ(HP4194A: Hewlett Packard)を用いて、第2章で示したカットと振動モードを基に共振子の共振周波数  $f_s$  と  $f_p$ 、インピーダンス  $Z$ 、静電容量  $C^T$  を共振 - 反共振法により測定し、材料定数の評価を行った。尚、測定では共振子の下に綿を敷くことで反射波の影響を抑え、またシールドを施すことで電気的ノイズを除去した。

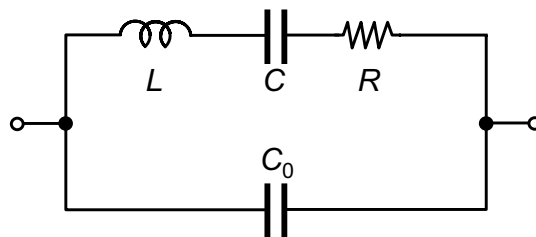


図 3.25 共振点付近における圧電共振子の電氣的等価回路.

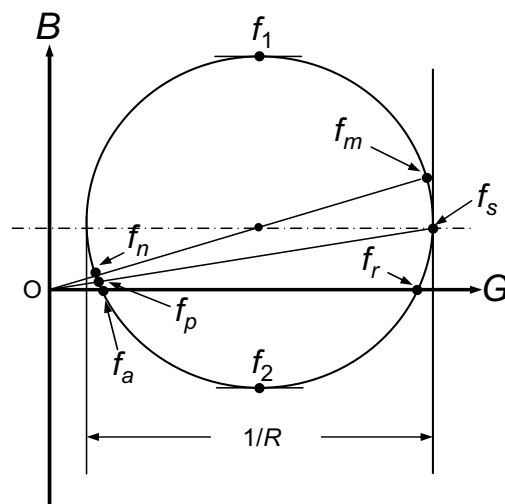


図 3.26 圧電共振子の共振点付近におけるアドミッタンスサークル.



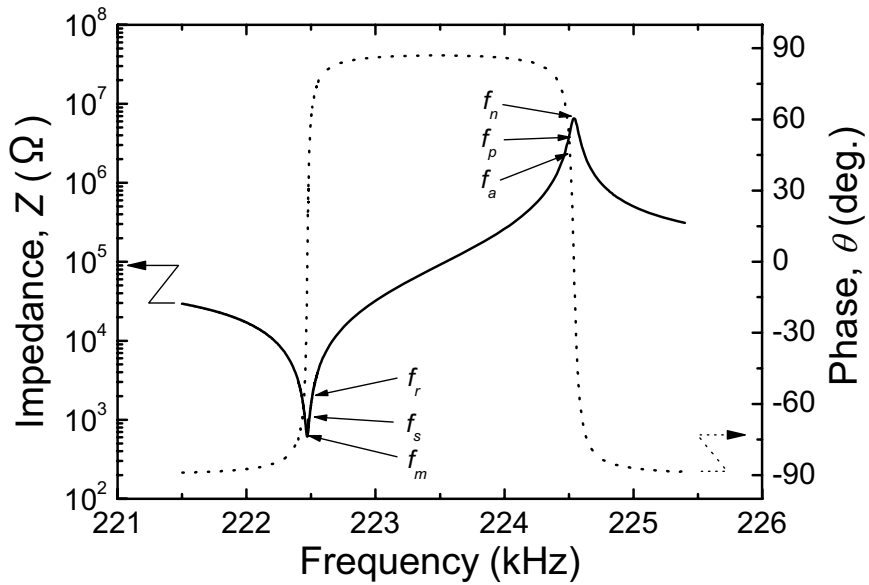


図 3.27 圧電共振子の共振点付近におけるインピーダンス・位相の周波数特性. 横軸は周波数, 左軸はインピーダンス  $Z$ , 右軸は位相  $\theta$ . 図中に各種特性周波数を示した.

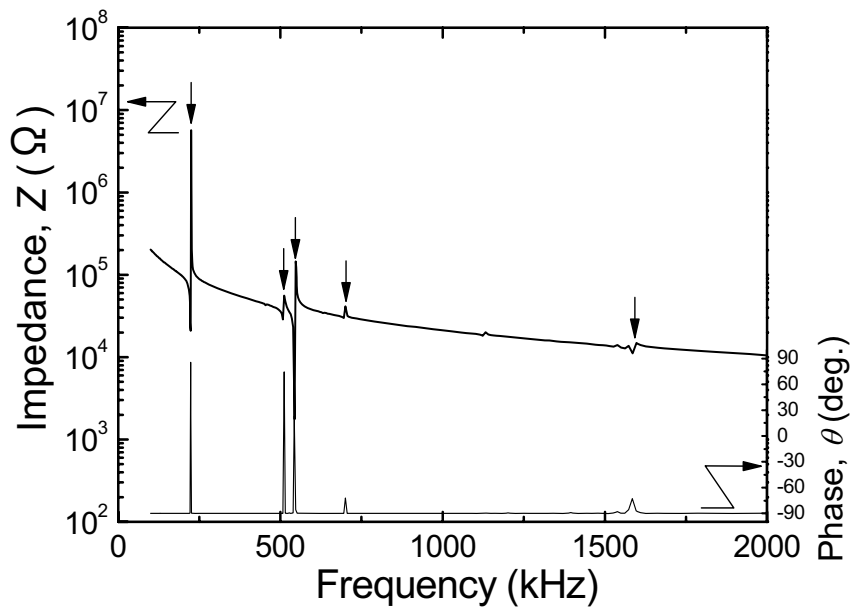


図 3.28 圧電共振子のインピーダンス・位相の周波数特性. ↓は各種振動モードに対応. 横軸は周波数, 左軸はインピーダンス  $Z$ , 右軸は位相  $\theta$ .

### 3.3.3 誘電率の評価

前章で述べたように、点群  $m$  に属する圧電結晶の材料定数には、4 個の誘電率が存在する。誘電率マトリックスの対角成分である  $\epsilon_{11}^T$ 、 $\epsilon_{22}^T$ 、 $\epsilon_{33}^T$  は、圧電軸方向の誘電分極であるため、それぞれ  $X$  板共振子、 $Y$  板共振子、 $Z$  板共振子を用いて容易に測定することができる。一方、非対角成分である  $\epsilon_{13}^T$  は、定数の添字が 1 と 3 であることからわかるように、誘電分極の方向と電界の印加方向が異なるため、測定が困難である。確立した評価方法にもあるように、 $\epsilon_{13}^T$  は図 3.29 に示すように  $(XY)45^\circ$  カットの  $\epsilon_{33}^{T'}$  を評価し、それより式(3-5)を用いて算出する。また、 $\epsilon_{13}^T$  の算出は  $(XY)135^\circ$  カットの  $\epsilon_{33}^{T'}$  を評価し、式 (3.6)を用いて算出することも可能である。

$$(XY)45^\circ: \epsilon_{33}^{T'} = \frac{1}{2}(\epsilon_{11}^T - 2\epsilon_{13}^T + \epsilon_{33}^T) \quad (3-5)$$

$$(XY)135^\circ: \epsilon_{33}^{T'} = \frac{1}{2}(\epsilon_{11}^T + 2\epsilon_{13}^T + \epsilon_{33}^T) \quad (3-6)$$

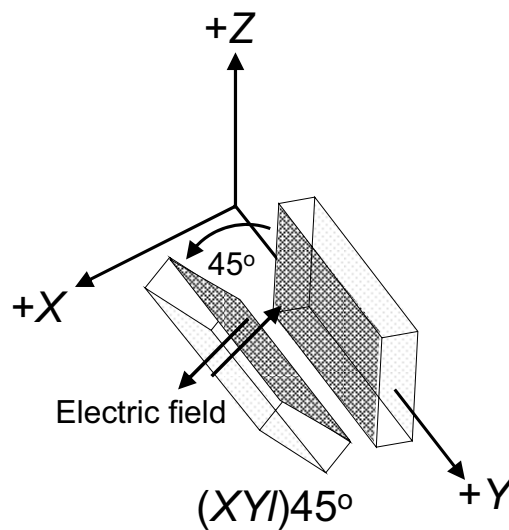


図 3.29 誘電率  $\epsilon_{13}^T$  を評価するための  $(XY)45^\circ$ 。このカットの  $\epsilon_{33}^{T'}$  を測定することで誘電率マトリックスの非対角成分  $\epsilon_{13}^T$  を算出可能。

誘電率の評価では、インピーダンスアナライザ(HP4194A: Hewlett Packard)を用いて、各共振子の自由静電容量  $C^T$  を 10 kHz のブリッジで測定した。ここで、ブリッジの周波数が共振子の共振周波数よりも十分に低い場合、共振子は交流電界に応じて自由に変形できるため、このときの静電容量のことを自由静電容量と呼ぶ。測定では、電氣的開放の場合と短絡の場合とでそれぞれ静電容量を測定し、その差をとることで浮遊容量を除いた正味の  $C^T$  を見積もった。式(3-7)を用いて、各共振子の 10 kHz における  $C^T$  から自由誘電率  $\epsilon^T$  を求めた。

$$C^T = \frac{\varepsilon^T A}{t} \text{ [F]} \quad (3-7)$$

ここで、 $A$ は電極面積 [ $\text{m}^2$ ]、 $t$ は電極間距離 [ $\text{m}$ ] である。

評価した LaCOB、GdCOB 結晶、YCOB 結晶の比誘電率(自由誘電率 $\varepsilon_{ij}^T$ )を表 3.6 にまとめる。また、各結晶の比誘電率を  $R$  サイトを占有する元素のイオン半径に対してプロットしたものを、図 3.30 と図 3.31 に示す。RCOB 結晶の特徴として、 $Y$  軸方向への誘電分極が他と比べて大きく、 $X$  軸と  $Z$  軸では同程度の値を示すことがわかった。さらに、非対角成分 $\varepsilon_{13}^T$ は空気の誘電率と同程度であり、これは酸化物単結晶の比誘電率としては極めて低い値である。ここで、弾性波素子用圧電材料の比誘電率は、一般に自由誘電率 $\varepsilon_{ij}^T$ ではなく拘束誘電率 $\varepsilon_{ij}^S$ で表記される。代表的圧電結晶の比誘電率 $\varepsilon_{ij}^S/\varepsilon_0$ と比較するため、RCOB 結晶の自由誘電率 $\varepsilon_{ij}^T$ を拘束誘電率 $\varepsilon_{ij}^S$ に変換した。その値を代表的圧電結晶の値とともに表 3.7 に示す。RCOB 結晶は、低誘電率の圧電結晶である水晶( $\varepsilon_{11}^S/\varepsilon_0 \sim 4.4$ ,  $\varepsilon_{33}^S/\varepsilon_0 \sim 4.6$ )や LBO( $\varepsilon_{11}^S/\varepsilon_0 \sim 8.9$ ,  $\varepsilon_{33}^S/\varepsilon_0 \sim 8.1$ )と同等以上の比誘電率を示すが、その他の圧電結晶(LN, LT など)と比べその値は小さく、RCOB 結晶が比較的低誘電率の圧電結晶であることがわかった。

表 3.6 RCOB 結晶の自由誘電率  $\varepsilon_{ij}^T/\varepsilon_0$  [-]

$ij$	11	22	33	13
La	9.87	14.3	9.87	1.2
Gd	10.5	14.0	10.4	0.80
Y	9.57	11.4	9.52	-0.96

表 3.7 RCOB 結晶の拘束誘電率  $\varepsilon_{ij}^S/\varepsilon_0$  [-]と代表的圧電結晶とのその比較

点群	RCOB 結晶			代表的圧電結晶			
	$m$			32	4mm	3m	
$ij$	LaCOB	GdCOB	YCOB	水晶	LBO	LN	LT
11	8.94	9.39	8.86	4.420	8.90	44.3	42.6
22	13.6	13.8	10.8	4.420	8.90	44.3	42.6
33	9.73	9.54	9.41	4.628	8.07	27.9	42.8
13	1.3	0.45	-0.70	-	-	-	-
参考文献	-	-	-	27)	28)	29)	

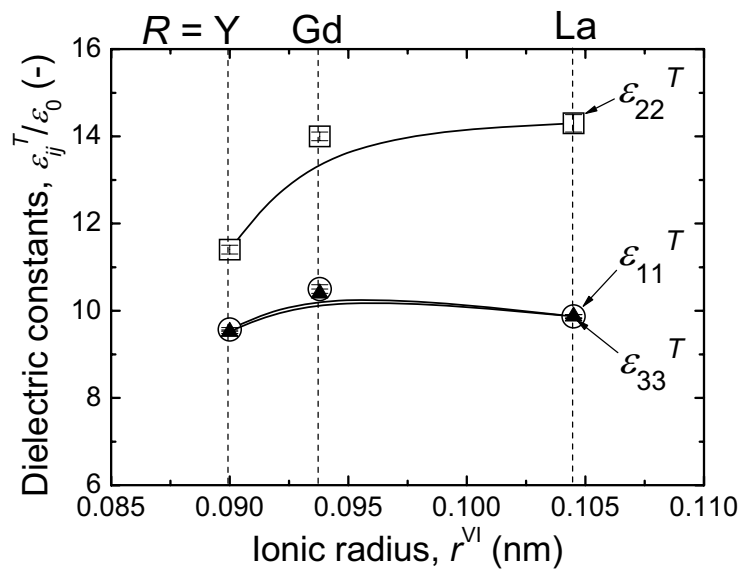


図 3.30 RCOB 結晶における誘電率マトリックスの対角成分. 横軸は  $R$  サイトを占有する元素のイオン半径, 縦軸は比誘電率. □は  $\epsilon_{22}^T$ , ○は  $\epsilon_{11}^T$ , ▲は  $\epsilon_{33}^T$  を表す.

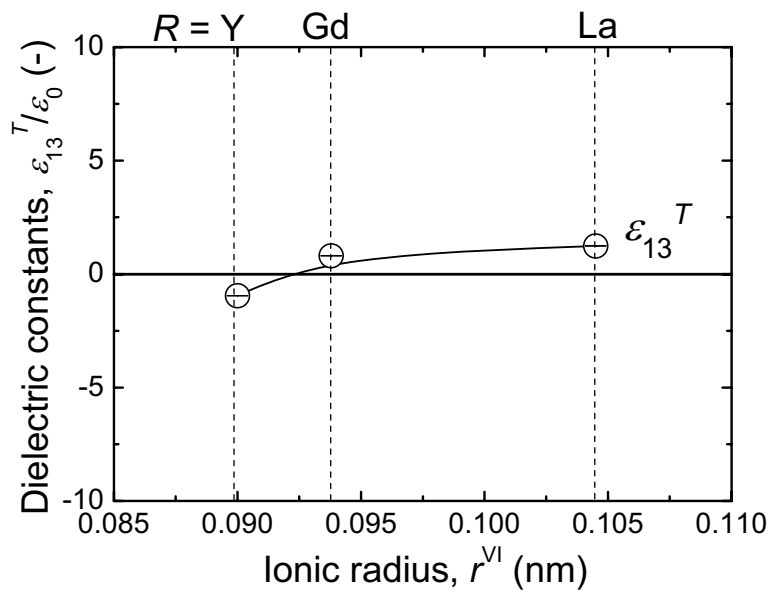


図 3.31 RCOB 結晶における誘電率マトリックスの非対角成分. 横軸は  $R$  サイトを占有する元素のイオン半径, 縦軸は比誘電率.

### 3.3.4 弾性定数と圧電定数の評価

本項では、第 2 章で確立した評価方法を基に、LaCOB 結晶、GdCOB 結晶、YCOB 結晶の弾性定数と圧電定数を評価し、それらを決定したことについて述べる。まず、圧電定数  $d_{11}$  と  $d_{33}$  の評価について論じ、その後で残りの材料定数の評価結果を示す。

#### (1) 共振 - 反共振法による棒柱試料を用いた $d_{11}$ と $d_{33}$ の評価

点群  $m$  の場合、圧電定数  $d_{11}$  と  $d_{33}$  を実測により独立に求めるためには、棒柱試料  $X$ -bar、 $Z$ -bar の縦効果厚み伸び(LE-TE)振動を用いるのが単純で良いことを第 2 章で述べた。まず、LaCOB 結晶の  $X$ -bar( $l = 2.80$  mm、 $w = 3.09$  mm、 $t = 0.823$  mm)、 $Z$ -bar( $l = 3.86$  mm、 $w = 3.34$  mm、 $t = 1.08$  mm)の共振 - 反共振測定の結果を、それぞれ図 3.32 と図 3.33 に示す。棒の LE-TE 振動は音波の波長が長く最低周波数での励振であるため、モード同定が容易である。両者ともに共振と反共振の周波数幅が狭く、電気機械結合係数  $k$  が小さいことが示唆された。実際に算出した LaCOB 結晶の電気機械結合係数は  $k_{11}$  が 4.6%、 $k_{33}$  が 3.8%であり、既存の代表的な圧電結晶(低いもので  $k_{11} \sim 7.5\%$ (LNG)、 $k_{33} \sim 16\%$ (LN))と比べ小さいことがわかった。また、LaCOB 結晶の圧電定数は  $d_{11}$  が 1.4 pC/N、 $d_{33}$  が 1.1 pC/N であり、さらに機械的品質係数  $Q_m$  は前者が 3892、後者が同程度の 3586 を示した。これらはすべて室温 25°C での値である。これより、LaCOB 結晶以外の RCOB 結晶に関しても、 $k_{11}(d_{11}, Q_m)$ ならびに  $k_{33}(d_{33}, Q_m)$ が小さいことが予察される。しかしここで、RCOB 結晶の誘電率が小さいことから棒柱試料を用いた測定に関する懸念が生じた<sup>30)</sup>。

前項に示したように、RCOB 結晶の比誘電率  $\epsilon_{11}^T/\epsilon_0$  と  $\epsilon_{33}^T/\epsilon_0$  が 10 程度と非常に小さいため、棒柱試料を用いた共振 - 反共振測定では、交流電界を印加したときの電束漏れが危惧される。そのため  $C^T$  ならびに  $f_p(f_a)$  の正確な測定ができず(信頼できる値という意味で)、 $\epsilon_{33}^T$ 、 $k_{33}'$ 、 $d_{33}'$  を決定することが困難となる。

ここで、この問題を共振 - 反共振法による測定結果で確認してみる。図 3.34 に  $Z$ -bar の電極間距離  $t$  に対する自由誘電率  $C^T$  の変化を示す。ここで言う  $C^T$  とは浮遊容量を差し引いた 10 kHz における正味の  $C^T$  である。尚、 $Z$ -bar の幅は 3.547 mm と 3.277 mm であり、電極面積  $A$  は 11.6 mm<sup>2</sup> で一定である。 $t$  が小さくなるにつれて  $C^T$  は増加するが、その変化は単純ではないことがわかる。ここで、 $C^T$  を  $t$  で 3 つの領域に分けて見てみる。領域 3 では  $t$  が大きいため  $C^T$  は極めて小さく、 $t = 5$  mm で高々 0.3 pF である。さらに  $t$  に対する  $C^T$  の変化は浮遊容量と同程度のオーダーのため、極めて小さい。領域 2 では  $t$  が小さくなることにより電束漏れが減少し、 $C^T$  が浮遊容量のオーダー( $\sim 0.1$  pF)を脱する。このことは  $t$  が減少すると  $C^T$  が増加することからわかる。しかし、領域 1 と領域 2 ではその増加率が異なる。一般に、式 (3-7) からわかるように、静電容量  $C$  は  $A$  が一定であるならば  $t$  と線形関係にあるはずである。従って、この違いは領域 1 と領域 2 とで浮遊容量の影響に差があること

を意味する。これより  $t$  の大きな領域 2 の方が、浮遊容量の影響が大きいことがわかる。LE-TE 振動を用いて圧電定数  $d_{33}'$  を評価するためには、まず正確な  $\epsilon_{33}^T$  を得る必要がある。しかし、それをモード同定が容易な最低次のモードにより励振するためには棒柱試料が必要となり、それは浮遊容量による影響の大きな領域 2 から領域 3 の  $t$  を持つ形状となる。このように棒柱試料の場合には共振 - 反共振法による  $C$  の正確な測定が困難となる。従って、点群  $m$  に属する結晶で RCOB 結晶のような低誘電率の結晶(チタン酸ジルコン酸鉛 PZT のような高誘電率の結晶では問題ない)では、圧電定数  $d_{11}$  と  $d_{33}$  を直接的かつ独立に評価するために共振 - 反共振法以外の測定法が必要であると結論付けた。補足までに、水晶に代表される点群 32 の場合、テンソルの対称性から  $d_{12} = -d_{11}$  が成り立つため、棒柱状ではなく板状カットの TE-LE 振動を用いて  $d_{31}'$  を評価すれば、本来ピエゾ縦効果で得る  $d_{33}'$ 、即ち  $d_{11}$  を得ることが可能である。

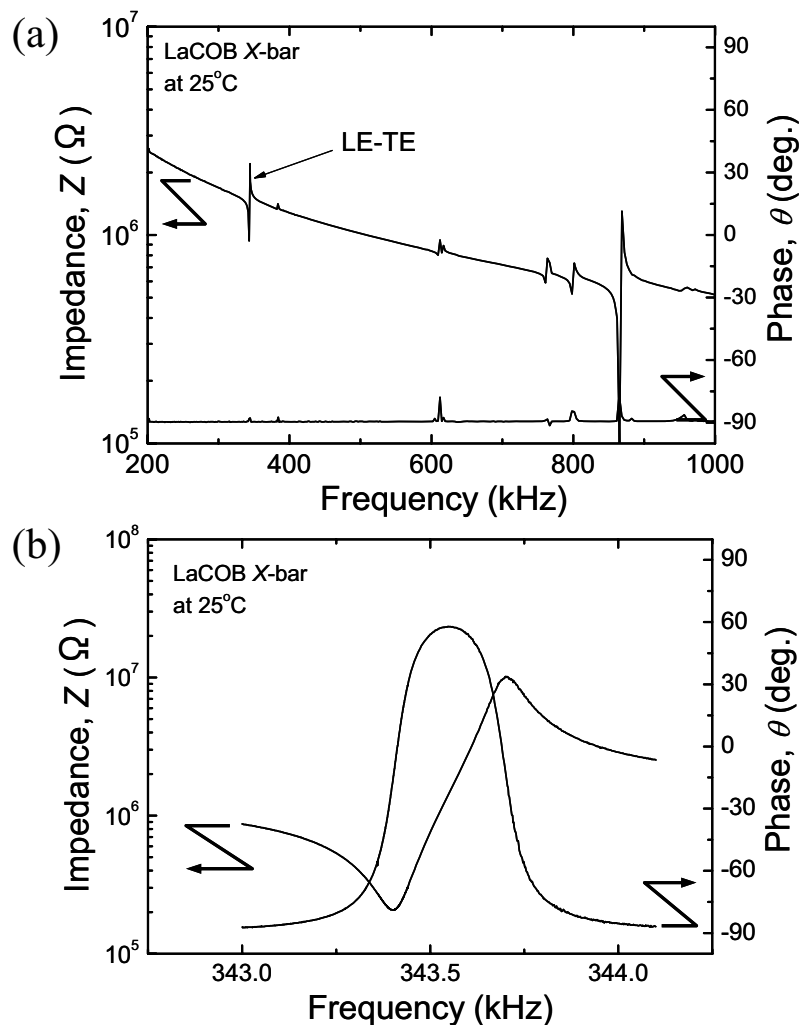


図 3.32 LaCOB 結晶の X-bar の共振 - 反共振プロファイル (a)広帯域, (b)LE-TE 振動の共振点付近.

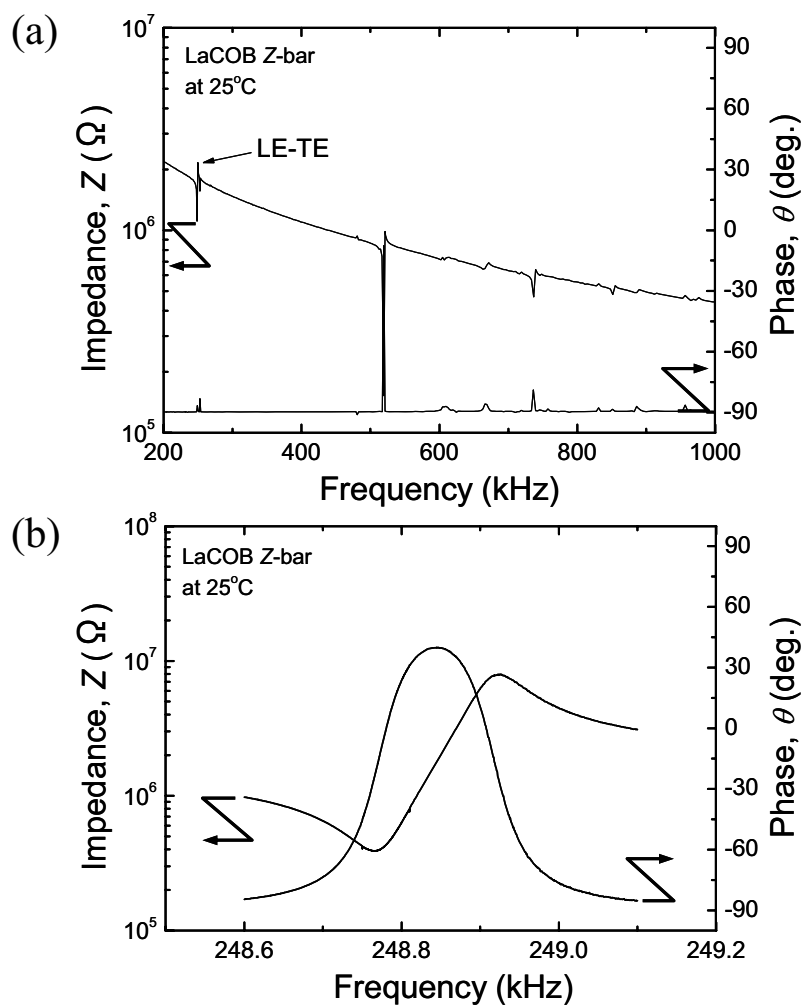


図 3.33 LaCOB 結晶の Z-bar の共振 - 反共振プロファイル (a)広帯域, (b)LE-TE 振動の共振点付近.

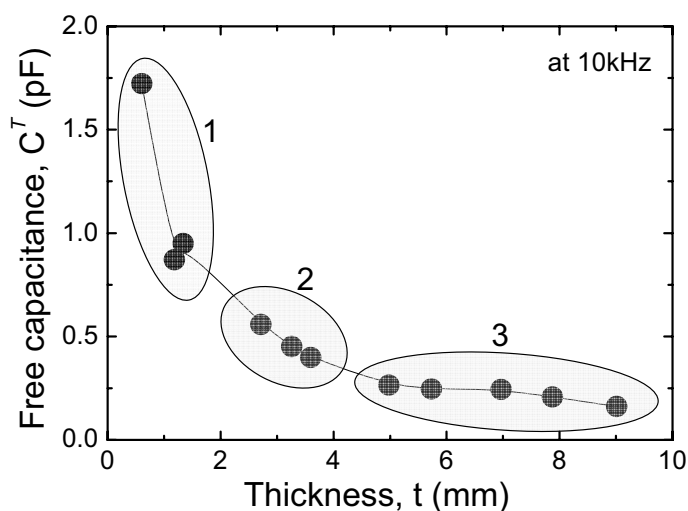


図 3.34 Z-bar の電極間距離  $t$  に対する自由静電容量  $C^T$  の変化. 測定周波数は 10 kHz. 電極面積を一定にし, 電極間距離を変化させて測定.

## (2) $d_{33}/d_{31}$ メータによる棒柱試料を用いた $d_{11}$ と $d_{33}$ の評価

(1)の問題を踏まえ、電束漏れが危惧されない新たな方策として  $d_{33}$  メータによる測定を考えた<sup>2)</sup>。 $d_{33}$  メータは機械的振動で応力を与えたときの電気変位を検出することで、圧電定数とその極性、誘電率を測定することのできる機器である。使用した  $d_{33}$  メータはイギリスの PIEZOTEST 社製の PM100 であり、ピエゾ縦効果以外の  $d_{31}$  モードも測定することのできる“ $d_{33}/d_{31}$  メータ”である(図 3.35(a))。図 3.35(b)は圧電セラミックスの測定を示している。上下のプロブはそれぞれ一、+に対応しており、圧電極性が上向きの場合  $d_{33}'$  は負、下向きの場合に正となる。

$d_{33}'$  ならびに  $d_{31}'$  の測定原理を図 3.36 に示す。 $d_{33}$  モードでは、棒柱試料や板状試料の厚み伸び振動を用いて  $d_{33}'$  を得ることができる。その際、機械的振動を電極面の面直方向からかけ、同方向で電気変位を検出する。但し、ここで得られる  $d_{33}'$  は横効果成分を含んでおり、厳密には  $d_{33}' = d_{33} \pm a d_{31} \pm b d_{32}$  である。しかし、棒柱試料の場合では横効果成分は極めて小さいと考えられるため  $a \sim 0$ 、 $b \sim 0$  となる。従って、近似的に  $d_{33}' = d_{33}$  となる。 $d_{31}$  モードでは、電極面ではない試料側面部に機械的振動を与え、電極面から電気変位を検出する。尚、機械的振動を試料へ与える際のプロブからの負荷は 0.25 N である。 $d_{33}$  モードにより各結晶の棒柱試料を用いて  $d_{11}$  と  $d_{33}$  を決定し、さらに  $d_{31}$  モードにより  $d_{12}$ 、 $d_{13}$ 、 $d_{31}$ 、 $d_{32}$  の符号、即ち圧電極性を調べた。

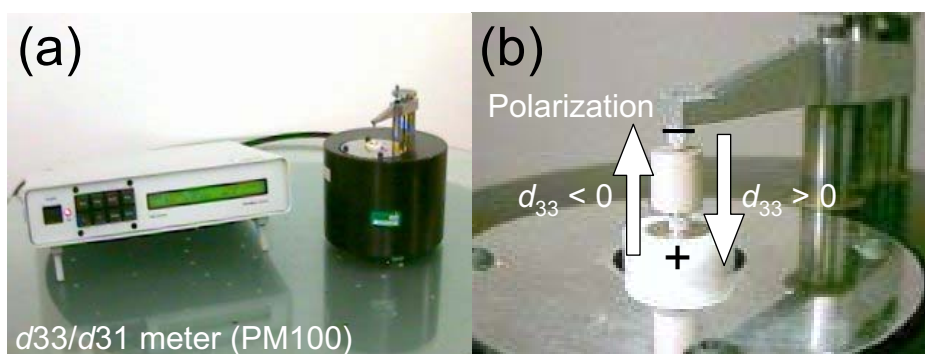


図 3.35  $d_{33}/d_{31}$  メータ (a)外観, (b)圧電セラミックスの測定の様子.

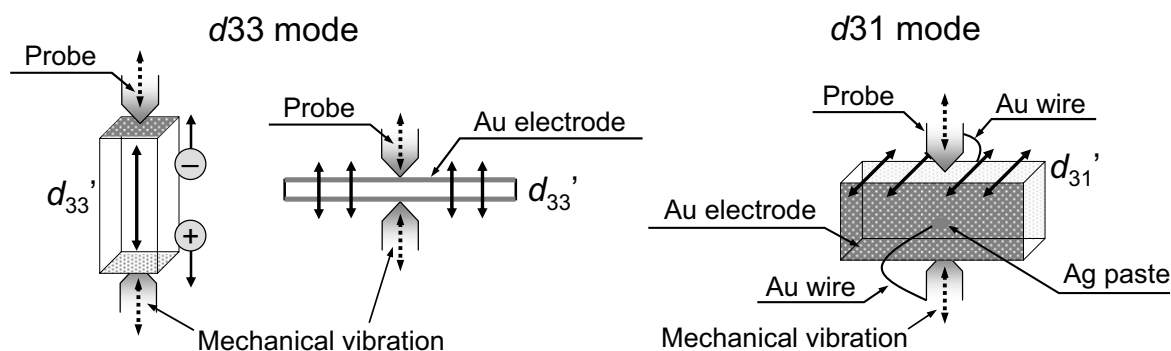


図 3.36  $d_{33}/d_{31}$  メータの  $d_{33}$  モードと  $d_{31}$  モードによる棒柱・板状試料の測定.



$d_{33}$  モードによる圧電定数  $d_{11}$  と  $d_{33}$  の測定の結果、LaCOB 結晶では  $d_{11} = 2.1$  pC/N、 $d_{33} = 1.5$  pC/N、GdCOB 結晶では  $d_{11} = 2.8$  pC/N、 $d_{33} = 2.5$  pC/N、さらに YCOB 結晶では  $d_{11} = 1.4$  pC/N、 $d_{33} = 0.8$  pC/N となった。尚、 $d_{33}$  メータを用いて測定した値は  $\pm 0.1$  pC/N の誤差を含んでいる。 $d_{33}$  メータを用いて評価した  $d_{33}'$  と共振 - 反共振法により評価した  $d_{33}'$  の違いは、前者の方が後者よりも若干大きい点である。例えば、LaCOB 結晶に関して言えば、 $d_{33}$  メータでは  $d_{11} = 2.1$  pC/N、 $d_{33} = 1.5$  pC/N であったのに対して、共振 - 反共振法では  $d_{11} = 1.4$  pC/N、 $d_{33} = 1.1$  pC/N であった。 $d_{33}$  メータの測定誤差 ( $\pm 0.1$  pC/N) を考慮しても、共振 - 反共振法により評価した  $d_{33}'$  の方が小さい。このことは、共振 - 反共振法により棒柱試料を評価した場合、自由誘電率  $\epsilon_{33}^T$  (自由静電容量  $C^T$ ) を正確に測定できないことにより、得られる  $d_{33}'$  が過小評価されるためだと考えられる。既存の弾性波素子用圧電材料の圧電定数は、一般に圧電歪み定数  $d$  ではなく圧電応力定数  $e$  として表記されるが、その代表的圧電結晶の圧電定数と比較するため、RCOB 結晶の圧電歪み定数  $d$  を圧電応力定数  $e$  に変換した。その値を代表的圧電結晶の値とともに表 3.8 に示す。圧電応力定数  $e$  は圧電歪み定数  $d$  を逆マトリックス変換することにより得られるため、すべての圧電歪み定数  $d$  がなければそれらを得ることはできない。GdCOB 結晶の圧電定数では、すべりの圧電定数  $d_{15}$ 、 $d_{24}$ 、 $d_{26}$ 、 $d_{35}$  をすべて算出できなかったため、ここには GdCOB 結晶の圧電応力定数  $e$  を示していない。表 3.8 に示すように、比較的小さな電気機械結合係数、圧電定数を有する水晶と比べても RCOB 結晶の圧電定数  $e_{11}$  は小さく、 $e_{33}$  は代表的圧電結晶と比べ 1 桁から 2 桁小さいことがわかった。

表 3.8 RCOB 結晶の圧電応力定数  $e_{11}$ 、 $e_{33}$  ならびに代表的圧電結晶とのその比較

点群	RCOB 結晶			代表的圧電結晶			
	$m$			32	4mm	3m	
$e_{ij}$ [C/m <sup>2</sup> ]	LaCOB	GdCOB	YCOB	水晶	LBO	LN	LT
11	0.31	—	0.08	0.1719	—	—	—
33	0.09	—	0.08	—	0.928	1.33	1.09
参考文献	—	—	—	27)	28)	29)	

次に、 $d_{31}$  モードで圧電極性を調べた結果について示す。 $d_{31}$  モードでの極性判定の結果、式(3-8)に示すように、 $d_{12}$  が正、 $d_{13}$ 、 $d_{31}$ 、 $d_{32}$  が負となることがわかった。この結果は 3.2.3 項で述べたスクイズテストの結果と一致し、さらに LaCOB 結晶、GdCOB 結晶、YCOB 結晶で共通していた。ここで注目すべきは、圧電定数  $d_{12}$  の符号が正であるという点である。点群  $m$  では  $d_{11}$  と  $d_{33}$  は正と定義されている<sup>22)</sup>。ここで、1 軸( $X$  軸)に応力を与えた場合を考える。 $d_{11}$  が正の意味は、1 軸の正方向に引張り応力を与えたとき、1 軸の正方向に正の電荷を発生するということである。このとき 3 軸は 1 軸が引張り応力を受けたことで縮むため、3 軸の正方向には負の電荷が発生し、従って  $d_{31}$  は負となる。次に、3 軸( $Z$  軸)に応力を与えたとき場合を考える。 $d_{33}$  が正の意味も  $d_{11}$  と同様に考えることができる。3 軸の正方向に引張り応力を与えたとき 3 軸の正方向には正の電荷が発生するが、1 軸は縮むため 1 軸の正方向には負の電荷が発生する。従って  $d_{13}$  は負となる。1 軸、3 軸と同様に、圧電定数  $d_{12}$  と  $d_{32}$  の符号を議論するため 2 軸( $Y$  軸)に引張り応力を与えた場合を考える。このとき 2 軸には電気変位は起こらない。これは点群  $m$  では  $d_{2j} = 0$  ( $j = 1, 2, 3, 5$ ) であるため、2 軸方向のピエゾ縦効果がないためである。2 軸が引張り応力を受けたとき 1 軸と 3 軸はこれまでのように縮むため、1 軸方向、3 軸方向ともに負の電荷が発生し、従って  $d_{12}$  と  $d_{32}$  はともに負になりそうなものである。しかし、スクイズテストならびに  $d_{33}/d_{31}$  メータの  $d_{31}$  モードによる圧電極性判定の結果、 $d_{12}$  の符号は正となった。これは 2 軸( $Y$  軸)への応力に対して 1 軸と 3 軸で電気変位の様相が異なることを意味し、 $Y$  面における鏡面の存在、即ち点群  $m$  の対称性に起因するものと考えられる。筆者の知る限り、一般に圧電結晶の圧電定数  $d_{12}$  が正という報告はなく、点群  $m$  に属する RCOB 結晶の特徴だと言える。

$$\begin{bmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} \\ + & + & - \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} \\ - & - & + \end{bmatrix} \quad (3-8)$$

### (3) 基本カットを用いての弾性定数と圧電定数の評価

基本カットから得られる弾性定数と圧電定数を評価した結果について述べる。基本カットとは、第 2 章で示したカットの中で、圧電軸周りに無回転の板状カットのことを言い、これらのカットではモード同定が容易な横効果長さ伸び(TE-LE)振動が低周波数帯で励振される。これらには  $(ZYw)0^\circ$ 、 $(ZXw)0^\circ$ 、 $(XYt)0^\circ$ 、 $(XZw)0^\circ$  の 4 種類のカットがある。この 4 種類のカットの TE-LE 振動モードを用いて得られる弾性定数は  $s_{11}^E$ 、 $s_{22}^E$ 、 $s_{33}^E$  であり、圧電定数は  $d_{12}$ 、 $d_{13}$ 、 $d_{31}$ 、 $d_{32}$  である。これらカットの共振特性の測定結果を以下にまとめる。但し、煩雑になるのを避けるため、3 結晶のうち LaCOB 結晶と YCOB 結晶の共振特性を示すことにし、このことは以降も同様である。

### (ZYw)0°カット

第2章で示したように、このカットの TE-LE 振動からは  $s_{22}^E$ 、 $d_{32}$  ( $\epsilon_{33}^T$ ) を算出することができる。まず、LaCOB 結晶の (ZYw)0° の共振特性を図 3.37 に示す。カット形状は、 $l = 9.39$  mm、 $w = 4.59$  mm、 $t = 1.31$  mm であった。図の (a) は広帯域の共振 - 反共振プロファイル、(b) は TE-LE 振動の共振点付近のそれである。図の (a) にあるように、最低周波数の共振ピークが TE-LE 振動の基本共振である。このカットでは  $d_{31}' (= d_{32})$ 、 $d_{32}' (= d_{31})$ 、 $d_{33}' (= d_{33})$  ならびに  $d_{34}' (= -d_{35})$  が存在することから、低周波数帯で励振される振動モードは  $d_{31}'$  (TE-LE 振動) と  $d_{32}'$  (TE-WE 振動) のみであるため、容易に振動モードを同定することができる。同定の結果、TE-LE 振動の直列共振周波数  $f_s (= 322.078$  kHz) と並列共振周波数  $f_p (= 323.027$  kHz) を決定し、 $s_{22}^E = 7.78 \times 10^{-12}$  m<sup>2</sup>/N、 $d_{32} = -2.22$  pC/N、 $k_{32} = 8.5\%$ 、 $Q_m = 8776$  を得た。このカットの  $Q_m$  は非常に高く、既存材料の LBO の厚みすべり振動モードにおける高  $Q_m$  5800 をはるかに凌ぐ値である。但し、LaCOB 結晶の電気機械結合係数  $k_{32}$  (8.5%) は LBO の  $k_s$  (25%) と比べ低い。

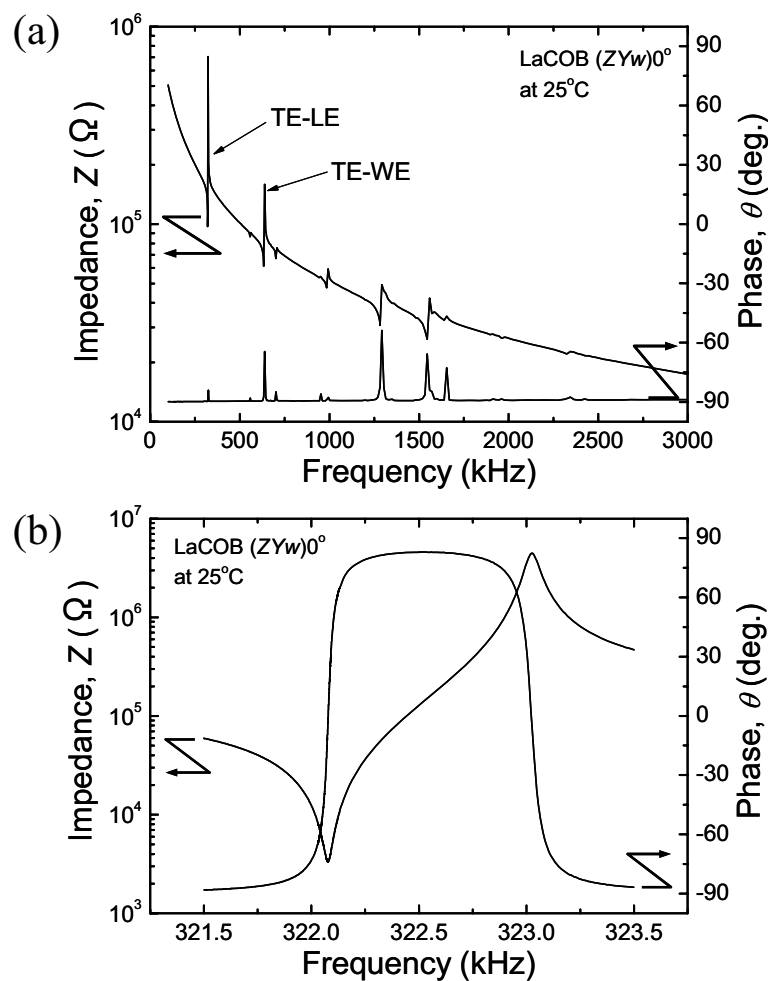


図 3.37 LaCOB 結晶の (ZYw)0° の共振 - 反共振プロファイル (a) 広帯域, (b) TE-LE 振動の共振点付近。

次に、YCOB 結晶の(ZYw)0°の共振特性を図 3.38 に示す。カット形状は、 $l = 13.9$  mm、 $w = 5.18$  mm、 $t = 1.53$  mm であった。図の(a)は広帯域の共振 - 反共振プロファイル、(b)は TE-LE 振動の共振点付近のそれである。LaCOB 結晶の場合と同様、振動モードの同定を行った。その結果、TE-LE 振動の直列共振周波数  $f_s (= 237.833$  kHz)と並列共振周波数  $f_p (= 238.687$  kHz)を決定した。その結果、 $s_{22}^E = 6.91 \times 10^{-12}$  m<sup>2</sup>/N、 $d_{32} = -2.27$  pC/N、 $k_{32} = 9.4\%$ 、 $Q_m = 3250$  を得た。

各結晶における(ZYw)0°から得られた弾性定数  $s_{22}^E$ 、圧電定数  $d_{32}$ 、電気機械結合係数  $k_{32}$ 、機械的品質係数  $Q_m$ を表 3.9 にまとめる。

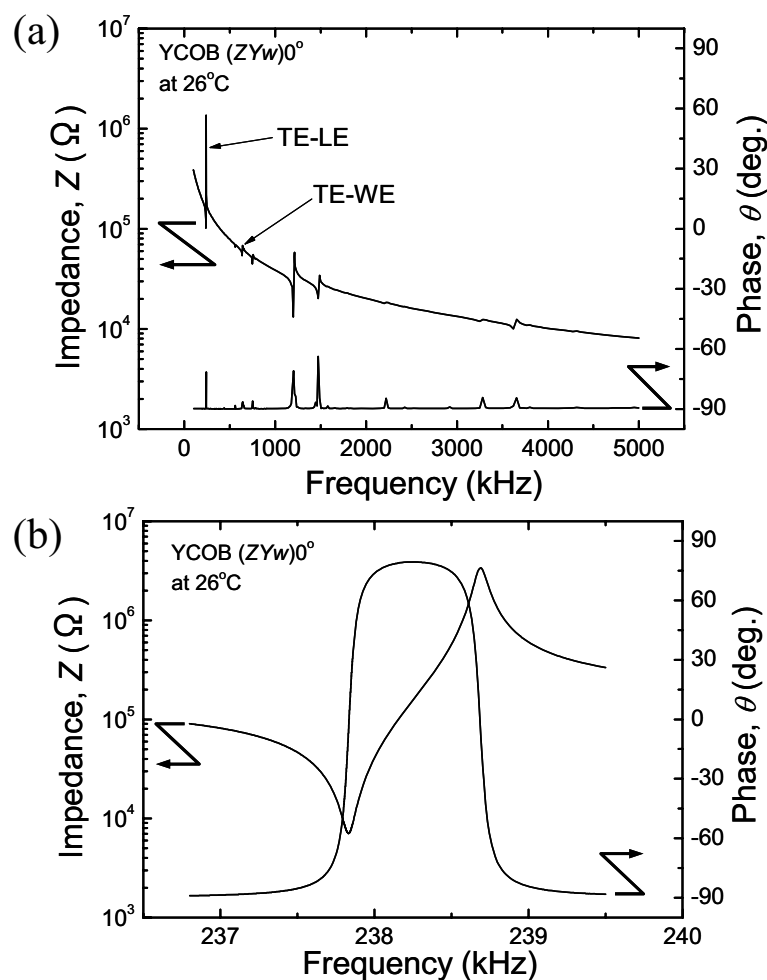


図 3.38 YCOB 結晶の(ZYw)0°の共振 - 反共振プロファイル (a)広帯域、(b)TE-LE 振動の共振点付近.

表 3.9 RCOB 結晶の(ZYw)0°から得た諸定数

	LaCOB	GdCOB	YCOB
$s_{22}^E$ [ $\times 10^{-12}$ m <sup>2</sup> /N]	7.78	7.15	6.91
$d_{32}$ [pC/N]	-2.22	-2.40	-2.27
$k_{32}$ [%]	8.5	8.1	9.4
$Q_m$ [-]	8776	-	3250

### (ZXw)0°カット

第2章で示したように、このカットの TE-LE 振動からは  $s_{11}^E$ 、 $d_{31}$  ( $\epsilon_{33}^T$ ) を算出することができる。まず、LaCOB 結晶の (ZXw)0° の共振特性を図 3.39 に示す。カット形状は、 $l = 14.9$  mm、 $w = 9.47$  mm、 $t = 1.12$  mm であった。図の (a) は広帯域の共振 - 反共振プロファイル、(b) は TE-LE 振動の共振点付近のそれである。このカットでは  $d_{31}' (= d_{31})$ 、 $d_{32}' (= d_{32})$ 、 $d_{33}' (= d_{33})$  ならびに  $d_{35}' (= d_{35})$  が存在することから、低周波数帯で励振される振動モードは  $d_{31}'$  (TE-LE 振動) と  $d_{32}'$  (TE-WE 振動) のみであるため、図の (a) にあるように、最低周波数の共振ピークが TE-LE 振動の基本共振である。これより、TE-LE 振動の直列共振周波数  $f_s (= 191.571$  kHz) と並列共振周波数  $f_p (= 191.601$  kHz) を決定し、 $s_{11}^E = 8.82 \times 10^{-12}$  m<sup>2</sup>/N、 $d_{31} = -0.549$  pC/N、 $k_{31} = 2.0\%$ 、 $Q_m = 5025$  を得た。

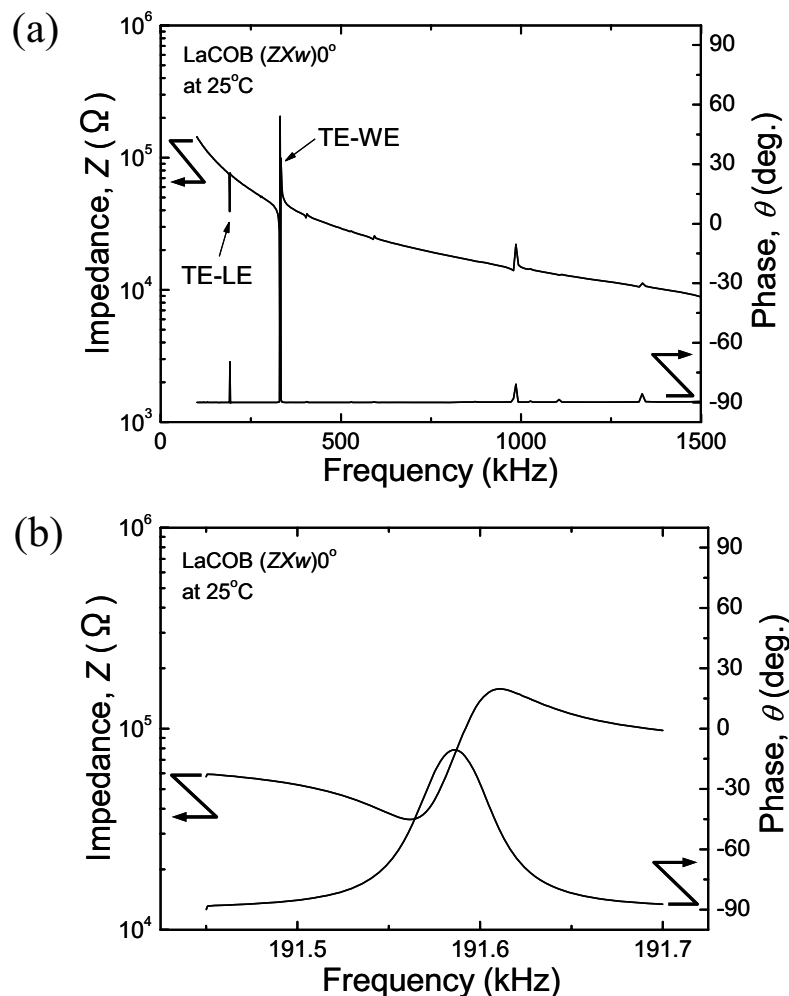


図 3.39 LaCOB 結晶の (ZXw)0° の共振 - 反共振プロファイル (a) 広帯域, (b) TE-LE 振動の共振点付近。

次に、YCOB 結晶の(ZXw)0°の共振特性を図 3.40 に示す。カット形状は、 $l = 10.8$  mm、 $w = 7.13$  mm、 $t = 2.13$  mm であった。図の(a)は広帯域の共振 - 反共振プロファイル、(b)は TE-LE 振動の共振点付近のそれである。LaCOB 結晶の場合と同様、振動モードの同定を行った。その結果、TE-LE 振動の直列共振周波数  $f_s (= 303.782$  kHz)と並列共振周波数  $f_p (= 303.789$  kHz)を決定し、 $s_{11}^E = 7.15 \times 10^{-12}$  m<sup>2</sup>/N、 $d_{31} = -0.202$  pC/N、 $k_{31} = 0.80\%$ 、 $Q_m = 3600$  を得た。

各結晶における(ZXw)0°から得られた弾性定数  $s_{11}^E$ 、圧電定数  $d_{31}$ 、電気機械結合係数  $k_{31}$ 、機械的品質係数  $Q_m$  を表 3.10 にまとめる。

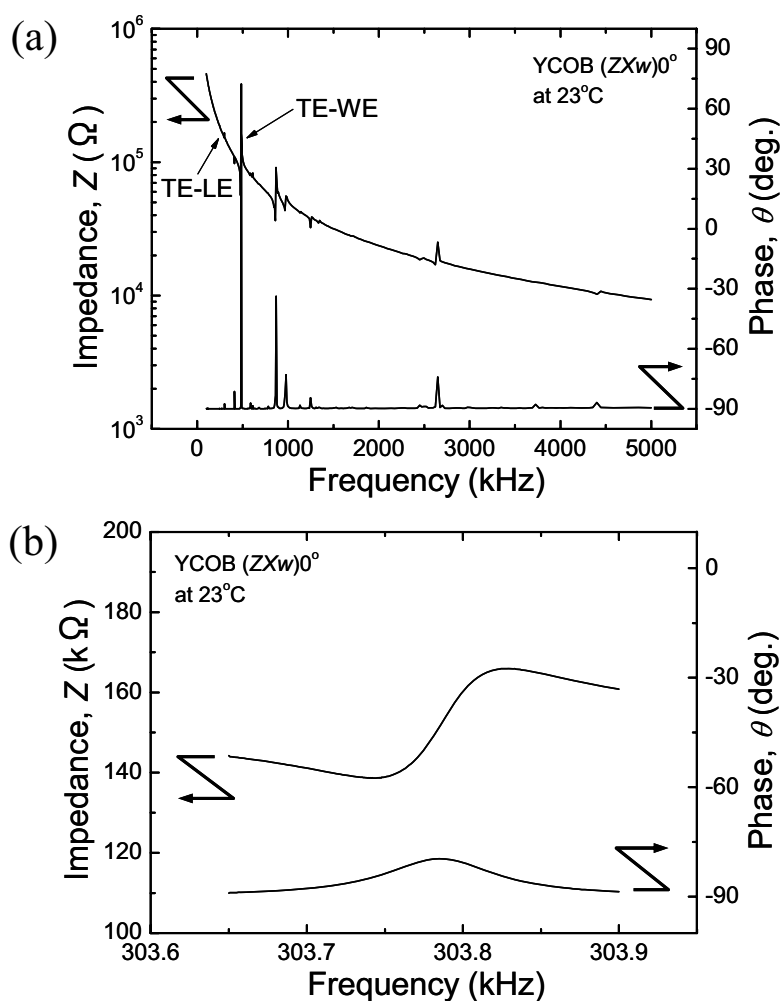


図 3.40 YCOB 結晶の(ZXw)0°の共振 - 反共振プロファイル (a)広帯域, (b)TE-LE 振動の共振点付近.

表 3.10 RCOB 結晶の(ZXw)0°から得た諸定数

	LaCOB	GdCOB	YCOB
$s_{11}^E$ [ $\times 10^{-12}$ m <sup>2</sup> /N]	8.82	7.60	7.15
$d_{31}$ [pC/N]	-0.549	-0.770	-0.202
$k_{31}$ [%]	2.0	2.9	0.80
$Q_m$ [-]	5025	-	3600

### (XYt)0°カット

第2章で示したように、このカットの TE-LE 振動からは  $d_{12}$  ( $s_{22}^E, \epsilon_{11}^T$ ) を算出することができる。まず、LaCOB 結晶の (XYt)0° の共振特性を図 3.41 に示す。カット形状は、 $l = 13.6$  mm、 $w = 5.17$  mm、 $t = 0.834$  mm であった。図の(a)は広帯域の共振 - 反共振プロファイル、(b)は TE-LE 振動の共振点付近のそれである。このカットでは  $d_{31}' (= d_{12})$ 、 $d_{32}' (= d_{13})$ 、 $d_{33}' (= d_{11})$  ならびに  $d_{34}' (= d_{15})$  が存在することから、低周波数帯で励振される振動モードは  $d_{31}'$  (TE-LE 振動) と  $d_{32}'$  (TE-WE 振動) のみであるため、図の(a)にあるように、最低周波数の共振ピークが TE-LE 振動の基本共振である。これより、TE-LE 振動の直列共振周波数  $f_s (= 222.471$  kHz) と並列共振周波数  $f_p (= 224.541$  kHz) を決定し、 $d_{12} = 3.89$  pC/N、 $k_{12} = 15\%$ 、 $Q_m = 8178$  を得た。このカットの  $Q_m$  は非常に高く、既存材料の LBO の厚みすべり振動モードにおける高  $Q_m 5800$  をはるかに凌ぐ値である。さらに、電気機械結合係数  $k_{12}$  は 15% と LBO の  $k_s$  (25%) にこそ劣るが、LaCOB 結晶の共振子として高い性能を示すカット方位であることがわかった。

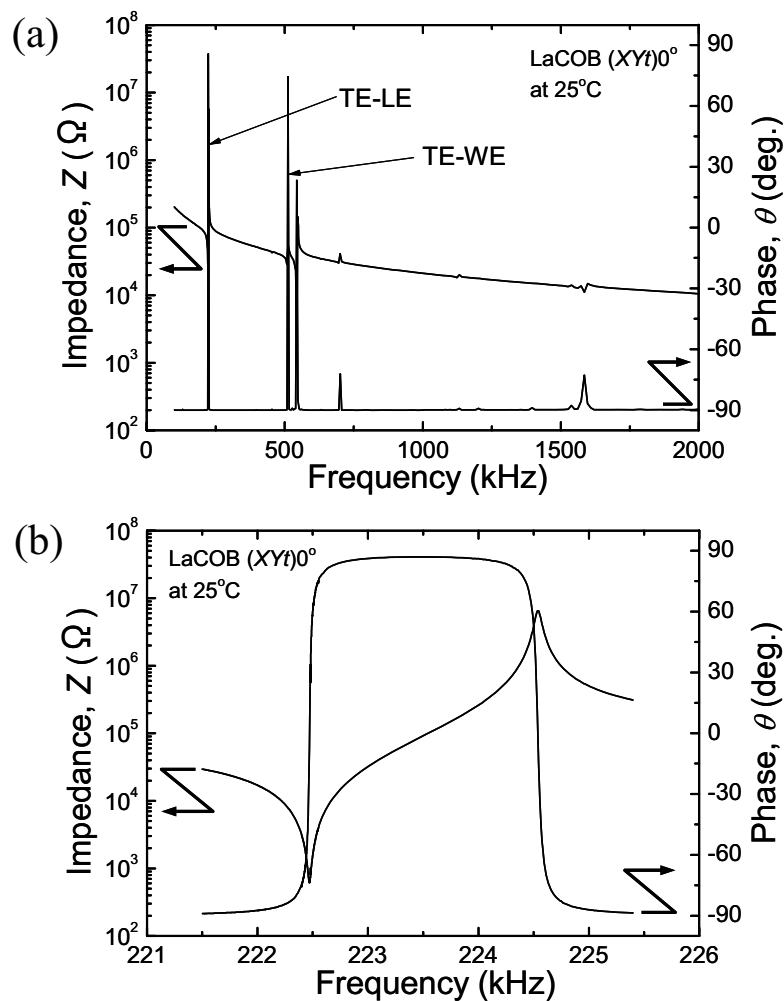


図 3.41 LaCOB 結晶の (XYt)0° の共振 - 反共振プロファイル (a) 広帯域, (b) TE-LE 振動の共振点付近.

次に、YCOB 結晶の $(XYt)0^\circ$ の共振特性を図 3.42 に示す。カット形状は、 $l = 8.73$  mm、 $w = 4.09$  mm、 $t = 1.00$  mm であった。図の(a)は広帯域の共振 - 反共振プロファイル、(b)は TE-LE 振動の共振点付近のそれである。LaCOB 結晶の場合と同様、振動モードの同定を行った。その結果、TE-LE 振動の直列共振周波数  $f_s (= 377.879$  kHz)と並列共振周波数  $f_p (= 381.685$  kHz)を決定し、 $d_{12} = 3.82$  pC/N、 $k_{12} = 16\%$ 、 $Q_m = 167$ を得た。

各結晶における $(XYt)0^\circ$ から得られた圧電定数  $d_{12}$ 、電気機械結合係数  $k_{12}$ 、機械的品質係数  $Q_m$ を表 3.11 にまとめる。

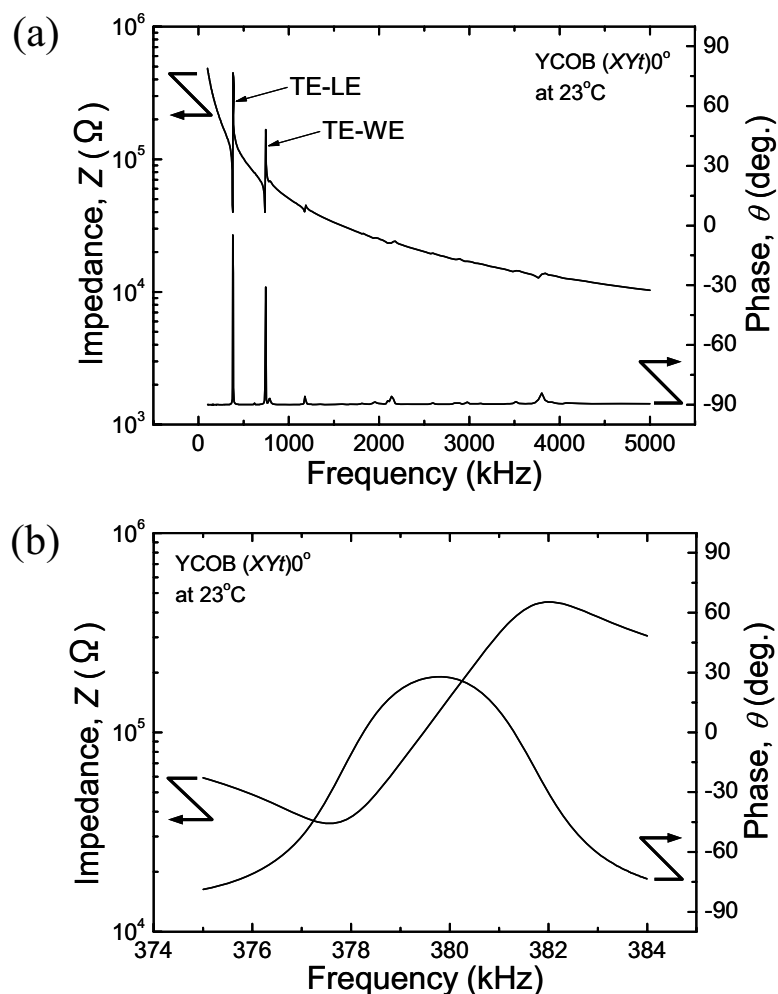


図 3.42 YCOB 結晶の $(XYt)0^\circ$ の共振 - 反共振プロファイル (a)広帯域、(b)TE-LE 振動の共振点付近.

表 3.11 RCOB 結晶の $(XYt)0^\circ$ から得た諸定数

	LaCOB	GdCOB	YCOB
$d_{12}$ [pC/N]	3.89	4.80	3.82
$k_{12}$ [%]	15	16	16
$Q_m$ [-]	8178	-	167



### (XZw)0°カット

第2章で示したように、このカットの TE-LE 振動からは  $s_{33}^E$ 、 $d_{13}$  ( $\epsilon_{11}^T$ ) を算出することができる。まず、LaCOB 結晶の (XZw)0° の共振特性を図 3.43 に示す。カット形状は、 $l=9.15$  mm、 $w=5.62$  mm、 $t=0.408$  mm であった。図の(a)は広帯域の共振 - 反共振プロファイル、(b)は TE-LE 振動の共振点付近のそれである。このカットでは  $d_{31}' (= d_{13})$ 、 $d_{32}' (= d_{12})$ 、 $d_{33}' (= d_{11})$  ならびに  $d_{35}' (= d_{15})$  が存在することから、低周波数帯で励振される振動モードは  $d_{31}'$  (TE-LE 振動) と  $d_{32}'$  (TE-WE 振動) のみであるため、図の(a)にあるように、最低周波数の共振ピークが TE-LE 振動の基本共振である。これより、直列共振周波数  $f_s (= 291.110$  kHz) と並列共振周波数  $f_p (= 294.912$  kHz) を決定し、 $s_{33}^E = 10.10 \times 10^{-12}$  m<sup>2</sup>/N、 $d_{13} = -3.89$  pC/N、 $k_{13} = 18\%$ 、 $Q_m = 2132$  を得た。

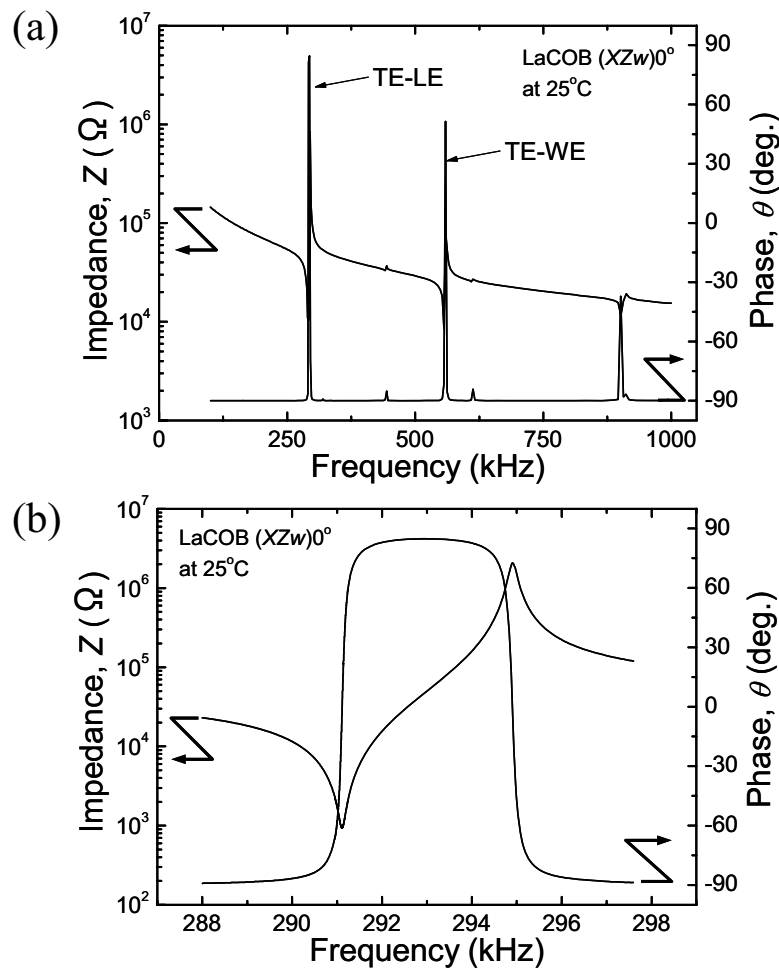


図 3.43 LaCOB 結晶の (XZw)0° の共振 - 反共振プロファイル (a)広帯域, (b)TE-LE 振動の共振点付近.

次に、YCOB 結晶の $(XZw)0^\circ$ の共振特性を図 3.44 に示す。カット形状は、 $l = 18.7$  mm、 $w = 7.56$  mm、 $t = 0.939$  mm であった。図の(a)は広帯域の共振 - 反共振プロファイル、(b)は TE-LE 振動の共振点付近のそれである。LaCOB 結晶の場合と同様、振動モードの同定を行った。その結果、TE-LE 振動の直列共振周波数  $f_s (= 158.004$  kHz)と並列共振周波数  $f_p (= 159.557$  kHz)を決定し、 $s_{33}^E = 8.79 \times 10^{-12}$  m<sup>2</sup>/N、 $d_{13} = -4.16$  pC/N、 $k_{13} = 15\%$ 、 $Q_m = 2982$  を得た。

各結晶における $(XZw)0^\circ$ から得られた弾性定数  $s_{33}^E$ 、圧電定数  $d_{13}$ 、電気機械結合係数  $k_{13}$ 、機械的品質係数  $Q_m$ を表 3.12 にまとめる。

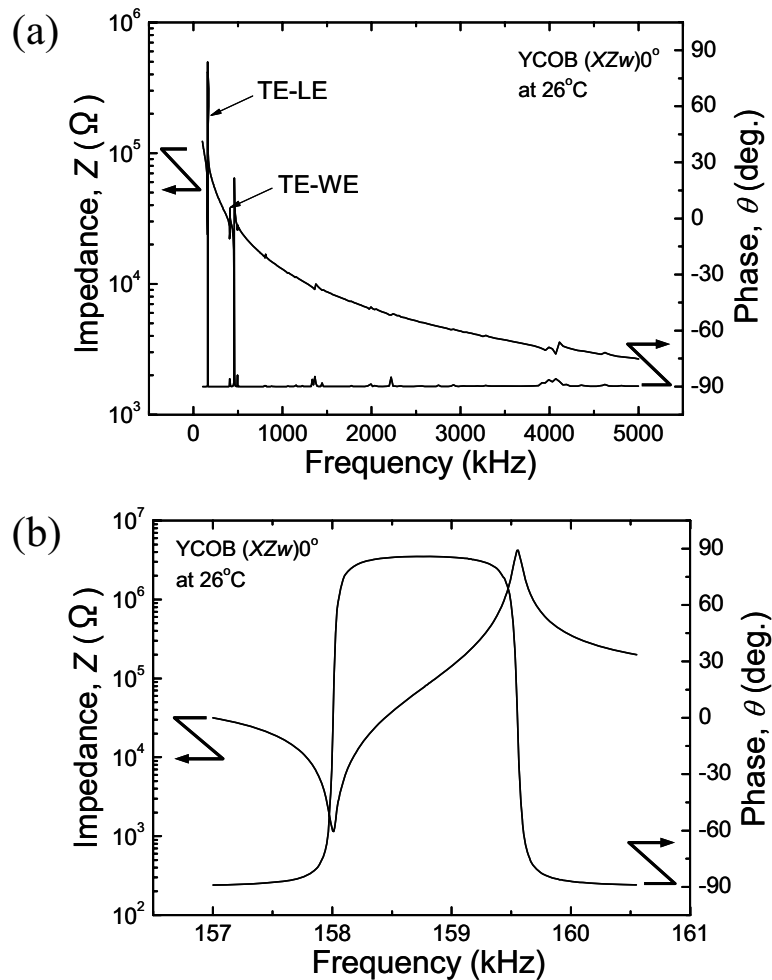


図 3.44 YCOB 結晶の $(XZw)0^\circ$ の共振 - 反共振プロファイル (a)広帯域、(b)TE-LE 振動の共振点付近。

表 3.12 RCOB 結晶の $(XZw)0^\circ$ から得た諸定数

	LaCOB	GdCOB	YCOB
$s_{33}^E$ [ $\times 10^{-12}$ m <sup>2</sup> /N]	10.10	8.94	8.79
$d_{13}$ [pC/N]	-3.89	-3.80	-4.16
$k_{13}$ [%]	18	12	15
$Q_m$ [-]	2132	-	2982

以上、第 2 章で示した 4 種の基本カットの TE-LE 振動を用いて、各結晶の弾性定数  $s_{11}^E$ 、 $s_{22}^E$ 、 $s_{33}^E$  ならびに圧電定数  $d_{12}$ 、 $d_{13}$ 、 $d_{31}$ 、 $d_{32}$  を算出した。

RCOB 結晶の圧電定数  $d_{12}$ 、 $d_{13}$ 、 $d_{31}$ 、 $d_{32}$  は、図 3.45 に示すように、各結晶で同程度の値を示すことがわかった。これら 4 つの圧電定数で比較した場合に、 $d_{12}$  と  $d_{13}$  の絶対値が他と比べ大きく、電気機械結合係数は  $k_{12}$  が 15%程度、 $k_{13}$  が 17%程度を示した。一方、 $k_{31}$  は 1~2%、 $k_{32}$  は 9%程度の小さな値を示した。また、LaCOB 結晶の  $(ZYw)0^\circ$  と  $(XYt)0^\circ$  の TE-LE 振動では、8000 を超える機械的品質係数  $Q_m$  が得られ、これが既存材料の LBO の厚みすべり振動モードにおける高  $Q_m$ 5800 をはるかに凌ぐ値であることがわかった。特に  $(XYt)0^\circ$  の TE-LE 振動では、 $k_{12}$ ~15%、 $Q_m$ ~8100 という共振子として高い性能を示すことがわかった。ここで、圧電定数  $d_{11}$  と  $d_{33}$  の場合と同様、圧電歪み定数  $d_{12}$ 、 $d_{13}$ 、 $d_{31}$ 、 $d_{32}$  から変換した圧電応力定数  $e_{12}$ 、 $e_{13}$ 、 $e_{31}$ 、 $e_{32}$  の値を、既存の弾性波素子用圧電材料の値とともに表 3.13 に示す。GdCOB 結晶の圧電応力定数  $e$  については、 $d_{11}$  と  $d_{33}$  の場合と同様の理由によりここには記載していない。代表的圧電結晶に圧電応力定数  $e_{12}$ 、 $e_{13}$  をテンソル成分として持つものはないが、RCOB 結晶の  $e_{31}$ 、 $e_{32}$  を代表的圧電結晶のそれらと比較すると  $e_{31}$  が極めて小さいことがわかる。これは  $k_{31}$  が 1~2%であることから伺える。また、 $e_{32}$  は KN 結晶と比べ 1 桁小さく、電気機械結合係数で比較すると KN 結晶の  $k_{32}$ ~15%に対し、RCOB 結晶は~9%であった。

また、図 3.46 に示すように、弾性定数  $s_{ij}^E$  ( $i = j = 1, 2, 3$ ) は R サイトを占有する元素のイオン半径が最大の LaCOB 結晶で最も大きな値を示したことから、R サイトにイオン半径の大きな元素が占有された場合に、より結晶が圧電軸(X、Y、Z 軸)の方向で柔らかくなることがわかった。このことは、同じ応力に対する圧電軸方向への格子歪みの増大を意味し、図 3.47 に示す R サイトを占有する元素のイオン半径に対する格子定数の変化もこのことを反映している。Y 軸と  $b$  軸ならびに Z 軸と  $c$  軸はそれぞれ等しいため、 $s_{22}^E$  の増加は格子定数  $b$  の増加(図 3.47(b))に、 $s_{33}^E$  の増加は格子定数  $c$  の増加(図 3.47(c))にそれぞれ起因していると考えられる。X 軸と  $a$  軸は軸角  $\beta$  が存在するため約  $11^\circ$  ずれているが、格子定数  $a$  の増加も  $s_{11}^E$  の増加に密接に関係していると考えられる。尚、格子定数  $a$ 、 $b$ 、 $c$  には結晶構造解析に関する文献 32) の報告値を引用した。

表 3.13 RCOB 結晶と代表的圧電結晶の圧電応力定数  $e_{12}$ 、 $e_{13}$ 、 $e_{31}$ 、 $e_{32}$

点群	RCOB 結晶			代表的圧電結晶			
	$m$			$mm2$	$4mm$	$3m$	
$e_{ij}$ [C/m <sup>2</sup> ]	LaCOB	GdCOB	YCOB	KN	LBO	LN	LT
12	0.73	—	0.49	—	—	—	—
13	-0.29	—	-0.46	—	—	—	—
31	-0.04	—	-0.03	2.46	0.290	0.23	-0.38
32	-0.21	—	-0.32	-1.1	—	—	—
参考文献	—	—	—	31)	28)	29)	

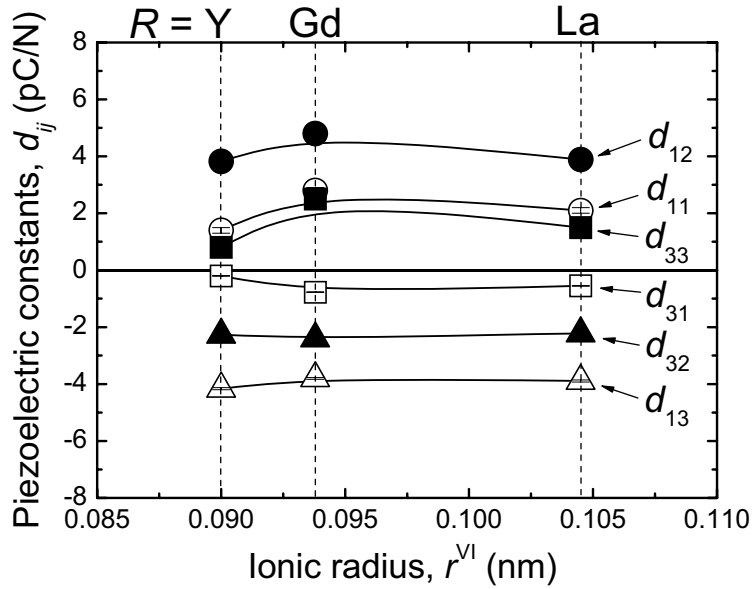


図 3.45 RCOB 結晶の圧電定数  $d_{ij}$  ならびに  $d_{3j}$  ( $j = 1, 2, 3$ ). 横軸は  $R$  サイトを占有する元素のイオン半径, 縦軸は圧電定数.

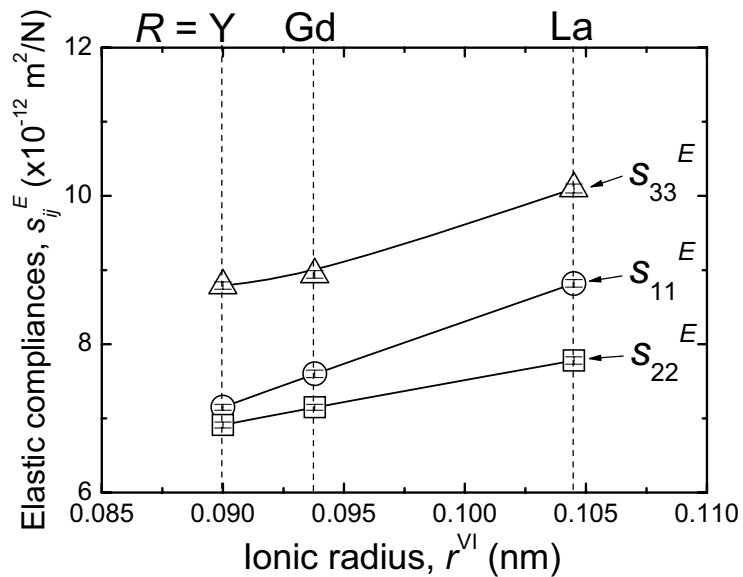


図 3.46 RCOB 結晶の弾性定数  $s_{ij}^E$  ( $i = j = 1, 2, 3$ ). 横軸は  $R$  サイトを占有する元素のイオン半径, 縦軸は弾性定数.

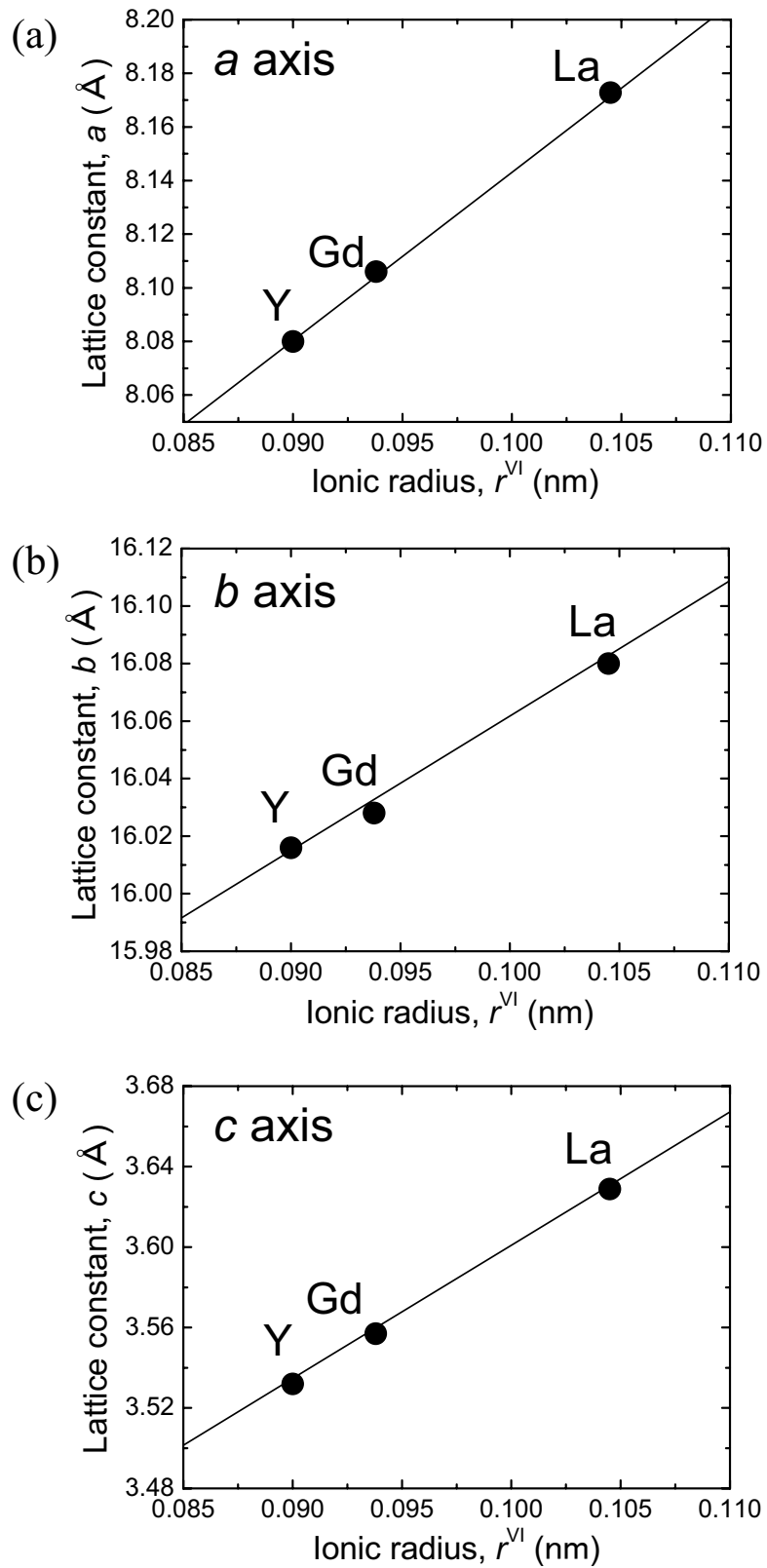


図 3.47 RCOB 結晶の格子定数 (a)格子定数  $a$  とイオン半径, (b)格子定数  $b$  とイオン半径, (c)格子定数  $c$  とイオン半径<sup>32)</sup>.

#### (4) 縦効果面内すべり振動による弾性定数と圧電定数の評価

ここでは、 $s_{44}^E$ を $d_{24}$ に付随するものとして、 $Y$ 面電極( $XZw$ ) $0^\circ$ の縦効果面内すべり(LE-FS)振動を用いて同時に算出し、さらに $s_{66}^E$ を $d_{26}$ と同時に $Y$ 面電極( $ZXw$ ) $0^\circ$ のLE-FS振動を用いて算出した結果について述べる。その結果を示す前に、第2章では明示しなかったこの評価方法に至った理由(測定結果から明らかになった問題点)についてまず述べることにする。

第2章2.3.3項で、点群2のカットを利用した場合に点群 $m$ で利用可能な振動モードならびに算出可能な材料定数について検討した結果、点群 $m$ では( $XYt$ ) $45^\circ$ のTE-FS振動とTE-LE振動によりそれぞれ弾性定数 $s_{23}^E$ と $s_{44}^E$ が算出可能であることを示し、さらに( $ZXt$ ) $45^\circ$ のTE-FS振動とTE-LE振動によりそれぞれ弾性定数 $s_{12}^E$ と $s_{66}^E$ が算出可能であることを示した。具体的には、( $XYt$ ) $45^\circ$ を利用する場合、TE-FS振動から得られる $s_{66}^E$ と $s_{22}^E$ 、 $s_{33}^E$ を用いて $s_{23}^E$ を算出し、TE-LE振動から得られる $s_{11}^E$ と $s_{23}^E$ 、 $s_{22}^E$ 、 $s_{33}^E$ を用いて $s_{44}^E$ を算出する。同様に、( $ZXt$ ) $45^\circ$ を利用する場合、TE-FS振動から得られる $s_{66}^E$ と $s_{11}^E$ 、 $s_{22}^E$ を用いて $s_{12}^E$ を算出し、TE-LE振動から得られる $s_{11}^E$ と $s_{12}^E$ 、 $s_{11}^E$ 、 $s_{22}^E$ を用いて $s_{66}^E$ を算出する。

ここに一例として、LaCOB結晶の( $ZXt$ ) $45^\circ$ (カット形状 $l = 11.9$  mm、 $w = 4.89$  mm、 $t = 0.989$  mm)を用いた場合の評価結果を示す。このカットのTE-FS振動を用いて算出した弾性定数 $s_{12}^E$ は $-6.64 \times 10^{-12}$  m<sup>2</sup>/Nであり、TE-LE振動を用いて算出した弾性定数 $s_{66}^E$ は $28.3 \times 10^{-12}$  m<sup>2</sup>/Nであった。ここで注目すべき点は弾性定数 $s_{12}^E$ の大きさである。一般に、弾性定数 $s_{12}^E$ は0から $-2.0 \times 10^{-12}$  m<sup>2</sup>/N程度の値を示し、これは点群の異なる圧電結晶でも共通して言えることである。付録A.6の算出式からわかるように、弾性定数は結晶の密度( $\rho$ )、振動方向の長さ( $l$ 、 $w$ 、 $t$ )、共振周波数( $f_s$ 、 $f_p$ )により決定される。これより、モード結合による共振周波数のシフトが懸念された。このことは弾性定数 $s_{12}^E$ にとどまる問題ではない。弾性定数 $s_{66}^E$ は $s_{12}^E$ を用いて算出されるため真の値からずれることになる。ここで、モード結合とは2つ以上の固有振動モードの共振周波数が近い場合に、振動モード間に生じる結合振動のことを言う<sup>33)</sup>。

以上、( $XYt$ ) $45^\circ$ を用いた評価でも( $ZXt$ ) $45^\circ$ と同様にモード結合が懸念されたことを受け、弾性定数 $s_{44}^E$ 、 $s_{66}^E$ の算出のために側面電極励振のLE-FS振動による評価方法を考案した。第2章で示したように、 $d_{2j}$  ( $j = 1, 2, 3, 5$ ) = 0という点群 $m$ の対称性を利用したこの評価方法では、すべりの圧電定数 $d_{24}$ と弾性定数 $s_{44}^E$ を同時に、すべりの圧電定数 $d_{26}$ と弾性定数 $s_{66}^E$ を同時に算出することができる。尚、モード結合が懸念されたカットを用いて評価できない弾性定数 $s_{12}^E$ と $s_{23}^E$ については、( $YXw$ ) $45^\circ$ のTE-LE振動と( $ZYw$ ) $45^\circ$ のTE-LE振動によりそれぞれ算出可能であることを第2章で示した。

### Y面電極(XZw)0°カット

LaCOB 結晶の Y 面電極を用いた(XZw)0° の共振特性を図 3.48 に示す。カット形状は、 $l = 14.3$  mm、 $w = 2.97$  mm、 $t = 1.39$  mm であった。図の(a)は広帯域の共振 - 反共振プロファイル、(b)は LE-FS 振動( $d_{26}'$ )の幅共振点付近のそれである。一般に、面内すべり振動の場合には共振子を長さ寸法が数倍異なる形状にし、長さ共振ではなく幅共振を用いる<sup>33)</sup>。このカットでは  $d_{26}' (= d_{24})$  と  $d_{24}' (= d_{26})$  の 2 種類の LE-FS 振動の長さ共振と幅共振がそれぞれ励振される。これは棒柱試料のときと同様、比較的 low frequency 帯励振の振動モードである。図の(a)にあるように、低周波数帯の共振ピークが LE-FS 振動( $d_{26}'$ )の幅共振である。尚、その長さ共振は幅共振よりも低周波数帯で励振されるが、サンプリング幅の関係でここでは見えていない。これより、LE-FS 振動( $d_{26}'$ )の幅共振の直列共振周波数  $f_s (= 490.883$  kHz)と並列共振周波数  $f_p (= 490.978$  kHz)を決定し、 $s_{44}^E = 33.8 \times 10^{-12}$  m<sup>2</sup>/N、 $d_{24} = 0.45$  pC/N、 $k_{24} = 2.2\%$ 、 $Q_m = 26$  を得た。

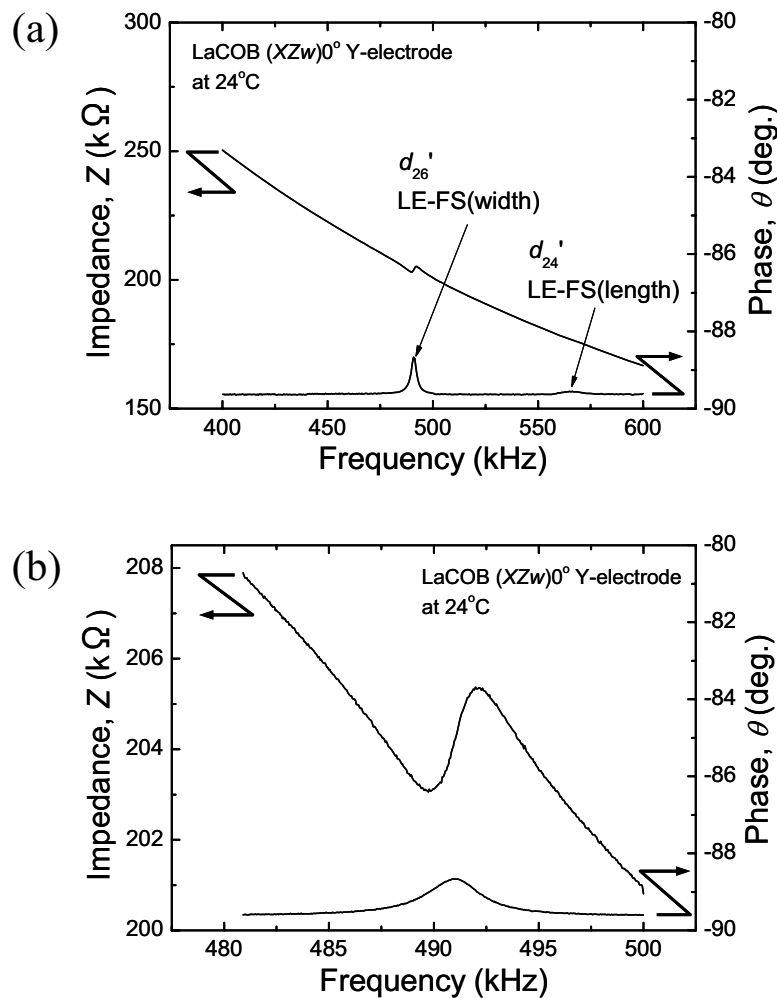


図 3.48 LaCOB 結晶の Y 面電極(XZw)0° の共振 - 反共振プロファイル (a)広帯域、(b)LE-FS 振動( $d_{26}'$ )の幅共振点付近。

次に、YCOB 結晶の Y 面電極を用いた  $(XZw)0^\circ$  の共振特性を図 3.49 に示す。カット形状は、 $l = 11.2$  mm、 $w = 3.67$  mm、 $t = 1.78$  mm であった。図の(a)は広帯域の共振 - 反共振プロファイル、(b)は LE-FS 振動( $d_{26}'$ )の幅共振点付近のそれである。LaCOB 結晶の場合と同様、このカットでは  $d_{26}' (= d_{24})$  と  $d_{24}' (= d_{26})$  の 2 種類の LE-FS 振動の長さ共振と幅共振がそれぞれ励振される。図の(a)にあるように、最低周波数の共振ピークが LE-FS 振動( $d_{26}'$ )の長さ共振、400kHz 付近のそれが幅共振である。これより、LE-FS 振動( $d_{26}'$ )の幅共振の直列共振周波数  $f_s (= 401.708$  kHz)と並列共振周波数  $f_p (= 401.887$  kHz)を決定し、 $s_{44}^E = 35.2 \times 10^{-12}$  m<sup>2</sup>/N、 $d_{24} = -2.61$  pC/N、 $k_{24} = 3.3\%$ 、 $Q_m = 75$  を得た。

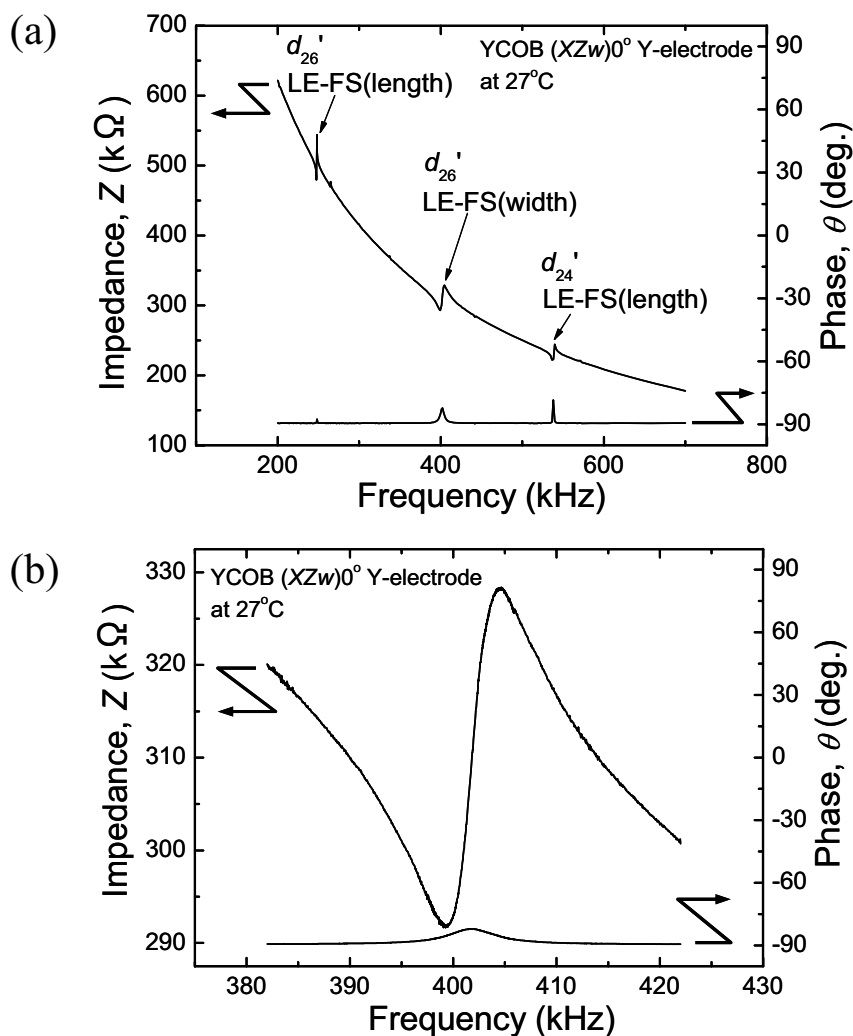


図 3.49 YCOB 結晶の Y 面電極  $(XZw)0^\circ$  の共振 - 反共振プロファイル (a)広帯域、(b)LE-FS 振動( $d_{26}'$ )の幅共振点付近。



### Y面電極(ZXw)0°カット

LaCOB 結晶の Y 面電極を用いた(ZXw)0°の共振特性を図 3.50 に示す。カット形状は、 $l = 14.5$  mm、 $w = 3.33$  mm、 $t = 1.55$  mm であった。図の(a)は広帯域の共振 - 反共振プロファイル、(b)は LE-FS 振動( $d_{26}'$ )の幅共振点付近のそれである。このカットでは Y 面電極 (ZXw)0°と同様、 $d_{26}' (= d_{26})$ と  $d_{24}' (= d_{24})$ の 2 種類の LE-FS 振動の長さ共振と幅共振がそれぞれ励振される。図の(a)にあるように、最低周波数の共振ピークが LE-FS 振動( $d_{26}'$ )の長さ共振、600kHz 付近のそれが幅共振である。これより、LE-FS 振動( $d_{26}'$ )の幅共振の直列共振周波数  $f_s (= 607.962$  kHz)と並列共振周波数  $f_p (= 617.417$  kHz)を決定し、 $s_{66}^E = 17.6 \times 10^{-12}$  m<sup>2</sup>/N、 $d_{26} = 10.6$  pC/N、 $k_{26} = 19\%$ 、 $Q_m = 214$  を得た。

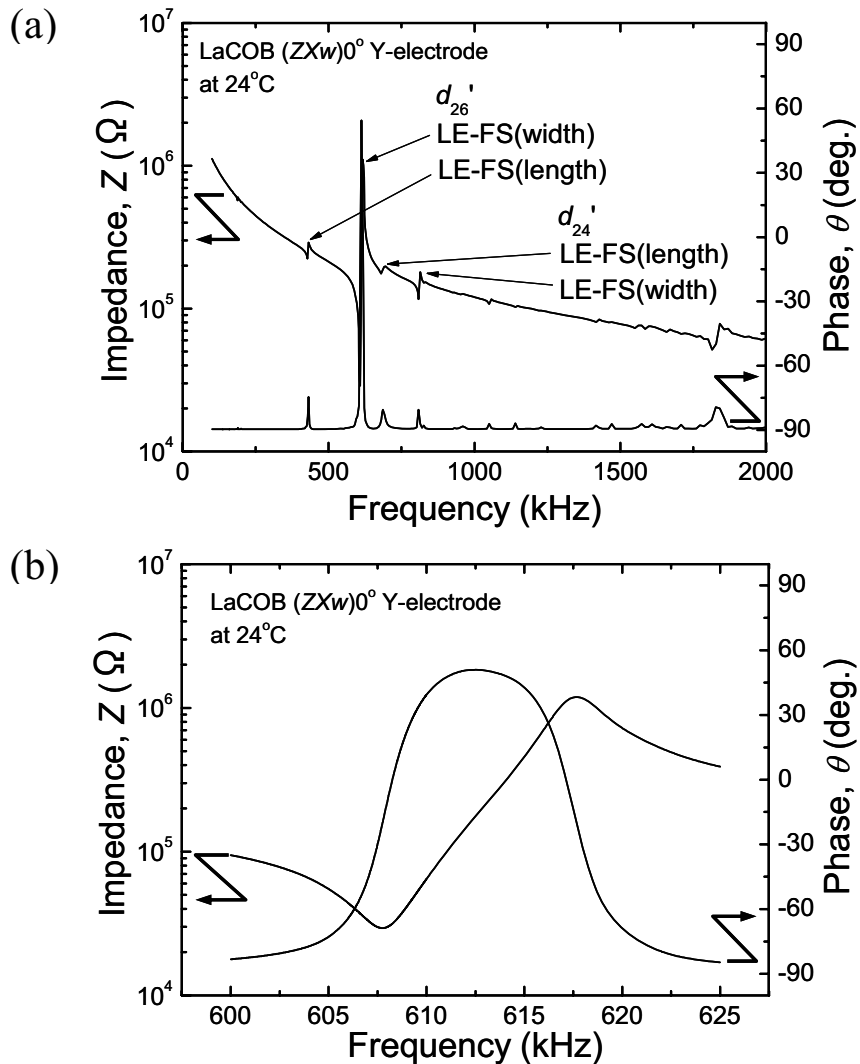


図 3.50 LaCOB 結晶の Y 面電極(ZXw)0° の共振 - 反共振プロファイル (a)広帯域、(b)LE-FS 振動( $d_{26}'$ )の幅共振点付近.

次に、YCOB 結晶の Y 面電極を用いた  $(ZXw)0^\circ$  の共振特性を図 3.51 に示す。カット形状は、 $l = 13.9$  mm、 $w = 3.69$  mm、 $t = 1.80$  mm であった。図の(a)は広帯域の共振 - 反共振プロファイル、(b)は LE-FS 振動( $d_{26}'$ )の幅共振点付近のそれである。LaCOB 結晶の場合と同様、 $d_{26}' (= d_{26})$  と  $d_{24}' (= d_{24})$  の 2 種類の LE-FS 振動の長さ共振と幅共振がそれぞれ励振される。図の(a)にあるように、最低周波数の共振ピークが LE-FS 振動( $d_{26}'$ )の長さ共振、620kHz 付近のそれがその幅共振である。これより、LE-FS 振動( $d_{26}'$ )の幅共振の直列共振周波数  $f_s (= 620.361$  kHz)と並列共振周波数  $f_p (= 626.244$  kHz)を決定し、 $s_{66}^E = 14.6 \times 10^{-12}$  m<sup>2</sup>/N、 $d_{26} = 8.02$  pC/N、 $k_{26} = 15\%$ 、 $Q_m = 260$  を得た。

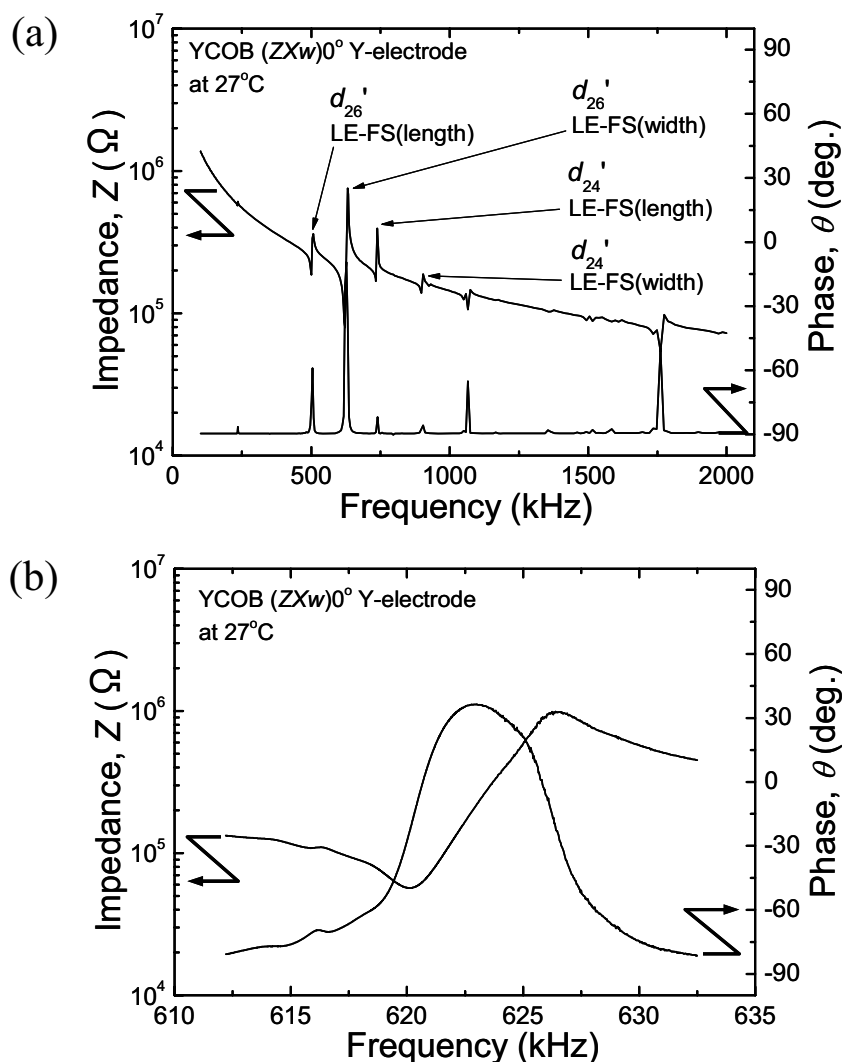


図 3.51 YCOB 結晶の Y 面電極  $(ZXw)0^\circ$  の共振 - 反共振プロファイル (a)広帯域、(b)LE-FS 振動( $d_{26}'$ )の幅共振点付近。

以上、第 2 章で示した側面電極カットを用いて励振される LE-FS 振動により、各結晶のすべりの弾性定数  $s_{44}^E$ 、 $s_{66}^E$  ならびにすべりの圧電定数  $d_{24}$ 、 $d_{26}$  を算出した。GdCOB 結晶については、次に述べる検算による符号の決定ができなかったため、すべりの圧電定数  $d_{24}$ 、 $d_{26}$ 、 $d_{15}$ 、 $d_{35}$  を算出しなかった。圧電定数  $d_{ij}$  ( $j = 1, 2, 3$ ) ならびに  $d_{3j}$  ( $j = 1, 2, 3$ ) の符号、即ち圧電極性をスクイズテストならびに  $d_{33}/d_{31}$  メータの  $d_{31}$  モードにより決定したが、ここで算出した  $d_{24}$  と  $d_{26}$  の符号については、これらがすべりの定数であるため同様に決定することはできない。付録 A.6 に示す算出式からわかるように、 $d_{24}$  と  $d_{26}$  のみならず、すべての圧電定数はその 2 乗として算出される。本研究では、すべりの定数の符号を決定するため、第 2 章の表 2.5 に示した多くの関係式を用いて検算を行い、その結果矛盾のない符号の組み合わせ(符号が確かな上記 6 つの圧電定数の符号が逆転しない)を検討した。但し、 $d_{24}$  のように圧電定数の絶対値が非常に小さい場合には符号が一定にならないときがあったが、上記 6 つの圧電定数の符号に矛盾が生じないように決定した。

算出した材料定数を表 3.14 にまとめる。すべりの弾性定数  $s_{44}^E$ 、 $s_{66}^E$  は、 $s_{ij}^E$  ( $i = j = 1, 2, 3$ ) の 2 倍から 3 倍程度の値であった。これは一般的な圧電結晶の弾性定数でも同様であり、すべりの定数の方が同じ応力に対する歪みが大きいことを意味する。また、すべりの圧電定数  $d_{26}$  は  $d_{24}$  と比べ大きな値を示した。電気機械結合係数は、 $k_{24}$  が 2~3% と小さく、一方  $k_{26}$  は 15~19% の値を示すことがわかった。LaCOB 結晶と YCOB 結晶の圧電歪み定数  $d_{24}$ 、 $d_{26}$  を圧電応力定数  $e_{24}$ 、 $e_{26}$  に変換し、既存の弾性波素子用圧電材料の値とともに表 3.15 に示す。一般に、圧電定数のマトリックス成分に  $e_{24}$  を持つ圧電結晶には高結合のものが多く、特に KN の  $e_{24}$  は  $11.7 \text{ C/m}^2$  と非常に大きい。RCOB 結晶の  $e_{24}$  は、KN はもとより LBO、LN、LT と比べても小さいことがわかった。また、圧電定数のマトリックス成分に  $e_{26}$  を持つ点群は  $1$ 、 $m$ 、 $3$ 、 $32$ 、 $6$ 、 $\bar{6}m2$  であるが、このうち主要圧電結晶の属する点群は  $32$  であり、それには水晶、ランガサイト系単結晶 LGS、LTG、LNG がある。水晶は低結合の材料であり  $e_{26}$  も  $-0.1719 \text{ C/m}^2$  と小さく、ランガサイト系単結晶は  $0.4\sim 0.5 \text{ C/m}^2$  である。これらと比べ RCOB 結晶の  $e_{26}$  は大きいことがわかった。

表 3.14 RCOB 結晶のすべりの弾性定数  $s_{44}^E$ 、 $s_{66}^E$  とすべりの圧電定数  $d_{24}$ 、 $d_{26}$

	LaCOB	GdCOB	YCOB
$s_{44}^E$ [ $\times 10^{-12}$ m <sup>2</sup> /N]	33.8	27.9	35.2
$s_{66}^E$ [ $\times 10^{-12}$ m <sup>2</sup> /N]	17.6	17.8	14.6
$d_{24}$ [pC/N]	0.45	–	–2.61
$k_{24}$ [%]	2.2	–	3.3
$d_{26}$ [pC/N]	10.6	–	8.02
$k_{26}$ [%]	19	–	15

表 3.15 RCOB 結晶の圧電応力定数  $e_{24}$ 、 $e_{26}$  ならびに既存材料とのその比較

	点群	結晶	$e_{24}$ [C/m <sup>2</sup> ]	$e_{26}$ [C/m <sup>2</sup> ]	参考文献
RCOB 結晶	$m$	LaCOB	–0.01	0.60	–
		YCOB	–0.13	0.58	–
代表的 圧電結晶	$mm2$	KN	11.7	–	31)
	$4mm$	LBO	0.472	–	28)
	$3m$	LN	3.76	–	29)
		LT	2.72	–	
	32	水晶	–	–0.1719	27)
		LGS	–	0.405	34)
		LTG	–	0.468	35)
LNG		–	0.44	36)	

### (5) 弾性定数 $s_{12}^E, s_{23}^E, s_{55}^E$ の評価

( $YXw$ )45°ならびに( $ZYw$ )45°の TE-FS 振動と TE-LE 振動を用いて、弾性定数  $s_{12}^E, s_{23}^E, s_{55}^E$  を評価した結果について述べる。第 2 章で示したように  $s_{55}^E$  は両カットの TE-FS 振動から算出可能である。また、 $s_{12}^E$  は( $YXw$ )45°の TE-LE 振動から、 $s_{23}^E$  は( $ZYw$ )45°の TE-LE 振動からそれぞれ算出可能である。

#### ( $YXw$ )45° カット

このカットでは  $d_{3j}'(j = 1\sim 6)$  がすべて存在するため、多くの振動モードが存在する。まず、LaCOB 結晶の( $YXw$ )45°の共振特性を図 3.52 に示す。カット形状は、 $l = 7.31$  mm、 $w = 3.66$  mm、 $t = 0.742$  mm であった。図の(a)は広帯域の共振 - 反共振プロファイル、(b)は TE-LE 振動の共振点付近のそれ、(c)は TE-FS 振動の幅共振点付近のそれである。図の(a)にあるように、最低周波数の共振ピークが TE-LE 振動、450 kHz 付近のそれが TE-FS 振動の幅共振である。TE-LE 振動の直列共振周波数  $f_s$  と並列共振周波数  $f_p$  はそれぞれ 410.189 kHz、410.250 kHz であり、これより  $s_{11}^{E'} = 8.01 \times 10^{-12}$  m<sup>2</sup>/N、 $Q_m = 1418$  を得た。このカットの TE-LE 振動から得られた  $s_{11}^{E'}$  と  $s_{11}^E, s_{22}^E, s_{66}^E$  を用い、 $s_{12}^E = -1.07 \times 10^{-12}$  m<sup>2</sup>/N を得た。また、TE-FS 振動の幅共振の直列共振周波数  $f_s$  と並列共振周波数  $f_p$  はそれぞれ 450.489 kHz、451.145 kHz であり、これより  $s_{66}^{E'} = 26.4 \times 10^{-12}$  m<sup>2</sup>/N、 $Q_m = 1980$  を得た。このカットの TE-FS 振動から得られた  $s_{66}^{E'}$  と  $s_{44}^E$  を用い、 $s_{55}^E = 19.1 \times 10^{-12}$  m<sup>2</sup>/N を得た。

次に、YCOB 結晶の( $YXw$ )45°の共振特性を図 3.53 に示す。カット形状は、 $l = 10.7$  mm、 $w = 5.34$  mm、 $t = 1.32$  mm であった。図の(a)は広帯域の共振 - 反共振プロファイル、(b)は TE-LE 振動の共振点付近のそれ、(c)は TE-FS 振動の幅共振点付近のそれである。LaCOB 結晶の場合と同様、最低周波数の共振ピークが TE-LE 振動、300kHz 付近のそれが TE-FS 振動の幅共振である。TE-LE 振動の直列共振周波数  $f_s$  と並列共振周波数  $f_p$  はそれぞれ 273.146 kHz、273.215 kHz であり、機械的品質係数  $Q_m$  は 1121 であった。さらに、得られた  $s_{11}^{E'} (= 8.01 \times 10^{-12}$  m<sup>2</sup>/N) と  $s_{11}^E, s_{22}^E, s_{66}^E$  を用い  $s_{12}^E$  を算出した結果、 $s_{12}^E = -0.345 \times 10^{-12}$  m<sup>2</sup>/N を得た。また、TE-FS 振動の幅共振の直列共振周波数  $f_s$  と並列共振周波数  $f_p$  はそれぞれ 304.611 kHz、304.854 kHz であり、これより  $s_{66}^{E'} = 28.9 \times 10^{-12}$  m<sup>2</sup>/N、 $Q_m = 1559$  を得た。得られた  $s_{66}^{E'}$  と  $s_{44}^E$  を用いて  $s_{55}^E$  を算出した結果、 $s_{55}^E = 22.7 \times 10^{-12}$  m<sup>2</sup>/N を得た。さらに、YCOB 結晶では圧電定数  $d_{15}$  の評価をこのカットの TE-FS 振動を用いて行った。これより得られた  $d_{36}'(2.31$  pC/N) と  $d_{24}$  を用いて  $d_{15}$  を算出した結果、 $d_{15} = -7.2$  pC/N を得た。ここで、 $d_{15}$  の符号については  $d_{24}$  と  $d_{26}$  の場合と同様に決定した。

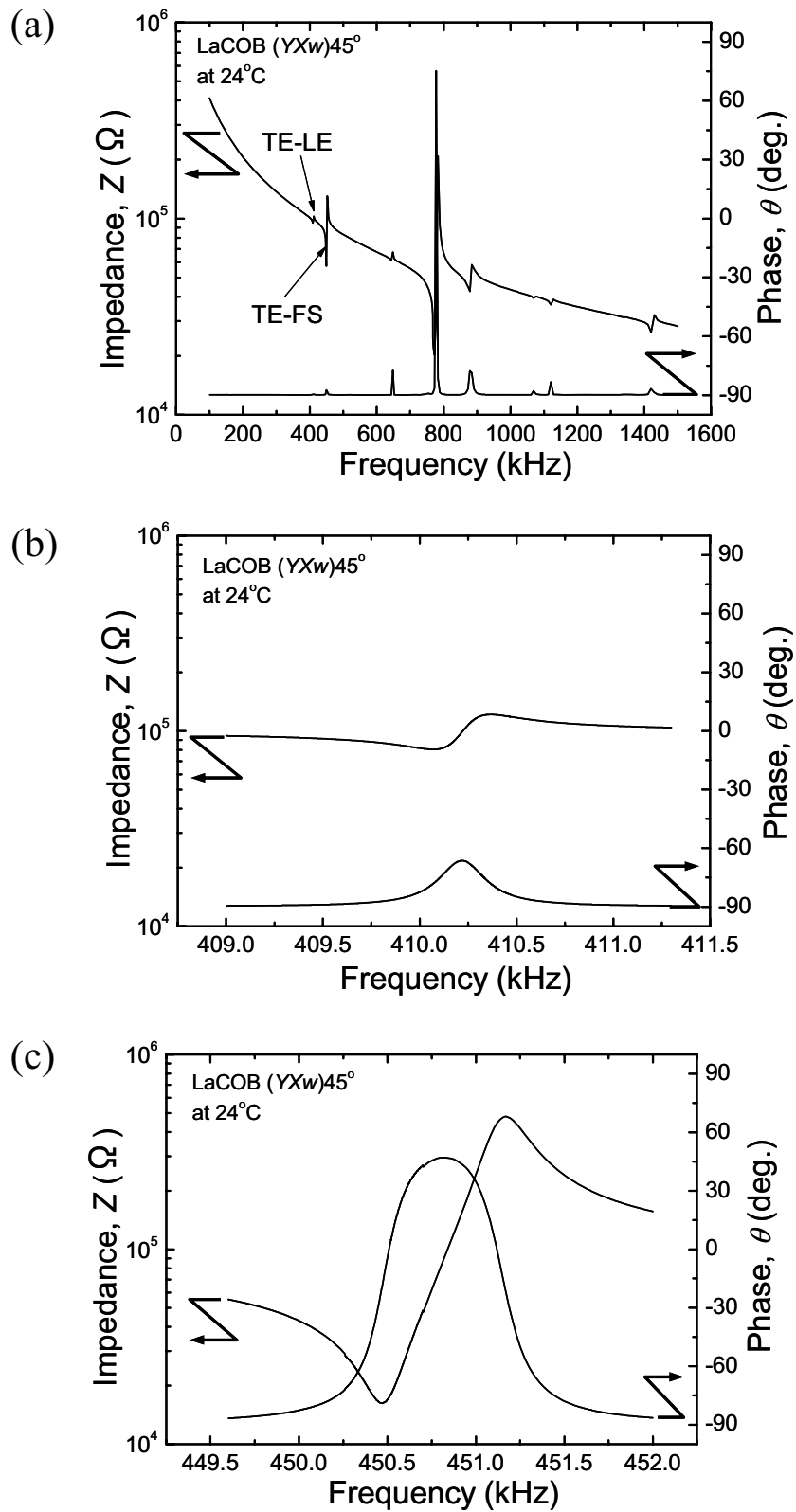


図 3.52 LaCOB 結晶の(YXw)45° の共振 - 反共振プロファイル (a)広帯域, (b)TE-LE 振動の共振点付近, (c)TE-FS 振動の幅共振点付近.

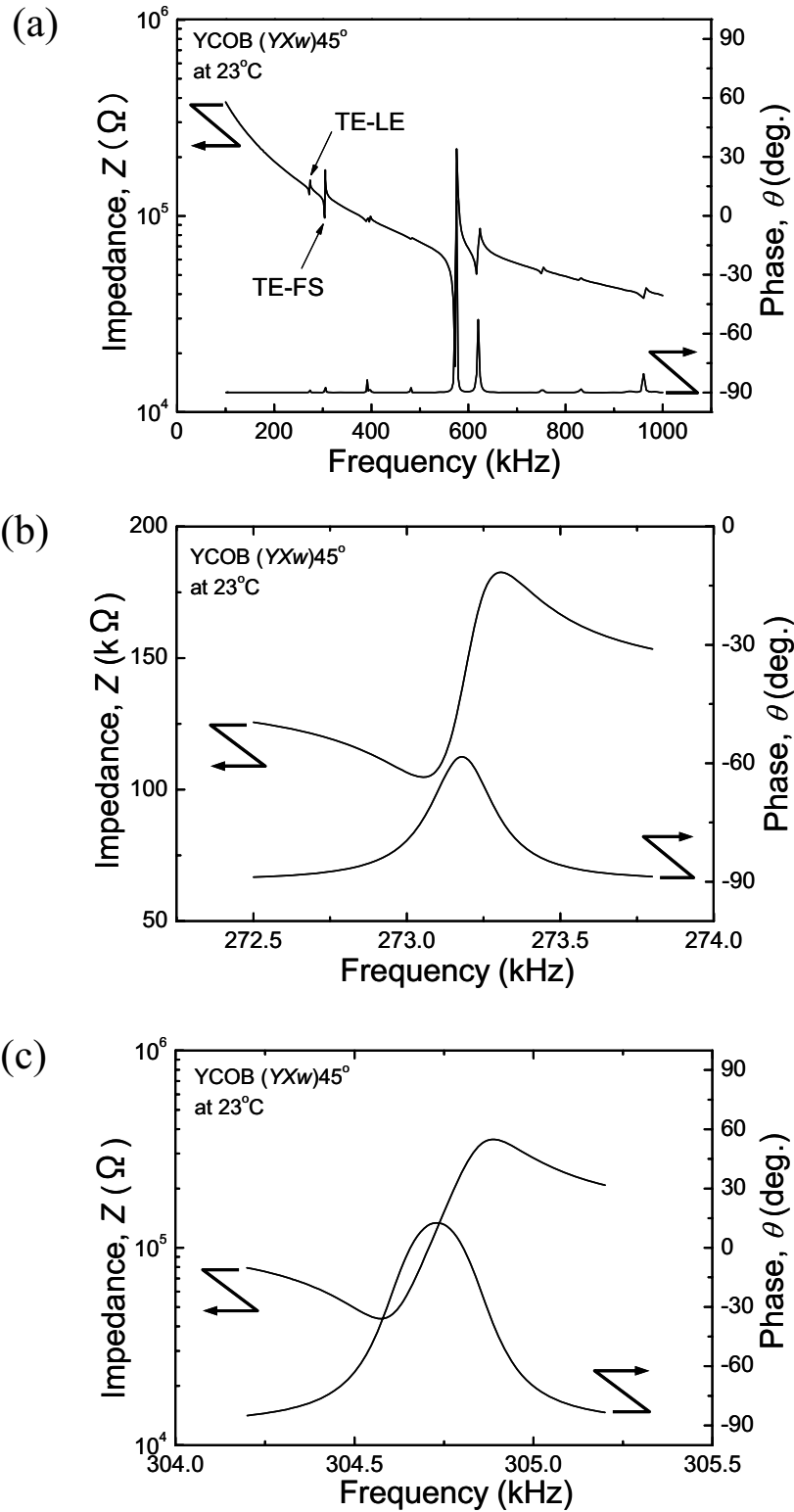


図 3.53 YCOB 結晶の( $YX_w$ ) $45^\circ$ の共振 - 反共振プロファイル (a)広帯域, (b)TE-LE 振動の共振点付近, (c)TE-FS 振動の幅共振点付近.

### (ZYw)45°カット

このカットでも(YXw)45°と同様、 $d_{3j}'(j = 1\sim 6)$ がすべて存在するため、多くの振動モードが存在する。

まず、LaCOB 結晶の(ZYw)45°の共振特性を図 3.54 に示す。カット形状は、 $l = 11.5$  mm、 $w = 5.29$  mm、 $t = 1.40$  mmであった。図の(a)は広帯域の共振 - 反共振プロファイル、(b)は TE-LE 振動の共振点付近のそれ、(c)は TE-FS 振動の幅共振点付近のそれである。 $s_{55}^E$ を評価するための TE-FS 振動については(YXw)45°カットを用いた評価と重複するが、共振プロファイルだけを図の(c)に示す。最低周波数の共振ピークが TE-LE 振動である。TE-LE 振動の直列共振周波数  $f_s$  と並列共振周波数  $f_p$  はそれぞれ 210.475 kHz、210.484 kHz であり、これより  $s_{11}^{E'} = 12.3 \times 10^{-12}$  m<sup>2</sup>/N、 $Q_m = 4531$  を得た。このカットの TE-LE 振動から得られた  $s_{11}^{E'}$  と  $s_{22}^E$ 、 $s_{33}^E$ 、 $s_{44}^E$  を用いて  $s_{23}^E$  を算出した結果、 $s_{23}^E = -1.17 \times 10^{-12}$  m<sup>2</sup>/N を得た。

次に、YCOB 結晶の(ZYw)45°の共振特性を図 3.55 に示す。カット形状は、 $l = 16.9$  mm、 $w = 5.94$  mm、 $t = 1.46$  mmであった。図の(a)は広帯域の共振 - 反共振特性、(b)は TE-LE 振動の共振点付近のそれ、(c)は TE-FS 振動の幅共振点付近のそれである。これまでと同様、最低周波数の共振ピークが TE-LE 振動、170kHz 付近のそれが TE-FS 振動の幅共振である。TE-LE 振動の直列共振周波数  $f_s$  と並列共振周波数  $f_p$  はそれぞれ 146.165 kHz、146.313 kHz であり、これより  $s_{11}^{E'} = 12.4 \times 10^{-12}$  m<sup>2</sup>/N、 $Q_m = 5707$  を得た。このカットの TE-LE 振動から得られた  $s_{11}^{E'}$  と  $s_{22}^E$ 、 $s_{33}^E$ 、 $s_{44}^E$  を用いて  $s_{23}^E$  を算出した結果、 $s_{23}^E = -0.680 \times 10^{-12}$  m<sup>2</sup>/N を得た。(YXw)45°カットと同様、YCOB 結晶では圧電定数  $d_{35}$  の評価を、(ZYw)45°の TE-FS 振動を用いて行った。TE-FS 振動の幅共振の直列共振周波数  $f_s$  と並列共振周波数  $f_p$  はそれぞれ 173.772 kHz、173.861 kHz であった。これより得られた  $d_{36}'(2.89$  pC/N)と  $d_{26}$  を用いて  $d_{35}$  を算出した結果、 $d_{35} = 2.24$  pC/N を得た。ここで、 $d_{35}$  の符号については、 $d_{24}$  と  $d_{26}$  の場合と同様に決定した。



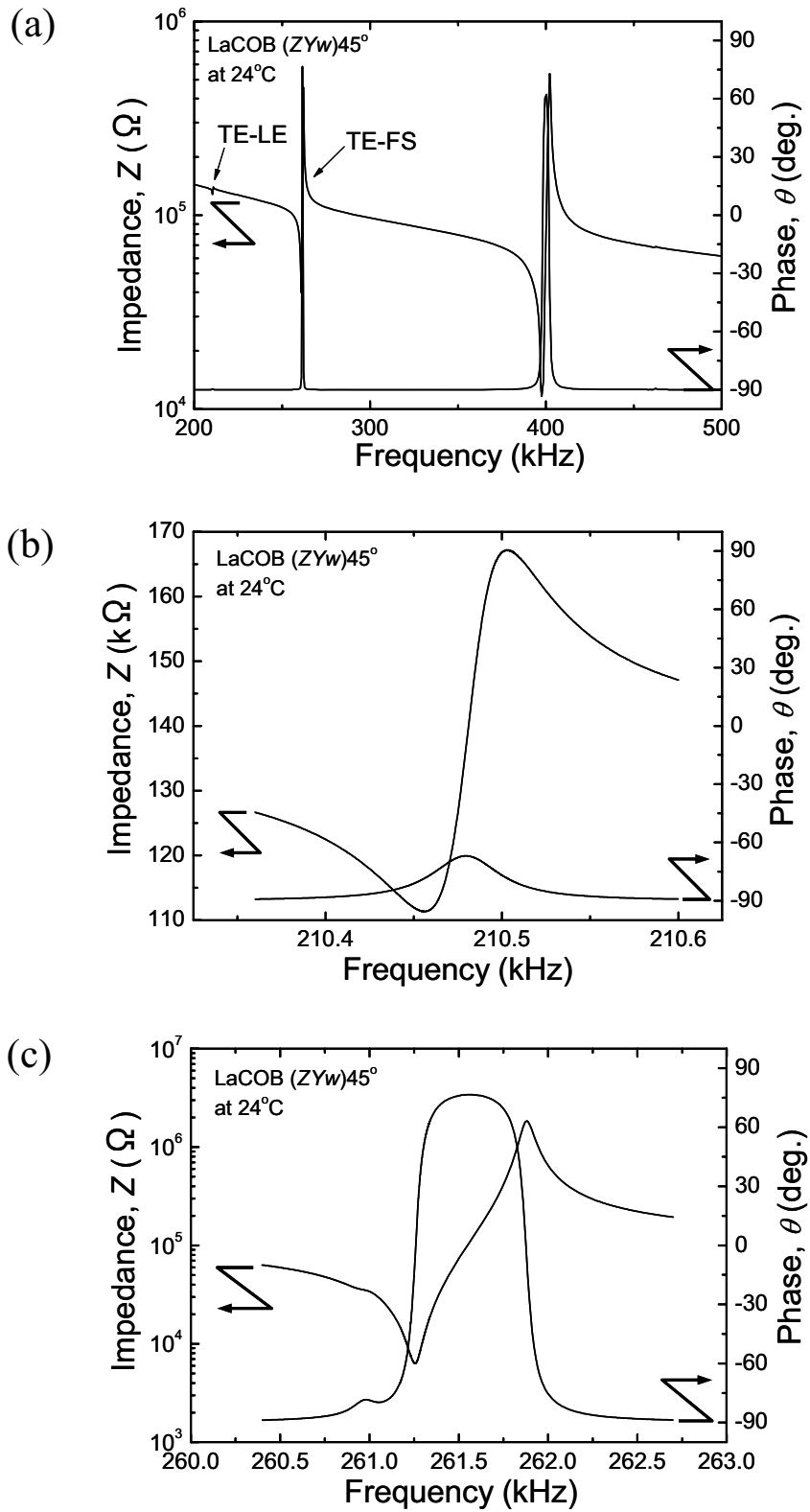


図 3.54 LaCOB 結晶の(ZYw)45° の共振 - 反共振プロファイル (a)広帯域, (b)TE-LE 振動の共振点付近, (c)TE-FS 振動の幅共振点付近.

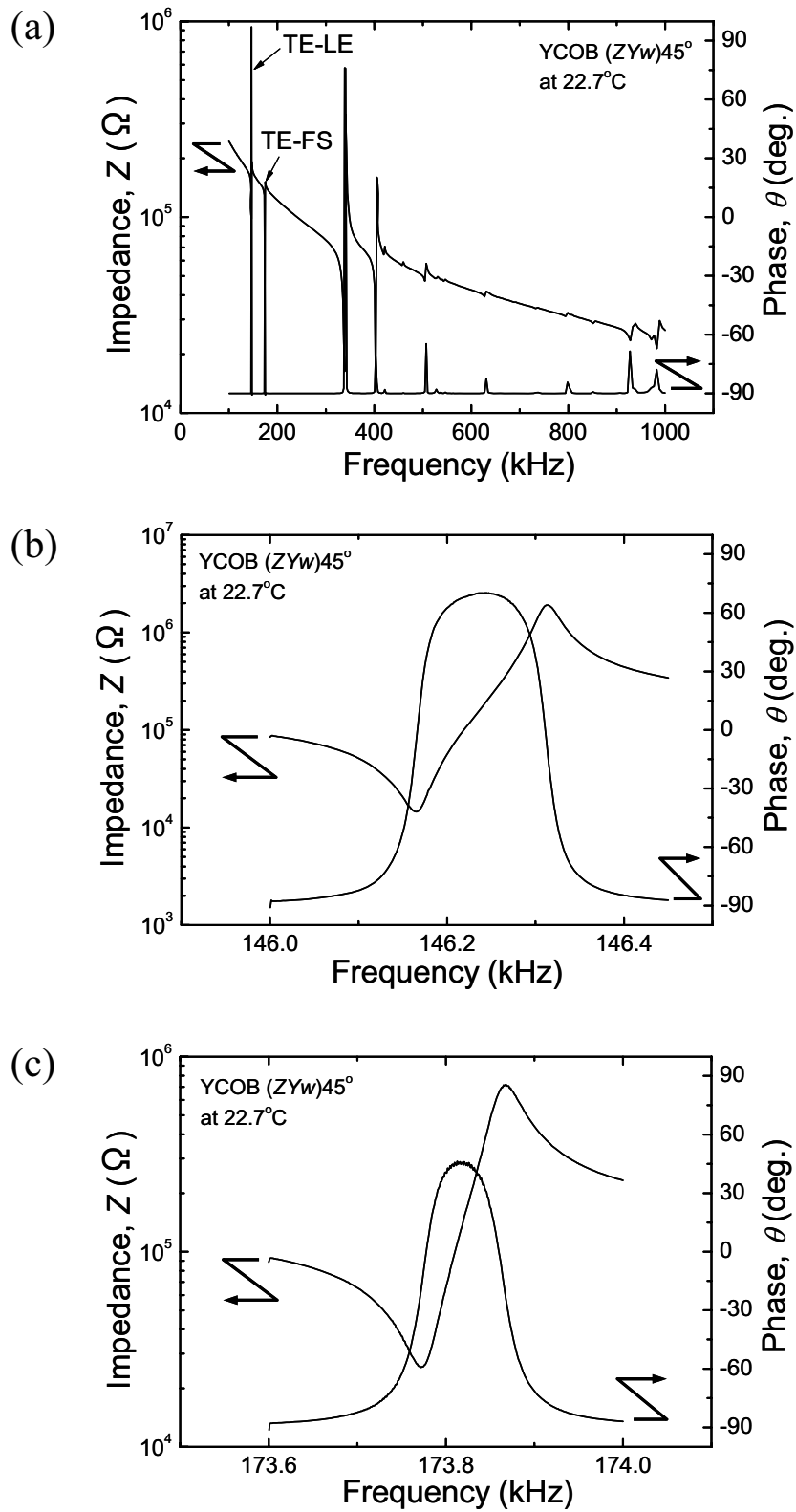


図 3.55 YCOB 結晶の(ZYw)45°の共振 - 反共振プロファイル (a)広帯域, (b)TE-LE 振動の共振点付近, (c)TE-FS 振動の幅共振点付近.

以上、(5)の評価で得られた各結晶の弾性定数  $s_{12}^E$ 、 $s_{23}^E$ 、 $s_{55}^E$  を表 3.16 にまとめる。ここまでで、弾性定数に関してすべての対角マトリックス成分  $s_{ij}^E$  ( $i = j = 1\sim 6$ ) ならびに非対角マトリックス成分  $s_{12}^E$ 、 $s_{23}^E$  を算出した。弾性定数の対角マトリックス成分を、 $R$  サイトを占有する元素のイオン半径に対してプロットしたものを図 3.56 に示す。前述したように、 $s_{ij}^E$  ( $i = j = 1, 2, 3$ ) に関しては、 $R$  サイトのイオン半径が最大の LaCOB 結晶が最も大きな値を示した。これより  $R$  サイトにイオン半径の大きな元素が占有された場合に、より結晶が圧電軸( $X, Y, Z$  軸)の方向で柔らかくなることがわかった。このことは同じ応力に対する圧電軸方向への格子歪みの増大を意味し、 $R$  サイトを占有する元素のイオン半径に対する格子定数の変化からこのことが伺えた。一方、すべりの弾性定数  $s_{ij}^E$  ( $i = j = 4, 5, 6$ ) は明瞭な傾向を示さないことがわかった。また、 $s_{ij}^E$  ( $i = j = 1, 2, 3$ ) の変化の度合いに比べ、 $s_{ij}^E$  ( $i = j = 4, 5, 6$ ) の方が大きいことがわかった。前述したように、すべりの弾性定数  $s_{ij}^E$  ( $i = j = 4, 5, 6$ ) は  $s_{ij}^E$  ( $i = j = 1, 2, 3$ ) の 2 倍から 3 倍程度の値を示し、これが一般的な圧電結晶の弾性定数でも同様であることを確認した。ここで、LaCOB 結晶、YCOB 結晶の弾性コンプライアンスの対角マトリックス成分  $s_{ij}^E$  ( $i = j = 1\sim 6$ ) を弾性ステイフネス  $c_{ij}^E$  ( $i = j = 1\sim 6$ ) に変換し、既存の弾性波素子用圧電材料の値とともに表 3.17 に示す。弾性ステイフネス  $c_{ij}^E$  ( $i = j = 1, 2, 3$ ) は LN や LT と比べると小さいが、LBO や水晶よりは大きいことがわかる。これより RCOB 結晶の圧電軸方向の硬さが、既存材料の中でも中間的なものであることが示唆された。また、弾性ステイフネス  $c_{ij}^E$  ( $i = j = 4, 5, 6$ ) では、 $c_{44}^E$  が既存材料と比べ小さいことから 1 軸周りのすべり方向が既存材料と比べ柔らかいことが示唆された。さらに  $c_{66}^E$  は LN や LT と比べると小さいが、LBO や水晶よりは大きいことがわかった。これより、3 軸周りのすべり方向の硬さが、既存材料の中でも中間的なものであることが示唆された。

表 3.16 RCOB 結晶の弾性定数  $s_{12}^E$ 、 $s_{23}^E$ 、 $s_{55}^E$

	LaCOB	GdCOB	YCOB
$s_{12}^E$ [ $\times 10^{-12}$ m <sup>2</sup> /N]	-1.07	-1.17	-0.345
$s_{23}^E$ [ $\times 10^{-12}$ m <sup>2</sup> /N]	-1.17	-4.62	-0.680
$s_{55}^E$ [ $\times 10^{-12}$ m <sup>2</sup> /N]	19.1	23	22.7

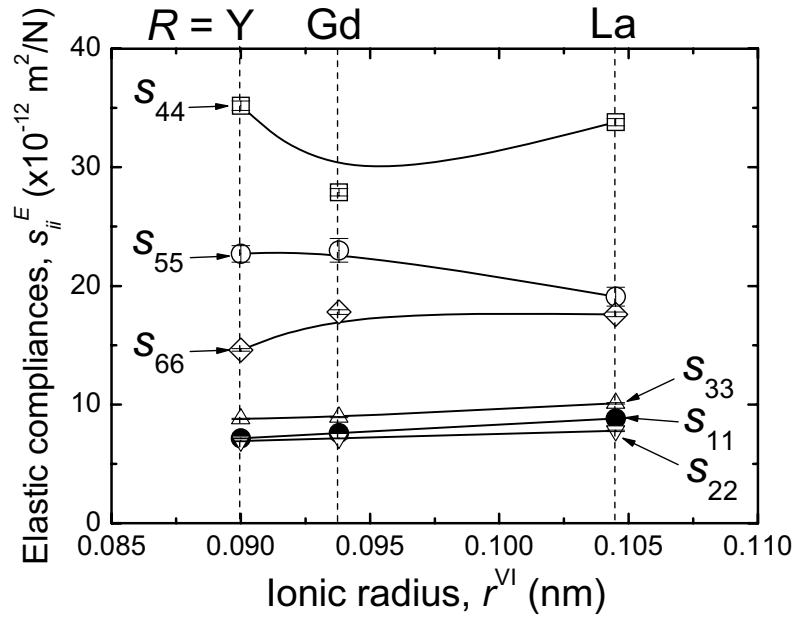


図 3.56 RCOB 結晶の弾性定数の対角マトリックス成分. 横軸は R サイトを占有する元素のイオン半径, 縦軸は弾性定数  $s_{ij}^E (i=j=1\sim6)$ .

表 3.17 RCOB 結晶の弾性定数  $c_{ij}^E (i=j=1\sim6)$  ならびに既存材料とのその比較

弾性定数 $c_{ij}^E$ [ $\times 10^{11}$ N/m <sup>2</sup> ]	LaCOB	YCOB	LBO	水晶	LN	LT
$c_{11}^E$	1.28	1.60	1.350	0.867977	2.030	2.298
$c_{22}^E$	1.47	1.47	—	—	—	—
$c_{33}^E$	1.11	1.32	0.568	1.057816	2.424	2.798
$c_{44}^E$	0.30	0.29	0.585	0.582231	0.595	0.968
$c_{55}^E$	0.58	0.45	—	—	—	—
$c_{66}^E$	0.57	0.70	0.467	0.398817	0.728	0.929
参考文献	—	—	28)	27)	29)	

## (6) (ZXw) $\theta^\circ$ カットの横効果長さ伸び振動を用いての評価

この回転カットの回転角 $\theta$ の組み合わせが2通りあり、これらカットの TE-LE 振動のみを用いて、弾性定数  $s_{13}^E$ 、 $s_{15}^E$ 、 $s_{35}^E$  の算出が可能であることを第2章で示した。その組み合わせとは、評価①： $\theta = 22.5^\circ$ 、 $45^\circ$ 、 $135^\circ$  ならびに評価②： $\theta = \pm 22.5^\circ$ 、 $45^\circ$  である。YCOB 結晶の評価において、評価①の $\theta = 135^\circ$  の TE-LE 振動が励振されなかったことから、評価②を補足的に考案した。これは、点群  $m$  では  $Y$  面に軸角 $\beta$ が存在するため、 $Y$  軸周りの回転であるこのカットの長さ方向で振動モード軸がずれたことによると考えられる。因みに、図 1.2(d)に示すように、RCOB 結晶では各結晶により軸角 $\beta$ が異なる。ここでは、実際に LaCOB 結晶ならびに YCOB 結晶について、これらカットを用い材料定数を評価した結果について述べる。

### 評価①

LaCOB 結晶と GdCOB 結晶の弾性定数  $s_{13}^E$ 、 $s_{15}^E$ 、 $s_{35}^E$  の評価を、(ZXw) $\theta^\circ$  ( $\theta = 22.5, 45, 135$ ) の TE-LE 振動を用いて行った。LaCOB 結晶のこれらのカット形状はそれぞれ、 $\theta = 22.5^\circ$  が  $l = 9.481$  mm、 $w = 2.99$  mm、 $t = 0.791$  mm、 $\theta = 45^\circ$  が  $l = 11.5$  mm、 $w = 7.55$  mm、 $t = 2.04$  mm、 $\theta = 135^\circ$  が  $l = 10.4$  mm、 $w = 2.55$  mm、 $t = 0.773$  mm であった。これらのカットでは  $d_{36}' = 0$  であるため、最低周波数の共振ピークが TE-LE 振動の基本共振である。図 3.57、図 3.58、図 3.59 に、それぞれ LaCOB 結晶 (ZXw) $\theta^\circ$  の  $\theta = 45^\circ$ 、 $135^\circ$ 、 $22.5^\circ$  の共振特性を示す。各図の(a)と(b)はそれぞれ広帯域、共振点付近の共振プロファイルを示している。 $\theta = 45^\circ$  における TE-LE 振動の直列共振周波数  $f_s$  と並列共振周波数  $f_p$  はそれぞれ 258.323 kHz、260.401 kHz であった。これより、 $s_{11}^{E'}(45^\circ) = 8.08 \times 10^{-12}$  m<sup>2</sup>/N、 $d_{31}'(45^\circ) = 3.9$  pC/N、 $Q_m = 8580$  を得た。また、 $\theta = 135^\circ$  における TE-LE 振動の直列共振周波数  $f_s$  と並列共振周波数  $f_p$  はそれぞれ 281.543 kHz、281.963 kHz であった。これより、 $s_{11}^{E'}(135^\circ) = 8.34 \times 10^{-12}$  m<sup>2</sup>/N、 $d_{31}'(135^\circ) = 1.6$  pC/N、 $Q_m = 3502$  を得た。さらに、 $\theta = 22.5^\circ$  における TE-LE 振動の直列共振周波数  $f_s$  と並列共振周波数  $f_p$  はそれぞれ 299.224 kHz、300.123 kHz であり、これより  $s_{11}^{E'}(22.5^\circ) = 8.90 \times 10^{-12}$  m<sup>2</sup>/N、 $d_{31}'(22.5^\circ) = 2.6$  pC/N、 $Q_m = 1672$  を得た。以上、3つのカットから得られた電気機械結合係数  $k_{31}'$ 、機械的品質係数  $Q_m$ 、弾性定数  $s_{11}^{E'}$ 、圧電定数  $d_{31}'$  を表 3.18 にまとめる。 $\theta = 45^\circ$  の TE-LE 振動では、 $k_{31} = 14\%$ 、 $Q_m = 8580$  という共振子として高い性能を示した。表 3.18 に示す 3つの  $s_{11}^{E'}$  を用いて第2章の表 2.5 に示した関係式より、 $s_{13}^E = -2.6 \times 10^{-12}$  m<sup>2</sup>/N、 $s_{15}^E = 1.08 \times 10^{-12}$  m<sup>2</sup>/N、 $s_{35}^E = -1.33 \times 10^{-12}$  m<sup>2</sup>/N を得た。さらに、 $d_{31}'(45^\circ)$  と  $d_{31}'(135^\circ)$  を用いて同じく関係式より、 $d_{15} = -6.9$  pC/N、 $d_{35} = -4.0$  pC/N を得た。

表 3.18 LaCOB 結晶の $(ZXw)\theta^\circ$  ( $\theta = 22.5, 45, 135$ )の TE-LE 振動から得られた諸定数

$(ZXw)\theta^\circ$	$\theta = 22.5$	$\theta = 45$	$\theta = 135$
$k_{31}'$ [%]	8.6	14	6.1
$Q_m$ [-]	1672	8580	3502
$s_{11}^E$ , [ $\times 10^{-12}$ m <sup>2</sup> /N]	8.90	8.08	8.34
$d_{31}'$ [pC/N]	2.6	3.9	1.6

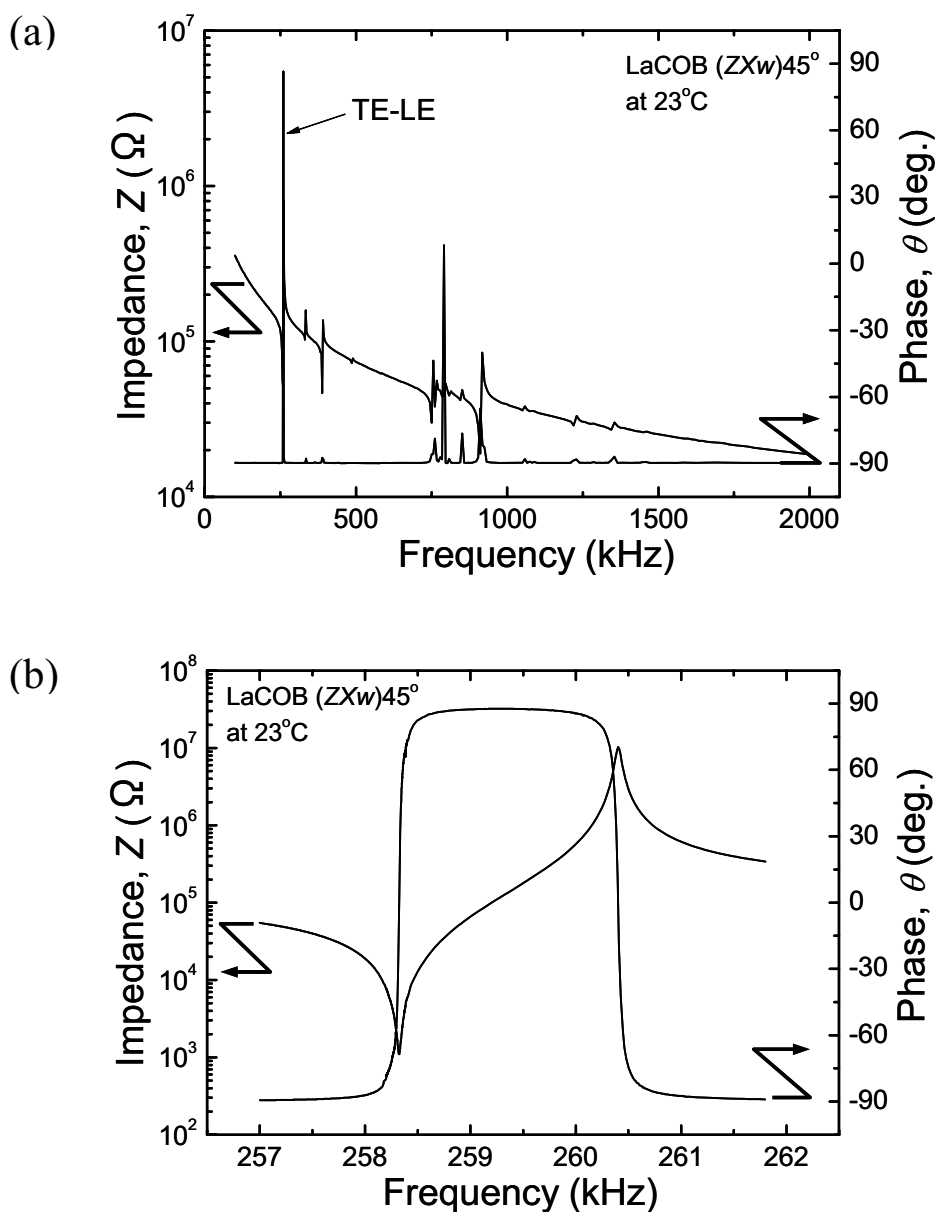


図 3.57 LaCOB 結晶の $(ZXw)45^\circ$  カットの共振 - 反共振プロファイル (a)広帯域, (b)TE-LE 振動の共振点付近.

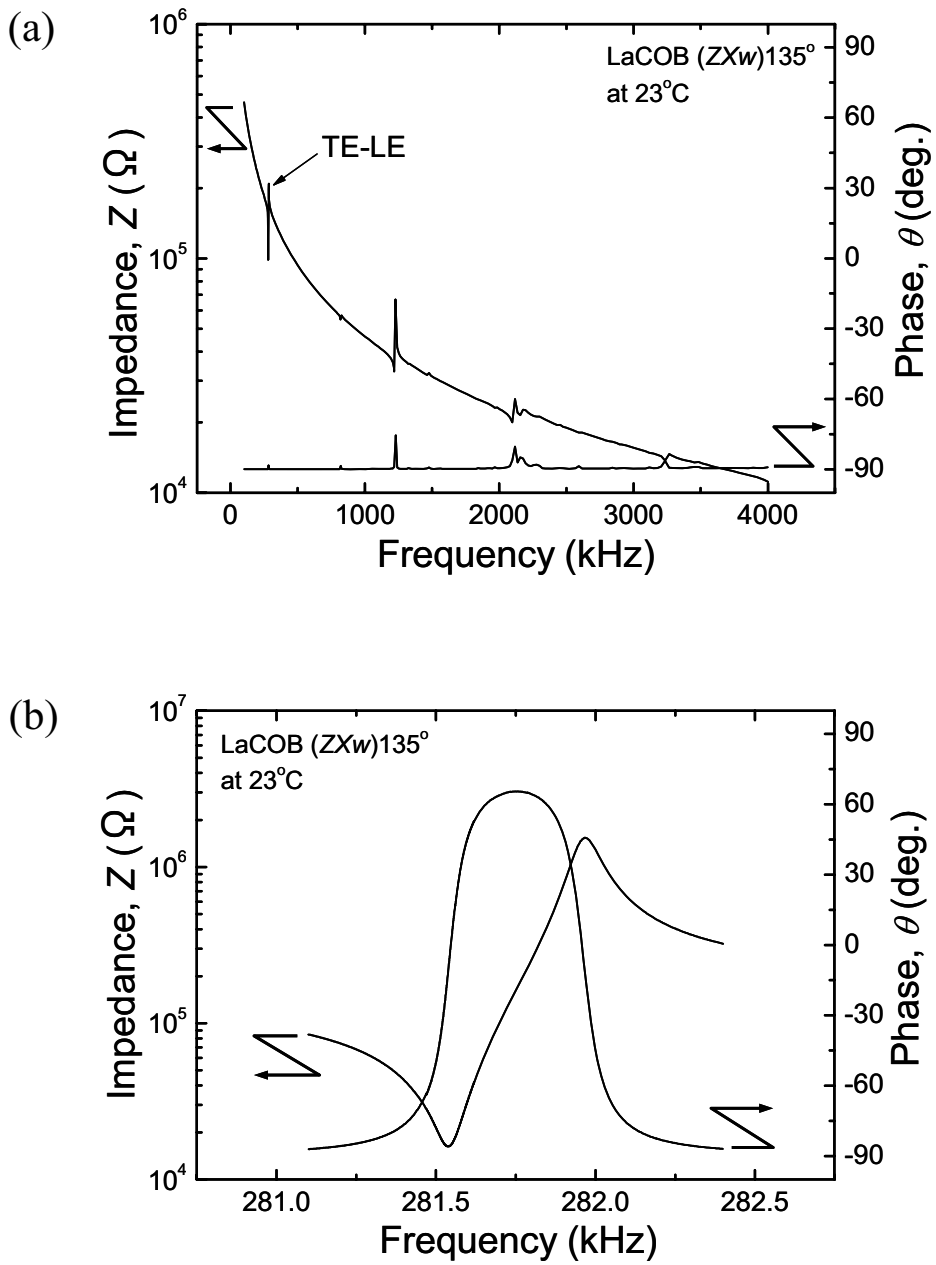


図 3.58 LaCOB 結晶の(ZXw)135° カットの共振 - 反共振プロファイル (a)広帯域, (b)TE-LE 振動の共振点付近.

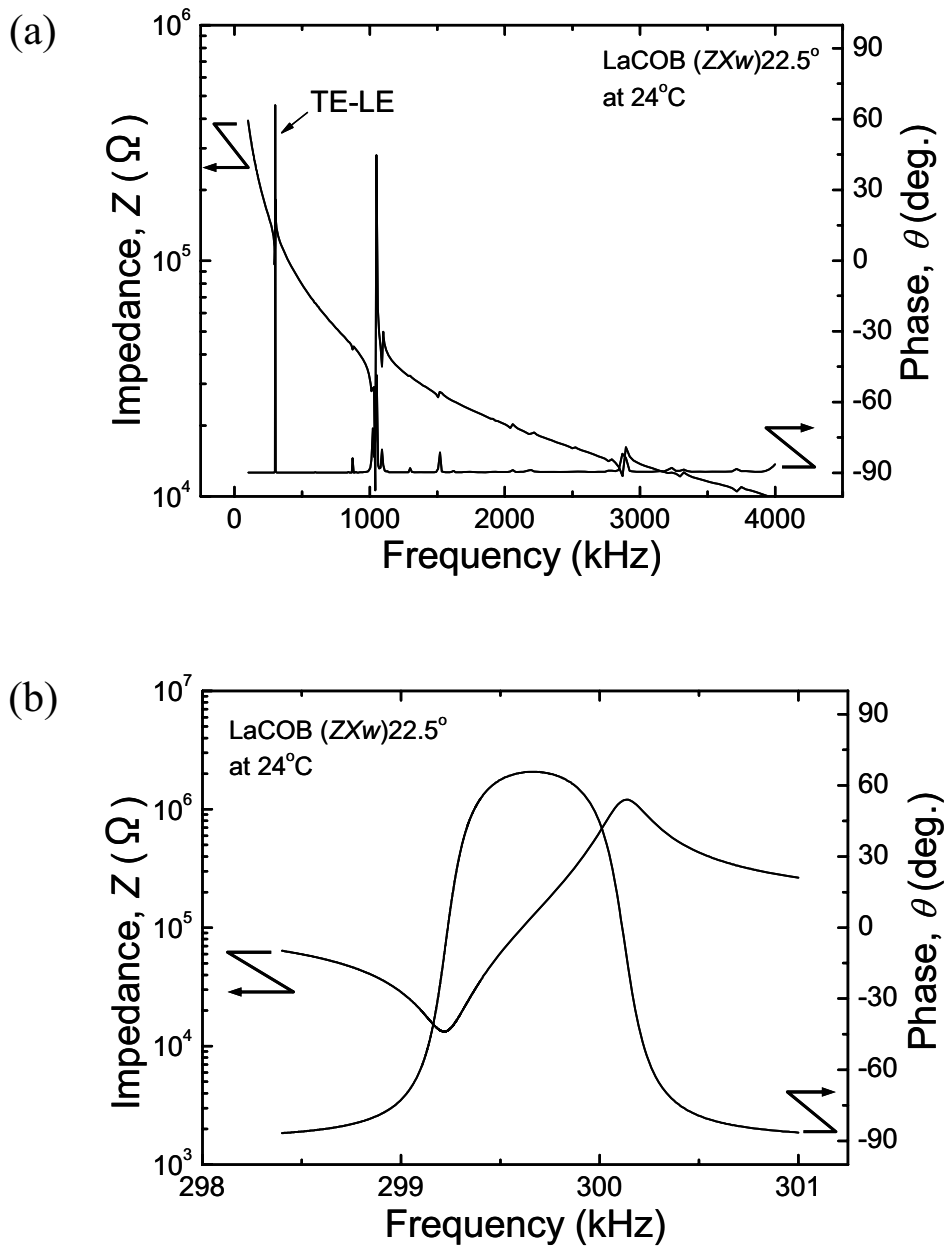


図 3.59 LaCOB 結晶の(ZXw)22.5° カットの共振 - 反共振プロファイル (a)広帯域, (b)TE-LE 振動の共振点付近.



## 評価②

YCOB 結晶の弾性定数  $s_{13}^E$ 、 $s_{15}^E$ 、 $s_{35}^E$  の評価を、 $(ZXw)\theta^\circ$  ( $\theta = \pm 22.5, 45$ ) の TE-LE 振動を用いて行った。YCOB 結晶のこれらのカット形状はそれぞれ、 $\theta = -22.5^\circ$  が  $l = 14.6$  mm、 $w = 6.29$  mm、 $t = 1.47$  mm、 $\theta = 22.5^\circ$  が  $l = 11.7$  mm、 $w = 7.29$  mm、 $t = 1.09$  mm、 $\theta = 45^\circ$  が  $l = 10.9$  mm、 $w = 8.18$  mm、 $t = 1.13$  mm であった。これらのカットでは  $d_{36}' = 0$  であるため、最低周波数の共振ピークが TE-LE 振動の基本共振である。図 3.60、図 3.61、図 3.62 に、それぞれ YCOB 結晶  $(ZXw)\theta^\circ$  の  $\theta = 45^\circ$ 、 $-22.5^\circ$ 、 $22.5^\circ$  の LE-TE 振動の共振特性を示す。各図の(a)と(b)はそれぞれ広帯域、共振点付近の共振プロファイルを示している。 $\theta = 45^\circ$  における TE-LE 振動の直列共振周波数  $f_s$  と並列共振周波数  $f_p$  はそれぞれ 281.091 kHz、281.575 kHz であった。これより、 $s_{11}^{E'}(45^\circ) = 8.06 \times 10^{-12}$  m<sup>2</sup>/N、 $d_{31}'(45^\circ) = 1.6$  pC/N、 $Q_m = 830$  を得た。 $\theta = -22.5^\circ$  における TE-LE 振動の直列共振周波数  $f_s$  と並列共振周波数  $f_p$  はそれぞれ 214.182 kHz、214.759 kHz であり、 $s_{11}^{E'}(-22.5^\circ) = 7.87 \times 10^{-12}$  m<sup>2</sup>/N、 $d_{31}'(-22.5^\circ) = 2.2$  pC/N、 $Q_m = 4038$  を得た。さらに、 $\theta = 22.5^\circ$  における TE-LE 振動の直列共振周波数  $f_s$  と並列共振周波数  $f_p$  はそれぞれ 279.057 kHz、279.719 kHz であり、 $s_{11}^{E'}(22.5^\circ) = 7.22 \times 10^{-12}$  m<sup>2</sup>/N、 $d_{31}'(22.5^\circ) = 1.8$  pC/N、 $Q_m = 1205$  を得た。以上、3つのカットから得られた電気機械結合係数  $k_{31}$ 、機械的品質係数  $Q_m$ 、弾性定数  $s_{11}^{E'}$ 、圧電定数  $d_{31}'$  を表 3.19 にまとめる。これらのカットでは、電気機械結合係数  $k_{31}'$  は 6~8% を示し、機械的品質係数  $Q_m$  は高いものでも  $(ZXw)-22.5^\circ$  の 4000 程度であった。表 3.19 に示す 3つの  $s_{11}^{E'}$  を用いて第 2 章の表 2.5 に示した関係式より、 $s_{13}^E = -2.8 \times 10^{-12}$  m<sup>2</sup>/N、 $s_{15}^E = 0.74 \times 10^{-12}$  m<sup>2</sup>/N、 $s_{35}^E = -1.18 \times 10^{-12}$  m<sup>2</sup>/N を得た。また、YCOB 結晶の  $d_{15}$  と  $d_{35}$  については、 $(YXw)45^\circ$  と  $(ZYw)45^\circ$  を用いた評価により算出した。

表 3.19 YCOB 結晶の  $(ZXw)\theta^\circ$  ( $\theta = \pm 22.5, 45$ ) の TE-LE 振動から得られた諸定数

$(ZXw)\theta^\circ$	$\theta = -22.5$	$\theta = 22.5$	$\theta = 45$
$k_{31}'$ [%]	8.1	7.6	6.5
$Q_m$ [-]	4038	1205	830
$s_{11}^{E'}$ [ $\times 10^{-12}$ m <sup>2</sup> /N]	7.87	7.22	8.06
$d_{31}'$ [pC/N]	2.2	1.8	1.6

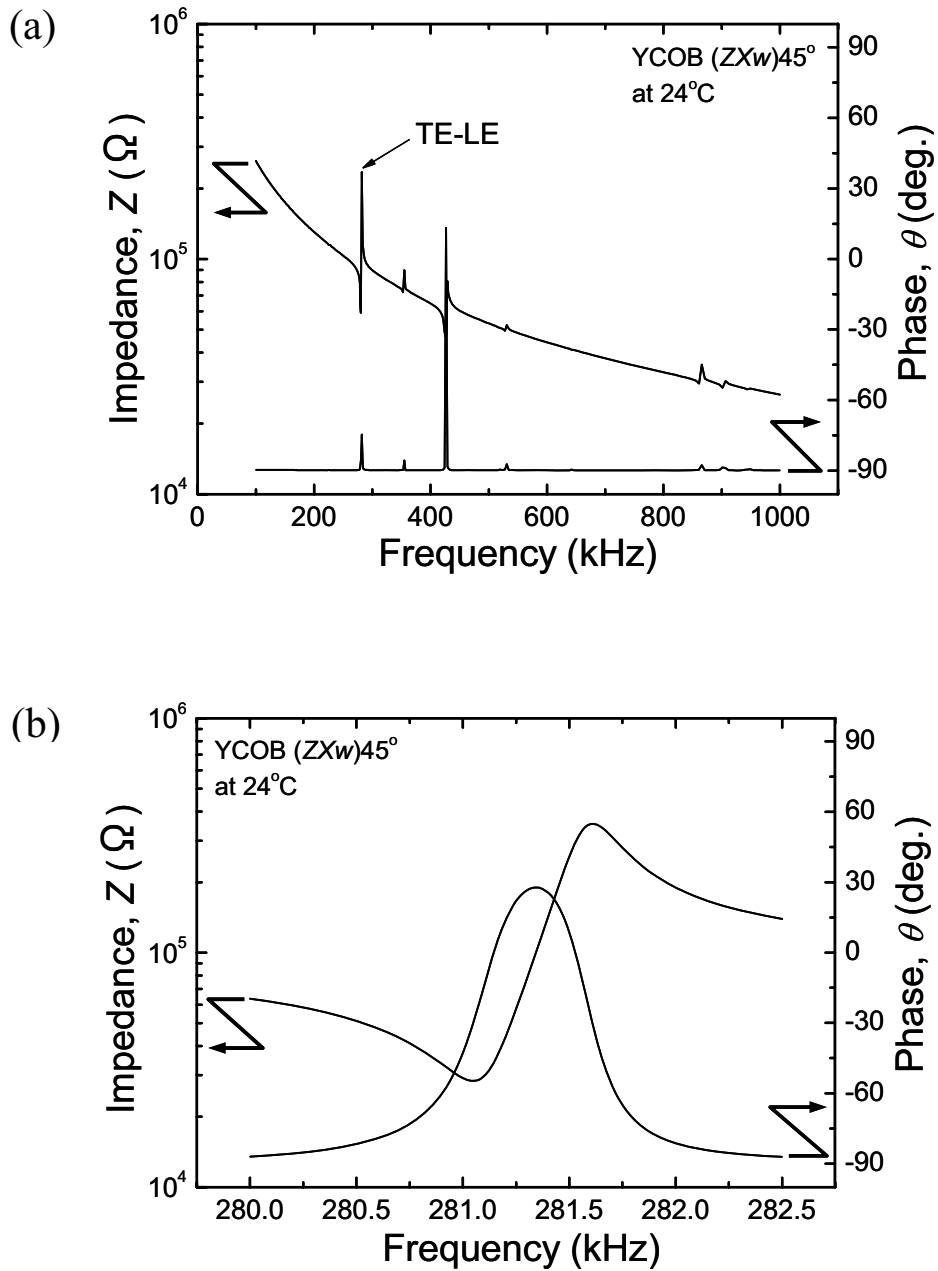


図 3.60 YCOB 結晶の( $ZXw$ ) $45^\circ$  カットの共振 - 反共振プロファイル (a)広帯域, (b)TE-LE 振動の共振点付近.

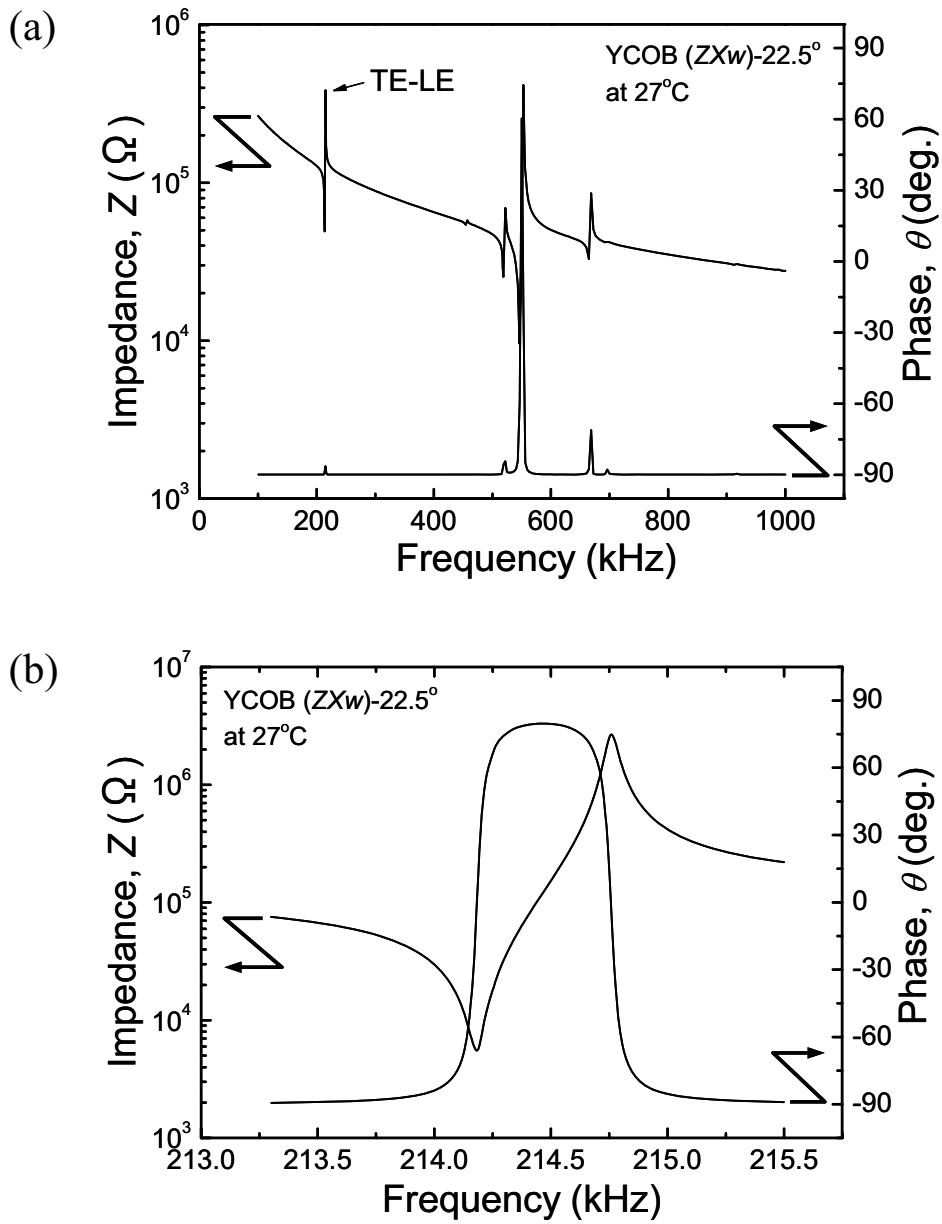


図 3.61 YCOB 結晶の(ZXw)-22.5° カットの共振 - 反共振プロファイル (a)広帯域, (b)TE-LE 振動の共振点付近.

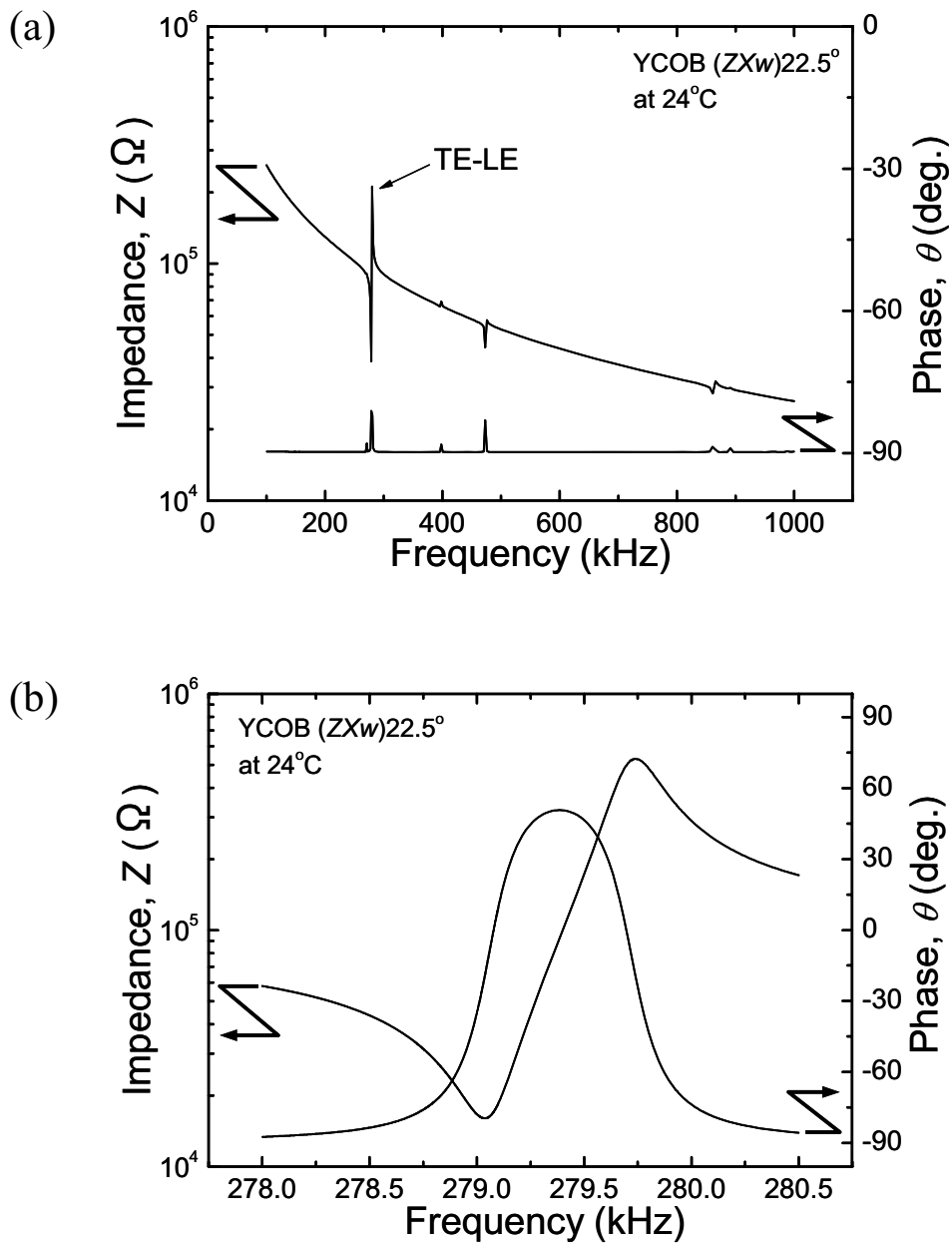


図 3.62 YCOB 結晶の( $ZXw$ ) $22.5^\circ$  カットの共振 - 反共振プロファイル (a)広帯域, (b)TE-LE 振動の共振点付近.

### (7) (YZtw)45°/45°カットを用いての $s_{25}^E$ と $s_{46}^E$ の評価

最後に、残りの弾性定数  $s_{25}^E$  と  $s_{46}^E$  を算出した結果について述べる。用いたカットは 2 回回転カットの (YZtw)45°/45° である。このカットの TE-LE 振動と TE-FS 振動から得られる  $s_{11}^{E'}$  と  $s_{66}^{E'}$  を用い、 $s_{25}^E$  と  $s_{46}^E$  を算出した。

LaCOB 結晶の (YZtw)45°/45° のカット形状は、 $l = 8.00$  mm、 $w = 3.17$  mm、 $t = 1.56$  mm であった。図 3.63 にその共振特性を示す。図の(a) は広帯域の共振 - 反共振プロファイル、(b) は TE-LE 振動の共振点付近のそれ、(c) は TE-FS 振動の幅共振点付近のそれである。最低周波数の共振ピークが TE-LE 振動の基本共振であり、それより高周波数側に TE-FS 振動の長さ共振(370 kHz 付近)、幅共振(540 kHz 付近)の共振ピークが見られた。TE-LE 振動と TE-FS 振動の幅共振から、それぞれ共振周波数を決定した。TE-LE 振動の直列共振周波数  $f_s$  と並列共振周波数  $f_p$  はそれぞれ 318.898 kHz、319.713 kHz であった。これより、 $s_{11}^{E'} = 11.0 \times 10^{-12}$  m<sup>2</sup>/N、 $k_{31}' = 7.9\%$ 、 $Q_m = 2281$  を得た。得られた  $s_{11}^{E'}$  とこれまでに算出した弾性定数を用いて、第 2 章の表 2.5 に示した関係式より  $s_{25}^E = 3.40 \times 10^{-12}$  m<sup>2</sup>/N を得た。また、TE-FS 振動の幅共振の直列共振周波数  $f_s$  と並列共振周波数  $f_p$  はそれぞれ 539.830 kHz、540.970 kHz であった。これより、 $s_{66}^{E'} = 24.3 \times 10^{-12}$  m<sup>2</sup>/N、 $Q_m = 187$  を得た。得られた  $s_{66}^{E'}$  とこれまでに算出した弾性定数を用いて、第 2 章の表 2.5 に示した関係式より  $s_{46}^E = 1.30 \times 10^{-12}$  m<sup>2</sup>/N を得た。

次に、図 3.64 に YCOB 結晶の (YZtw)45°/45° の共振特性を示す。このカット形状は、 $l = 14.4$  mm、 $w = 5.07$  mm、 $t = 1.31$  mm であった。図の(a) は広帯域の共振 - 反共振プロファイル、(b) は TE-LE 振動の共振点付近のそれ、(c) は TE-FS 振動の幅共振点付近のそれである。LaCOB 結晶の場合と同様、最低周波数の共振ピークが TE-LE 振動の基本共振であり、それより高周波数側に TE-FS 振動の長さ共振(220 kHz 付近)、幅共振(370 kHz 付近)の共振ピークが見られた。TE-LE 振動と TE-FS 振動の幅共振から、それぞれ共振周波数を決定した。TE-LE 振動の直列共振周波数  $f_s$  と並列共振周波数  $f_p$  はそれぞれ 187.519 kHz、187.628 kHz であった。これより、 $s_{11}^{E'} = 10.5 \times 10^{-12}$  m<sup>2</sup>/N、 $k_{31}' = 3.8\%$ 、 $Q_m = 1542$  を得た。得られた  $s_{11}^{E'}$  とこれまでに算出した弾性定数を用いて、第 2 章の表 2.5 に示した関係式より  $s_{25}^E = -0.46 \times 10^{-12}$  m<sup>2</sup>/N を得た。また TE-FS 振動の幅共振の直列共振周波数  $f_s$  と並列共振周波数  $f_p$  はそれぞれ 372.771 kHz、374.033 kHz であった。これより、 $s_{66}^{E'} = 21.4 \times 10^{-12}$  m<sup>2</sup>/N、 $Q_m = 216$  を得た。得られた  $s_{66}^{E'}$  とこれまでに算出した弾性定数を用いて、第 2 章の表 2.5 に示した関係式より  $s_{46}^E = 3.45 \times 10^{-12}$  m<sup>2</sup>/N を得た。

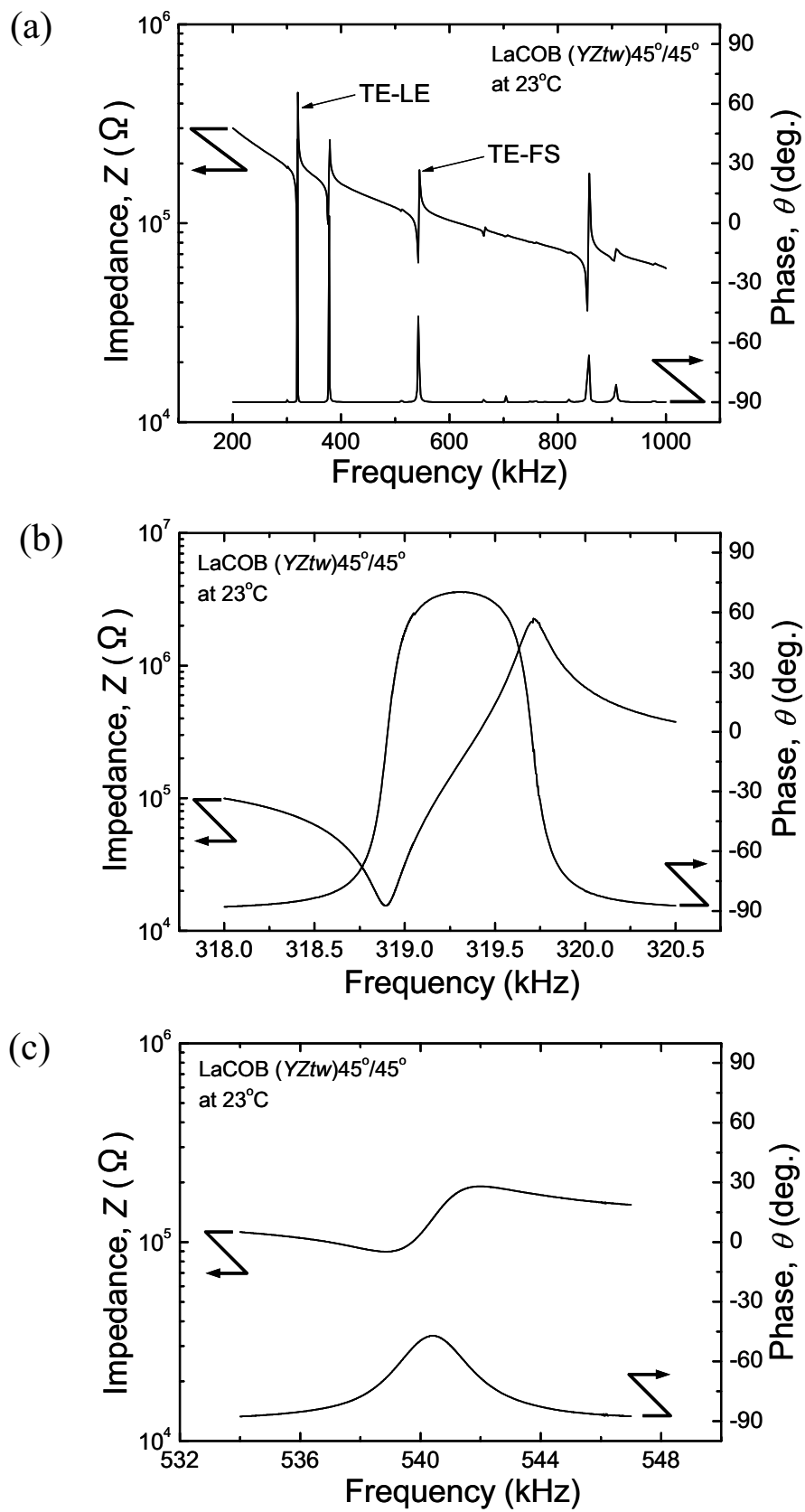


図 3.63 LaCOB 結晶の(YZtw)45°/45°カットの共振 - 反共振プロファイル (a)広帯域, (b)TE-LE 振動の共振点付近, (c)TE-FS 振動の幅共振付近.

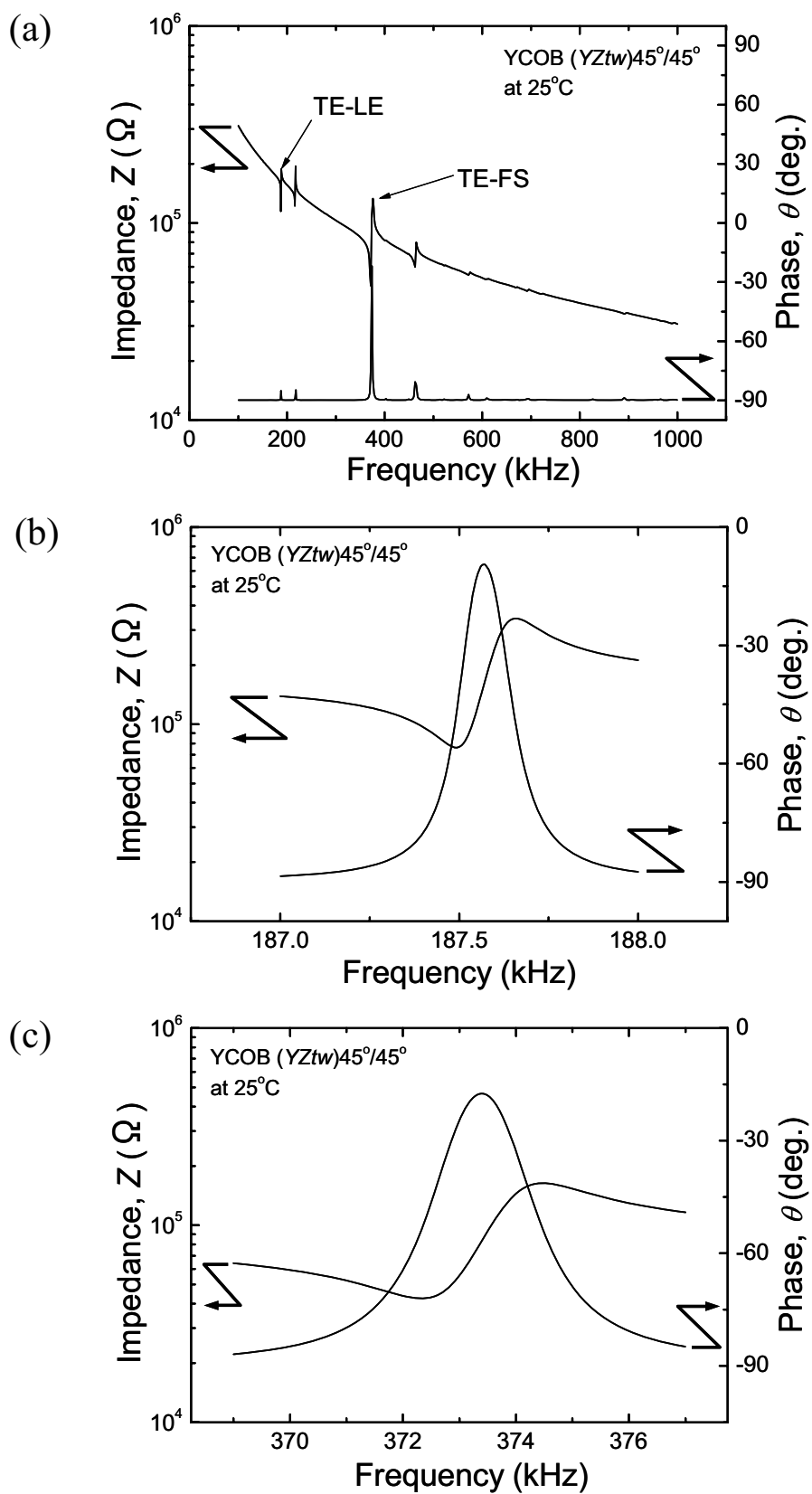


図 3.64 YCOB 結晶の(YZtw)45°/45° カットの共振 - 反共振プロファイル (a)広帯域, (b)TE-LE 振動の共振点付近, (c)TE-FS 振動の幅共振付近.

以上、(1)~(7)において第2章で確立した評価方法を適用し、実際に各結晶の材料定数を評価した。その結果、GdCOB結晶のすべりの圧電定数  $d_{15}$ 、 $d_{35}$ 、 $d_{24}$ 、 $d_{26}$  を除き、LaCOB結晶とYCOB結晶のすべての材料定数を算出した。尚、弾性定数の算出に用いた各結晶の密度  $\rho$  は、LaCOB結晶が  $3.49 \text{ g/cm}^3$ 、GdCOB結晶が  $3.74 \text{ g/cm}^3$ 、YCOB結晶が  $3.27 \text{ g/cm}^3$  である。次項で、材料定数算出の精度について論じ、最後に算出した材料定数をまとめる。

### 3.3.5 材料定数算出の精度

材料定数の算出における主要な誤差要因には、結晶からカットを切り出す際のカット角度の誤差、測定誤差、圧電結晶の振動由来のモード結合誤差が考えられる。以下、これらの誤差について考察し、算出した材料定数の精度について論じる。

#### (1) カット角度の誤差

結晶の加工プロセスの中で、特に材料定数算出の誤差要因として考えられるのは、結晶からカットを切り出す際のカット角度の誤差である。評価に用いたカットは非常に多いため、一部のカットに関してカット角度の誤差を X 線回折実験により調べ、本研究におけるカット切り出しの精度を確認した。ここではその一例として、YCOB結晶の X 面内カット( $XYt$ ) $\theta^\circ$  ( $\theta = 0, 45$ )と Z 面内カット( $ZXt$ ) $\theta^\circ$  ( $\theta = 0, 45$ )のカット切り出し精度を、X 線回折実験により調べた結果について述べる。X 線装置にはマックサイエンス社製の薄膜 X 線回折装置 MXP18VA を用い、使用した X 線は  $\text{CuK}\alpha_1$  線(波長  $\lambda = 1.54056 \text{ \AA}$ )である。

結晶に X 線を照射すると特定の方に回折が生じ、その回折条件は式(3-9)で与えられる。但し、 $d$ は格子面間隔、 $\theta$ は X 線の入射角、 $\lambda$ は X 線の波長である。

$$2d \sin \theta = n\lambda \quad (3-9)$$

格子面間隔  $d$ は面指数 ( $h k l$ ) と格子定数  $a, b, c, \beta$  ( $a$  軸と  $c$  軸のなす角)から算出することができ、単斜晶系ではこれらに式(3-10)が成り立つ。

$$d = \frac{\sin \beta}{\sqrt{\left(\frac{h}{a}\right)^2 + \left(\frac{k \sin \beta}{b}\right)^2 + \left(\frac{l}{c}\right)^2 - \left(\frac{2hl \cos \beta}{ac}\right)}} \quad (3-10)$$

また、格子面間隔  $d_1$ の面( $h_1 k_1 l_1$ )と格子面間隔  $d_2$ の面( $h_2 k_2 l_2$ )との間の角度  $\phi$ は、単斜晶系では式(3-11)で与えられる。



$$\cos \phi = \frac{d_1 d_2}{\sin^2 \beta} \left[ \frac{h_1 h_2}{a^2} + \frac{k_1 k_2 \sin^2 \beta}{b^2} + \frac{l_1 l_2}{c^2} - \frac{(l_1 h_2 + l_2 h_1) \cos \beta}{ac} \right] \quad (3-11)$$

これらの3式を用いて、YCOB結晶の $(XYt)\theta^\circ (\theta = 0, 45)$ と $(ZXt)\theta^\circ (\theta = 0, 45)$ のカット切り出しの精度を調べた。尚、式(3-9)~式(3-11)に関するここでの記述は、文献37)を参照した。格子定数  $a$ 、 $b$ 、 $c$  ならびに軸角 $\beta$ には、結晶構造解析に関する文献32)の報告値( $a = 8.080 \text{ \AA}$ 、 $b = 16.016 \text{ \AA}$ 、 $c = 3.532 \text{ \AA}$ 、 $\beta = 101.24^\circ$ )を引用した。本研究における X 線回折実験の光学系については付録 A.10 を参照されたい。以下、YCOB結晶の $(XYt)\theta^\circ (\theta = 0, 45)$ と $(ZXt)\theta^\circ (\theta = 0, 45)$ のカット切り出しの精度を X 線回折実験により調べた結果を示す。

X面内カット $(XYt)\theta^\circ (\theta = 0, 45)$ では、式(3-11)よりカット面を $\phi = 57.24^\circ$ 傾けることで(101)回折ピークを確認することができる。 $\phi = 57.24^\circ$ における X 面内カット $(XYt)\theta^\circ (\theta = 0, 45)$ の $2\theta$ スキャンプロファイルを図3.65に示す。これより(101)回折ピークを $2\theta = 30.99^\circ$ に確認した。理論的には $2\theta = 30.87^\circ$ において(101)回折が生じることから、X面の切り出し誤差が $\sim 0.1^\circ$ であることがわかった。次に、ディテクタ位置を $2\theta = 30.99^\circ$ (X線入射角 $\theta = 2\theta/2$ )に固定し、カット面を $\phi = 57.24^\circ$ 傾けた状態で、面内の $\omega$ スキャン測定を行った。 $(XYt)0^\circ$ の $\omega$ スキャンプロファイルを図3.66に示す。 $\sim 90^\circ(89.78^\circ)$ と $\sim 270^\circ(269.78^\circ)$ に2本の回折ピーク(両間隔は $180^\circ$ )が観測されたことから、カットの長軸方向が Y 軸、短軸方向が Z 軸であり、板形状が精度よく切り出されていることを確認した。さらに、図3.67に示す $(XYt)45^\circ$ についても同様、 $\sim 135^\circ(134.62^\circ)$ と $\sim 315^\circ(314.62^\circ)$ に2本の回折ピーク(両間隔は $180^\circ$ )が観測されたことから、板形状が精度よく切り出されていることを確認した。

Z面内カット $(ZXt)\theta^\circ (\theta = 0, 45)$ では、式(3-11)よりカット面を $\phi = 16.52^\circ$ 傾けることで(022)回折ピークを確認することができる。 $\phi = 16.52^\circ$ における Z 面内カット $(ZXt)\theta^\circ (\theta = 0, 45)$ の $2\theta$ スキャンプロファイルを図3.68に示す。これより(022)回折ピークを $2\theta = 53.30^\circ$ に確認した。理論的には $2\theta = 53.12^\circ$ において(022)回折が生じることから、Z面の切り出し誤差が $\sim 0.2^\circ$ であることがわかった。次に、ディテクタ位置を $2\theta = 53.30^\circ$ (X線入射角 $\theta = 2\theta/2$ )に固定し、カット面を $\phi = 16.52^\circ$ 傾けた状態で、面内の $\omega$ スキャン測定を行った。 $(ZXt)0^\circ$ の $\omega$ スキャンプロファイルを図3.69に示す。 $\sim 180^\circ(179.68^\circ)$ と $\sim 360^\circ(359.68^\circ)$ に2本の回折ピーク(両間隔は $180^\circ$ )が観測されたことから、カットの長軸方向が X 軸、短軸方向が Y 軸であり、板形状が精度よく切り出されていることを確認した。さらに、図3.70に示す $(ZXt)45^\circ$ についても同様、 $\sim 135^\circ(135.24^\circ)$ と $\sim 315^\circ(315.24^\circ)$ に2本の回折ピーク(両間隔は $180^\circ$ )が観測されたことから、板形状が精度よく切り出されていることを確認した。

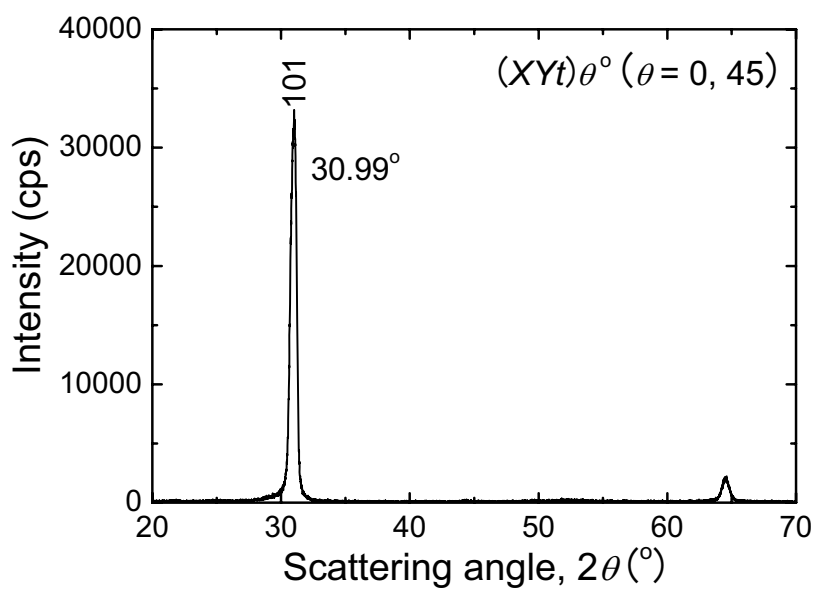


図 3.65  $\phi = 57.24^\circ$ における $(XYt)\theta^\circ (\theta = 0, 45)$ の $2\theta$ スキャンプロファイル.

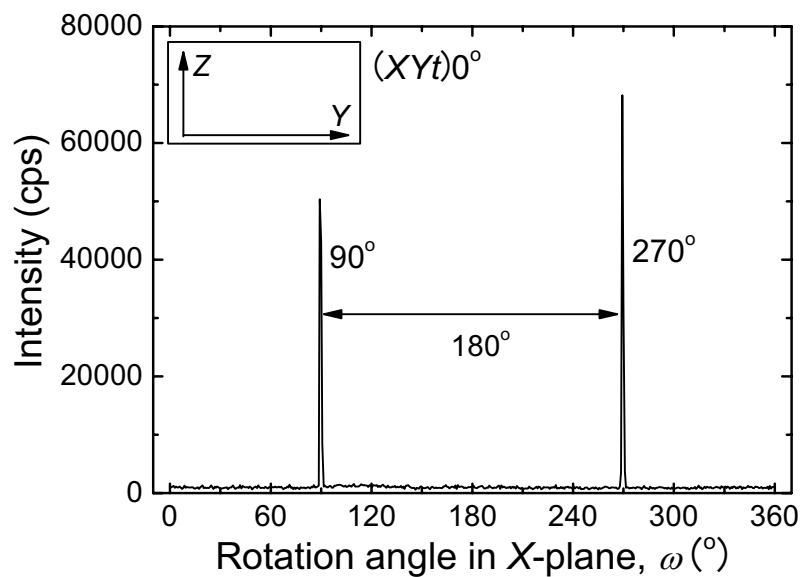


図 3.66  $2\theta = 30.99^\circ$ ,  $\phi = 57.24^\circ$ における $(XYt)0^\circ$ の $\omega$ スキャンプロファイル.

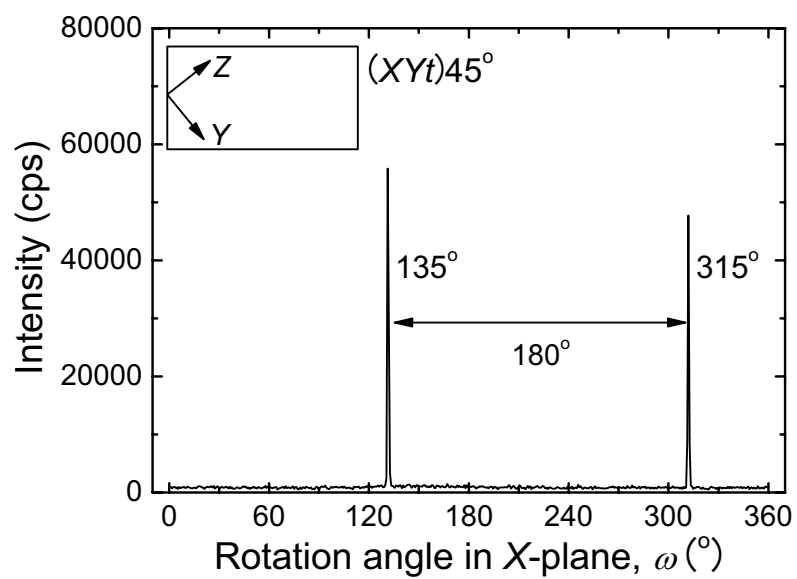


図 3.67  $2\theta = 30.99^{\circ}$ ,  $\phi = 57.24^{\circ}$ における $(XYt)45^{\circ}$ の $\omega$ スキャンプロファイル.

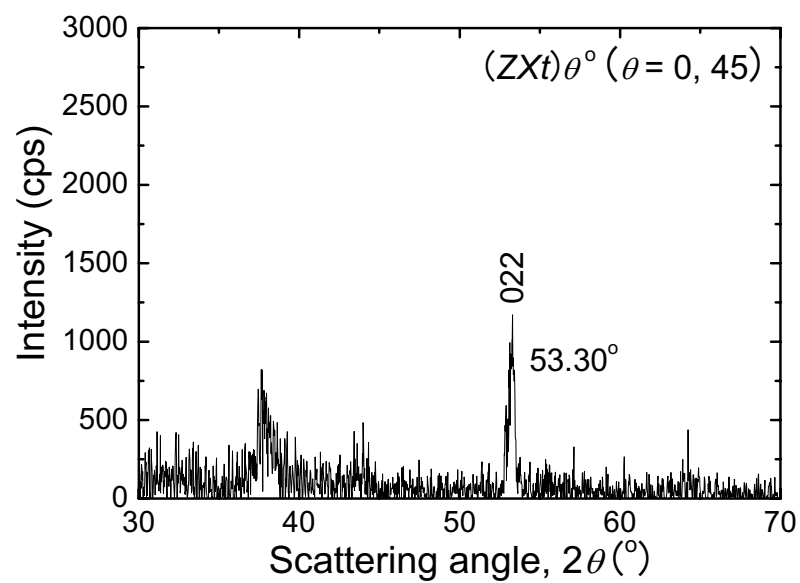


図 3.68  $\phi = 16.52^{\circ}$ における $(ZXt)\theta^{\circ} (\theta = 0, 45)$ の $2\theta$ スキャンプロファイル.

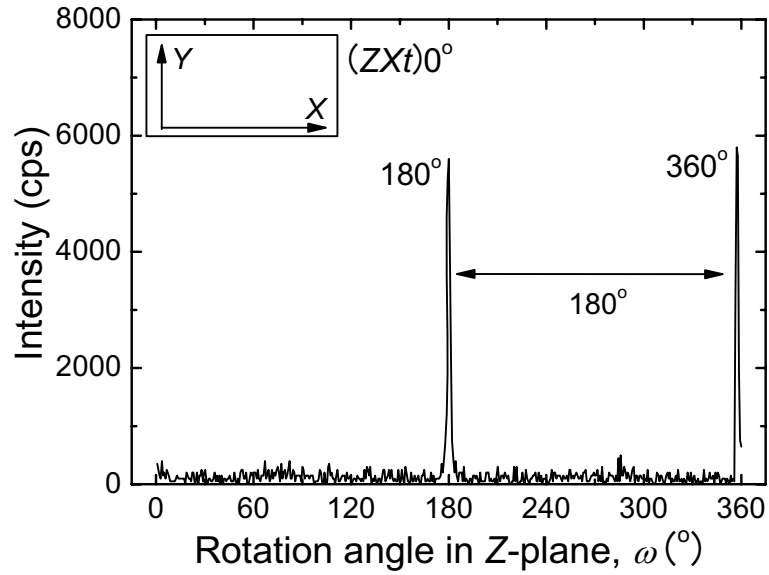


図 3.69  $2\theta = 53.30^\circ$ ,  $\phi = 16.52^\circ$ における $(Z Xt)0^\circ$ の $\omega$ スキャンプロファイル.

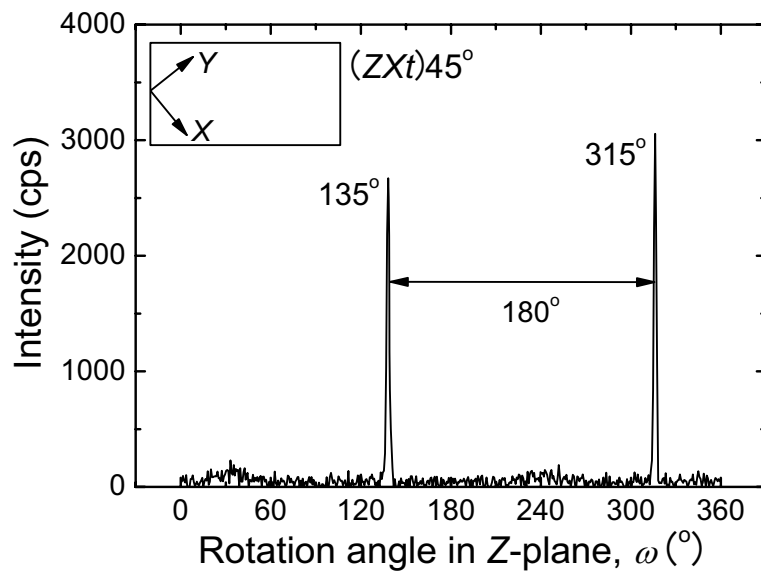


図 3.70  $2\theta = 53.30^\circ$ ,  $\phi = 16.52^\circ$ における $(Z Xt)45^\circ$ の $\omega$ スキャンプロファイル.

以上、YCOB 結晶の  $X$  面内カットと  $Z$  面内カットに関して  $X$  線回折実験を行い、本研究におけるカット面切り出しの誤差が概ね  $\pm 0.2^\circ$  以下であることを示した。また、面内の  $\omega$  スキャンにより板形状が精度よく切り出されていることを確認した。以下、カット面の切り出し誤差が材料定数の算出にもたらす影響について考察する。弾性波動伝搬方位のずれはカット面の切り出し誤差に直接起因し、結果、材料定数の算出式に違いが生じる。ここで、材料定数の算出式がカット面の切り出し誤差にどの程度依存するかを具体的に確認してみる。一例として、 $(XYt)0^\circ$  ならびに  $(XYt)45^\circ$  の切り出しに  $0.2^\circ$  のカット角度誤差があった場合を考える。

$(XYt)0^\circ$  の  $X$  面が正確に切り出されている場合と  $0.2^\circ$  の切り出し誤差を含む場合とでは、表 3.20 に示すように材料定数の算出式が異なる。ここでは、煩雑になるのを避けるため、このカットで用いる横効果長さ伸び(TE-LE)振動、即ち  $d_{31}$ ' に関する算出式のみを示している。 $0.2^\circ$  の切り出し誤差がある場合、算出式には  $\epsilon_{11}^T$ 、 $s_{22}^E$ 、 $d_{12}$  以外の他成分( $\epsilon_{22}^T$ 、 $s_{12}^E$ 、 $s_{66}^E$ 、 $d_{11}$ 、 $d_{26}$ )が存在する。しかし、それら他成分に掛かる係数の桁は  $10^{-5}$  であるため他成分については無視することができる。 $\epsilon_{11}^T$ 、 $s_{22}^E$ 、 $d_{12}$  に掛かる係数は 0.9999 であることから、切り出し誤差の有無によらず  $\epsilon_{11}^T$ 、 $s_{22}^E$ 、 $d_{12}$  に掛かる係数は 1 である。このことは他の基本カットでも同様であり、 $0.2^\circ$  の切り出し誤差が基本カットの TE-LE 振動を用いた材料定数の算出に与え得る誤差は 0.01% と非常に小さいことがわかった。次に、 $(XYt)45^\circ$  について  $(XYt)0^\circ$  の場合と同様に考察する。このカットの  $X$  面切り出し誤差の有無による材料定数算出式の違いを表 3.21 に示す。但し、煩雑になるのを避けるため、ここではこのカットで励振される横効果面内すべり振動、即ち  $d_{36}$ ' に関する算出式のみを示している。 $(XYt)0^\circ$  の場合と同様、 $0.2^\circ$  の切り出し誤差がある場合、算出式には  $\epsilon_{11}^T$ 、 $s_{22}^E$ 、 $s_{23}^E$ 、 $s_{33}^E$ 、 $d_{12}$ 、 $d_{13}$  以外の他成分( $\epsilon_{22}^T$ 、 $s_{12}^E$ 、 $s_{13}^E$ 、 $s_{66}^E$ 、 $d_{11}$ 、 $d_{26}$ )が存在するが、それら他成分に掛かる係数の桁は  $10^{-5}$  であるため他成分については無視することができる。また、 $\epsilon_{11}^T$ 、 $s_{22}^E$ 、 $s_{23}^E$ 、 $s_{33}^E$ 、 $d_{12}$ 、 $d_{13}$  に掛かる係数は 0.9999 あるいは 1.999 であることから、切り出し誤差の有無によりこれら定数成分の係数は変わらず、材料定数の算出に  $0.2^\circ$  の切り出し誤差が与え得る誤差は 0.01% と非常に小さいことがわかった。このことは、このカットで励振される TE-LE 振動を用いた材料定数の算出でも同様であった。

以上、カット面の切り出し誤差が  $0.2^\circ$  である場合に、その誤差が基本カット  $(XYt)0^\circ$  ならびに回転カット  $(XYt)45^\circ$  を用いた材料定数の算出に与え得る誤差は、概ね 0.01% と非常に小さいことを確認した。すべてのカットと振動モードにおける材料定数の算出式に関して共通して言えることは、次のとおりである。切り出し誤差により、材料定数算出式では本来の定数成分ではない他成分が新たに加わるが、 $0.2^\circ$  程度の切り出し誤差であればそれらにかかる係数は非常に小さく、それらの寄与は無視することができる。また、本来の定数成分の係数も、誤差がない場合のものと同程度(相対誤差 $\sim 0.01\%$ )であるため、材料定数算出への誤差も $\sim 0.01\%$ と小さい。

表 3.20 (XY)0° の X面が 0.2° の切り出し誤差を含む場合の材料定数算出式の違い

定数	誤差なし	0.2° の切り出し誤差あり
$\varepsilon_{ij}^T$	$\varepsilon_{33}^T = \varepsilon_{11}^T$	$\varepsilon_{33}^T = 0.9999\varepsilon_{11}^T + 1.219 \times 10^{-5}\varepsilon_{22}^T$
$s_{ij}^E$	$s_{11}^E = s_{22}^E$	$s_{11}^E = 2.437 \times 10^{-5}s_{12}^E + 0.9999s_{22}^E + 1.219 \times 10^{-5}s_{66}^E$
$d_{ij}$	$D_{31}' = d_{12}$	$d_{31}' = 1.219 \times 10^{-5}d_{11} + 0.9999d_{12} - 1.219 \times 10^{-5}d_{26}$

表 3.21 (XY)45° の X面が 0.2° の切り出し誤差を含む場合の材料定数算出式の違い

定数	誤差なし	0.2° の切り出し誤差あり
$\varepsilon_{ij}^T$	$\varepsilon_{33}^T = \varepsilon_{11}^T$	$\varepsilon_{33}^T = 0.9999\varepsilon_{11}^T + 1.219 \times 10^{-5}\varepsilon_{22}^T$
$s_{ij}^E$	$s_{66}^E = s_{22}^E - 2s_{23}^E + s_{33}^E$	$s_{66}^E = 2.437 \times 10^{-5}s_{12}^E - 2.437 \times 10^{-5}s_{13}^E + 0.9999s_{22}^E - 1.999s_{23}^E + s_{33}^E + 1.219 \times 10^{-5}s_{66}^E$
$d_{ij}$	$d_{36}' = -d_{12} + d_{13}$	$d_{36}' = -1.219 \times 10^{-5}d_{11} - 0.9999d_{12} + 0.9999d_{13} + 1.219 \times 10^{-5}d_{26}$

## (2) 測定誤差とモード結合誤差

材料定数を算出するためには、共振周波数測定やカット形状測定などの各種測定を行う。ここでは、それら個々の測定精度を示し、弾性定数、誘電率、圧電定数の測定誤差を材料定数算出式から概算する。本研究では、材料定数の算出に 4 つの振動モードを用いた。各振動モードにおける算出式については付録 A.6 を参照されたい。

横効果長さ伸び(TE-LE)振動ならびに横効果面内すべり(TE-FS)振動から得られる弾性定数  $s_{ij}^E$  ( $i = j = 1, 6$ ) は、カット形状( $l, w$ )、共振周波数( $f_s$ )、結晶密度( $\rho$ )により決定される。これらの測定精度は、カット形状が 0.1%、共振周波数が 0.03%、結晶密度が 0.3% であるため、弾性定数  $s_{ij}^E$  ( $i = j = 1, 6$ ) の測定誤差は式(3-12)による概算で~0.6% である。また、縦効果面内すべり(LE-FS)振動から得られる弾性定数  $s_{66}^E$  は、上記のカット形状( $w$ )、共振周波数( $f_s, f_p$ )、結晶密度( $\rho$ )に加え、電気機械結合係数( $k_{26}'$ )により決定される。式(3-12)に  $k_{26}'$  の相対誤差の項(0.4%)が加わるため、LE-FS 振動から得られる弾性定数  $s_{66}^E$  の測定誤差は概算で~1.0% である。

誘電率  $\varepsilon_{33}^T$  は、板状共振子の自由静電容量( $C^T$ )、カットの厚さ( $t$ )、電極面積( $A$ )によって決定される。これらの測定精度は、静電容量が 0.07%、厚さが 0.1%、電極面積が 0.2% であるため、誘電率  $\varepsilon_{33}^T$  の測定誤差は式(3-13)による概算で~0.4% である。ここでの誘電率  $\varepsilon_{33}^T$  は、誘電率の対角マトリクス成分  $\varepsilon_{ij}^T$  ( $i = j = 1, 2, 3$ ) であり、非対角マトリクス成分  $\varepsilon_{13}^T$  の測定誤差はこれとは異なる。誘電率  $\varepsilon_{13}^T$  は (XY)45° の  $\varepsilon_{33}^T$  と誘電率  $\varepsilon_{ij}^T$  ( $i = j = 1, 3$ ) により決定されるため、式(3-14)による概算で誘電率  $\varepsilon_{13}^T$  の測定誤差は~1.2% である。

TE-LE 振動ならびに TE-FS 振動から得られる圧電定数  $d_{3j}'$  ( $j = 1, 6$ ) は、電気機械結合係数  $k_{3j}'$  ( $j = 1, 6$ )、誘電率  $\varepsilon_{33}^T$ 、弾性定数  $s_{ij}^E$  ( $i = j = 1, 6$ ) により決定される。こ

れら個々の測定誤差は、電気機械結合係数  $k_{3j}'$  ( $j = 1, 6$ ) が  $\sim 0.4\%$ 、誘電率  $\varepsilon_{33}^{T'}$  が  $\sim 0.4\%$ 、弾性定数  $s_{ij}^{E'}$  ( $i = j = 1, 6$ ) が  $\sim 0.6\%$  であるため、圧電定数  $d_{3j}'$  ( $j = 1, 6$ ) の測定誤差は式(3-15)による概算で  $\sim 0.9\%$  である。また、LE-FS 振動から得られる圧電定数  $d_{26}'$  も同様、電気機械結合係数  $k_{26}'$ 、誘電率  $\varepsilon_{22}^{T'}$ 、弾性定数  $s_{66}^{E'}$  により決定される。これら個々の測定誤差は、誘電率  $\varepsilon_{22}^{T'}$  が  $\sim 0.4\%$ 、電気機械結合係数  $k_{26}'$  が  $\sim 0.4\%$ 、弾性定数  $s_{66}^{E'}$  が  $\sim 1.0\%$  であるため、式(3-15)による概算で圧電定数  $d_{26}'$  の測定誤差は  $\sim 1.1\%$  である。

以上、各振動モードから得られる材料定数(測定から直接得られる定数であり、ダッシュが付してあることに注意)の測定誤差をまとめると、TE-LE 振動では弾性定数  $s_{11}^{E'}$  が  $\sim 0.6\%$ 、誘電率  $\varepsilon_{33}^{T'}$  が  $\sim 0.4\%$ 、圧電定数  $d_{31}'$  が  $\sim 0.9\%$ 、TE-FS 振動では弾性定数  $s_{66}^{E'}$  が  $\sim 0.6\%$ 、誘電率  $\varepsilon_{33}^{T'}$  が  $\sim 0.4\%$ 、圧電定数  $d_{36}'$  が  $\sim 0.9\%$  である。また、LE-FS 振動では弾性定数  $s_{66}^{E'}$  が  $\sim 1.0\%$ 、誘電率  $\varepsilon_{22}^{T'}$  が  $\sim 0.4\%$ 、圧電定数  $d_{26}'$  が  $\sim 1.1\%$  である。縦効果厚み伸び(LE-TE)振動では電束密度低下の問題から  $d_{33}$  メータを用いたが、この精度は  $\pm 0.1$  pC/N である。ここに示した材料定数の測定誤差は、各種測定の精度を考慮し算出式から概算した値であるが、実測値が実際にどの程度の誤差を含むかを検討する必要がある。ここで一例として、GdCOB 結晶の弾性定数  $s_{11}^{E'}$  (TE-LE 振動)ならびに  $s_{66}^{E'}$  (TE-FS 振動)の実測値と計算値を、その差から算出した誤差とともに表 3.22 に示す。尚、計算値はヤング率から算出した値である。その結果、GdCOB 結晶では  $s_{11}^{E'}$  の誤差が最大  $\sim 1\%$ 、 $s_{66}^{E'}$  の誤差が最大  $\sim 6\%$  であることがわかった。また、LaCOB 結晶ではそれぞれ最大  $\sim 1\%$  と  $\sim 4\%$ 、YCOB 結晶ではそれぞれ最大  $\sim 1\%$  と  $\sim 3\%$  であることがわかった。これより、カット角度による誤差と測定誤差以外に、圧電振動由来のモード結合誤差が考えられる。

$$\left| \frac{\Delta s_{ij}^{E'}}{s_{ij}^{E'}} \right| = 2 \left| \frac{\Delta l}{l} \right| + 2 \left| \frac{\Delta f_s}{f_s} \right| + \left| \frac{\Delta \rho}{\rho} \right| \quad (3-12)$$

$$\left| \frac{\Delta \varepsilon_{ij}^{T'}}{\varepsilon_{ij}^{T'}} \right| = \left| \frac{\Delta C^T}{C^T} \right| + \left| \frac{\Delta t}{t} \right| + \left| \frac{\Delta A}{A} \right| \quad (3-13)$$

$$\left| \frac{\Delta \varepsilon_{13}^{T'}}{\varepsilon_{13}^{T'}} \right| = \left| \frac{\Delta \varepsilon_{11}^{T'}}{\varepsilon_{11}^{T'}} \right| + \left| \frac{\Delta \varepsilon_{33}^{T'}}{\varepsilon_{33}^{T'}} \right| + \left| \frac{\Delta \varepsilon_{33}^{T'}}{\varepsilon_{33}^{T'}} \right| \quad (3-14)$$

$$\left| \frac{\Delta d_{ij}'}{d_{ij}'} \right| = \left| \frac{\Delta k_{ij}'}{k_{ij}'} \right| + \frac{1}{2} \left| \frac{\Delta \varepsilon_{ij}^{T'}}{\varepsilon_{ij}^{T'}} \right| + \frac{1}{2} \left| \frac{\Delta s_{ij}^{E'}}{s_{ij}^{E'}} \right| \quad (3-15)$$

表 3.22 弾性定数  $s_{11}^E$ 、 $s_{66}^E$  における計算値と実測値の誤差の一例

弾性定数 $s_{11}^E$ ( $\times 10^{-12}$ m <sup>2</sup> /N)				弾性定数 $s_{66}^E$ ( $\times 10^{-12}$ m <sup>2</sup> /N)			
カット	計算	実測	誤差(%)	カット	計算	実測	誤差(%)
(XYt)45°	8.685	8.690	0.06	(YZtw)45°/45°	22.76	22.78	0.05
(XYt)90°	8.930	8.938	0.09	(ZXt)45°	17.09	17.11	0.10
(ZXt)0°	7.600	7.605	0.06	(YXw)45°	25.35	26.75	5.52
(ZXt)45°	7.552	7.562	0.12	(ZYw)45°	20.30	20.31	0.05
(YXw)45°	7.552	7.591	0.51				
(ZYw)45°	8.685	8.771	0.99				

ここまでは、 $s_{11}^E$  や  $s_{66}^E$  などの直接得られる材料定数(右肩にダッシュが付している)の測定誤差について述べた。しかし、実際の材料定数の多くは関係式を用いて算出されるため、算出における誤差を考える必要がある。これまでの測定精度に関する議論を踏まえ、以下、材料定数の算出における誤差について述べる。

弾性定数の算出に必要な共振周波数、カット形状、結晶密度の測定精度は前述したとおりである。弾性定数  $s_{ij}^E$  ( $i=j=1, 2, 3$ ) は、基本カットの TE-LE 振動から得られる  $s_{11}^E$  より直接算出されるため、算出誤差は~0.6%である。一方、すべりの弾性定数  $s_{44}^E$  と  $s_{66}^E$  はモード結合することなく LE-FS 振動から直接  $s_{66}^E$  として得られるが、その算出は共振周波数、カット形状、結晶密度に加え電気機械結合係数  $k_{26}'$  によりなされるため、算出誤差は~1.0%である。すべりの弾性定数  $s_{55}^E$  は(YXw)45° の TE-FS 振動から得られる  $s_{66}^E$  と  $s_{44}^E$  より算出される。前述したように、この  $s_{66}^E$  はモード結合に由来する誤差として、LaCOB 結晶では~4.0%、GdCOB 結晶では~6.0%、YCOB 結晶では~3.0%の誤差を含むため、すべりの弾性定数  $s_{55}^E$  の算出誤差は LaCOB 結晶では~4.0%、GdCOB 結晶では~6.0%、YCOB 結晶では~3.0%である。ここまでは、弾性定数マトリックスの対角成分における算出誤差である。弾性定数マトリックスの非対角成分は TE-LE 振動と TE-FS 振動より得られる  $s_{11}^E$  と  $s_{66}^E$  を用いて四則演算の加減により算出される。その非対角成分  $s_{ij}^E$  ( $i \neq j$ ) のうち、 $s_{12}^E$  と  $s_{23}^E$  は 3.0~6.0%のモード結合誤差を含んだ  $s_{55}^E$  を用いることなく求められるため、その算出誤差は~1.0%である。しかし、他の非対角成分については算出過程で  $s_{55}^E$  を用いるため、算出誤差は LaCOB 結晶では~4.0%、GdCOB 結晶では~6.0%、YCOB 結晶では~3.0%である。

誘電率は、式(3-7)に示すように静電容量、カット形状、真空の誘電率により決定される。静電容量ならびにカット形状の測定精度は前述したとおりであり、誘電率  $\epsilon_{ij}^E$  ( $i=j=1, 2, 3$ ) の算出誤差は~0.4%である。但し、誘電率の非対角マトリックス成分  $\epsilon_{13}^T$  は(XYt)45° の  $\epsilon_{33}^T$  と  $\epsilon_{11}^T$ 、 $\epsilon_{33}^T$  との四則演算の加減により算出されるため、その算出誤差は~1.2%である。

圧電定数は、誘電率、弾性定数、電気機械結合係数により決定される。これはすべての振動モードで共通であるが、誘電率、弾性定数、電気機械結合係数などの



個々の測定精度は振動モードにより異なる。圧電定数  $d_{11}$ 、 $d_{33}$  については棒柱試料の LE-TE 振動により求め、測定誤差は  $\pm 0.1$  pC/N である。圧電定数  $d_{12}$ 、 $d_{13}$ 、 $d_{31}$ 、 $d_{32}$  は基本カットの TE-LE 振動から得られる誘電率  $\epsilon_{33}^T$ 、弾性定数  $s_{11}^E$ 、電気機械結合係数  $k_{31}'$  を用いて算出され、これら個々の測定精度から圧電定数  $d_{12}$ 、 $d_{13}$ 、 $d_{31}$ 、 $d_{32}$  の算出誤差は  $\sim 0.9\%$  である。圧電定数  $d_{24}$  と  $d_{26}$  は、モード結合なく純粹に励振する LE-FS 振動より得られる誘電率  $\epsilon_{22}^T$ 、弾性定数  $s_{66}^E$ 、電気機械結合係数  $k_{26}'$  から算出される。これら個々の測定精度は前述したとおりであり、これより圧電定数  $d_{24}$  と  $d_{26}$  の算出誤差は  $\sim 1.1\%$  である。圧電定数  $d_{15}$  と  $d_{35}$  では、 $(YXw)45^\circ$  の TE-FS 振動により得られる  $s_{66}^E$  ( $3.0\sim 6.0\%$  のモード結合誤差を含む) から算出した  $d_{36}'$  ( $\sim 2.6\%$  の誤差を含む) を用いて評価した場合には、その算出誤差は  $\sim 2.6\%$  (YCOB 結晶) である。また、 $5.0\sim 7.0\%$  の測定誤差を含む圧電定数  $d_{11}$ 、 $d_{33}$  を用いて評価した場合には、その算出誤差は  $5.0\sim 7.0\%$  (LaCOB 結晶) である。

以上、個々の測定精度ならびに材料定数の算出過程を考慮し、算出した材料定数の誤差について述べた。最後に、各結晶の材料定数を式(3-16)、式(3-17)、式(3-18)にまとめる。

誘電率  $\epsilon_{ij}^T / \epsilon_0$  (-)

$$\begin{array}{c} \text{Y} \\ \text{Gd} \\ \text{La} \end{array} \left[ \begin{array}{ccc} 9.57 \pm 0.04 & & -0.96 \pm 0.01 \\ 10.5 \pm 0.1 & 0 & 0.80 \pm 0.01 \\ 9.87 \pm 0.04 & & 1.24 \pm 0.02 \\ & 11.4 \pm 0.1 & \\ & 14.0 \pm 0.1 & 0 \\ & 14.3 \pm 0.2 & \\ & & 9.52 \pm 0.04 \\ & & 10.4 \pm 0.1 \\ & & 9.87 \pm 0.04 \end{array} \right]$$

(3-16)

弾性定数  $s_{ij}^E$  ( $\times 10^{-12}$  m<sup>2</sup>/N)

$$\begin{array}{c} \text{Y} \\ \text{Gd} \\ \text{La} \end{array} \left[ \begin{array}{cccccc} 7.15 \pm 0.04 & -0.345 \pm 0.003 & -2.8 \pm 0.1 & & 0.74 \pm 0.02 & \\ 7.60 \pm 0.05 & -1.17 \pm 0.01 & -3.9 \pm 0.2 & 0 & 0.40 \pm 0.02 & 0 \\ 8.82 \pm 0.05 & -1.07 \pm 0.01 & -2.6 \pm 0.1 & & 1.08 \pm 0.04 & \\ & 6.91 \pm 0.04 & -0.680 \pm 0.007 & & -0.46 \pm 0.01 & \\ & 7.15 \pm 0.04 & -4.62 \pm 0.05 & 0 & -1.53 \pm 0.09 & 0 \\ & 7.78 \pm 0.05 & -1.17 \pm 0.01 & & 3.4 \pm 0.1 & \\ & & 8.79 \pm 0.05 & & -1.18 \pm 0.04 & \\ & & 8.94 \pm 0.05 & 0 & 0.32 \pm 0.02 & 0 \\ & & 10.10 \pm 0.06 & & -1.33 \pm 0.05 & \\ & & & 35.2 \pm 0.4 & & 3.5 \pm 0.1 \\ & & & 27.9 \pm 0.3 & 0 & 1.7 \pm 0.1 \\ & & & 33.8 \pm 0.3 & & 1.30 \pm 0.05 \\ & & & & 22.7 \pm 0.7 & \\ & & & & 23 \pm 1 & 0 \\ & & & & 19.1 \pm 0.8 & \\ & & & & & 14.6 \pm 0.1 \\ & & & & & 17.8 \pm 0.2 \\ & & & & & 17.6 \pm 0.2 \end{array} \right]$$

(3-17)

圧電定数  $d_{ij}$  (pC/N)

$$\begin{array}{l} \text{Y} \\ \text{Gd} \\ \text{La} \end{array} \left[ \begin{array}{cccccc} 1.4 \pm 0.1 & 3.82 \pm 0.03 & -4.16 \pm 0.04 & 0 & -7.2 \pm 0.2 & 0 \\ 2.8 \pm 0.1 & 4.80 \pm 0.04 & -3.80 \pm 0.03 & 0 & -6.9 \pm 0.3 & 0 \\ 2.1 \pm 0.1 & 3.89 \pm 0.04 & -3.89 \pm 0.04 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -2.61 \pm 0.03 & 0 & 8.02 \pm 0.09 \\ 0 & 0 & 0 & 0.45 \pm 0.01 & 0 & 10.6 \pm 0.1 \\ -0.202 \pm 0.002 & -2.27 \pm 0.02 & 0.8 \pm 0.1 & 0 & 2.24 \pm 0.06 & 0 \\ -0.770 \pm 0.007 & -2.40 \pm 0.02 & 2.5 \pm 0.1 & 0 & -4.0 \pm 0.3 & 0 \\ -0.549 \pm 0.005 & -2.22 \pm 0.02 & 1.5 \pm 0.1 & 0 & 0 & 0 \end{array} \right]$$

(3-18)

### 3.4 材料定数の温度特性

前節では、第2章で確立した材料定数の評価方法を実際に適用し、室温における各結晶の材料定数を算出した結果を示した。本節では、それら材料定数の温度係数ならびに圧電軸  $X(1)$ 、 $Y(2)$ 、 $Z(3)$ 方向の線熱膨張係数を評価し、SAW素子における  $TCD$  を低減することのできるカット面の存在を伺う。ここで、 $TCD$  とは遅延時間温度係数(Temperature Coefficient of Delay)を意味し、これは温度変化に対する素子安定性の指標である。SAW素子の実用上、広温度範囲に渡って素子特性を維持するため(例えば、真夏の炎天下に放置された場合でも、真冬の早朝に放置された場合でも)、室温においてゼロ温度係数あるいはゼロに近い小さな温度係数が必要とされる<sup>38)</sup>。材料定数の温度係数ならびに線熱膨張係数の評価結果を示す前に、まず SAW素子における  $TCD$  と材料定数の温度係数、線熱膨張係数との関係について記述する。

次章でも述べるが、SAW素子の基礎特性において最も重要なものは、SAW伝搬速度  $v$ 、電気機械結合係数  $K^2$ 、遅延時間温度係数  $TCD$  である。 $TCD$  は  $TCD = \alpha - TCV$  で表すことができ、ここで  $\alpha$  は SAW伝搬方向の線熱膨張係数、 $TCV$  は伝搬速度  $v$  の温度係数(Temperature Coefficient of Velocity)である。これからわかるように、 $TCD$  を理論計算により求めるためには  $TCV$  を完全に計算する必要がある。その計算に必要な定数は、(i)材料定数  $c^E$ 、 $e$ 、 $\varepsilon^S$ 、 $\rho$ 、(ii)これらの1次と2次の温度係数、(iii)線熱膨張係数である。理論計算では  $TCV$  を式(3-19)の近似式で表す。

$$TCV = \frac{1}{v_s(25^\circ\text{C})} \left[ \frac{v_s(35^\circ\text{C}) - v_s(15^\circ\text{C})}{20^\circ\text{C}} \right] \quad (3-19)$$

実際の理論計算では、次の3段階を踏む。

- ① 15°C、25°C、35°Cにおける材料定数を上記の諸量を用いて計算する
- ② これら3つの温度においてSAW伝搬速度を計算する
- ③ 式(3-19)を用いてTCVを計算する

段階①はTaylor展開と材料定数とその温度係数を用いて行う。即ち、

$$X(T) = X(T_0) \left[ 1 + \frac{1}{X(T_0)} \frac{\partial X}{\partial T} (T - T_0) + \frac{1}{2X(T_0)} \frac{\partial^2 X}{\partial T^2} (T - T_0)^2 \right] \quad (3-20)$$

であり、 $X$ は任意の材料定数、 $T$ は温度、 $T_0$ は基準温度である。2次の温度係数が与えられていないときは1次の温度係数のみを使えばよい。密度の温度係数が与えられていないときは線熱膨張係数を使って、

$$\frac{1}{\rho(T_0)} \frac{\partial \rho}{\partial T} = -(\alpha_{11} + \alpha_{22} + \alpha_{33}) \quad (3-21)$$

とする<sup>39)</sup>。これより、TCVを計算し、TCDを求めることができる。また、次章で述べるが、SAWフィルタの中心周波数(共振周波数) $f_0$ の温度係数TCF(Temperature Coefficient of Frequency)は、表面波トランスデューサや周期反射アレイを作製するとき問題となるが、電極や加工の効果を無視して通常、 $TCF = -TCD$ とされており<sup>39)</sup>、実験的に中心周波数の温度変化からTCFを見積もり、これよりTCDを求めることができる。以上より、材料定数の温度係数を評価することにより、圧電定数の温度係数に正と負の組み合わせがあれば、TCFやTCDを低減することのできるカット面の存在を示唆することができる。

図3.71に温度特性の測定系を示す。温度制御は温調器(FP21: シマデン)のPID制御によりヒータへのアノード出力を制御することにより行い、低温雰囲気作製には液体 $N_2$ を用いた。また、低温で結晶表面に霜や水滴が着かないように、 $N_2$ ガス雰囲気にした。さらに、測定チャンバならびにプローブを可能な限りシールドで被覆することにより電氣的ノイズを軽減した。そのシールドにはアルミ箔や導電性テープを用いた。 $-10^\circ\text{C}$ から $50^\circ\text{C}$ (測定範囲はカットによる)まで通して、静電容量、機械的直列周波数 $f_s$ 、並列共振周波数 $f_p$ の測定を行った。測定上の問題として「温調器の交流」があり、測定中にパルス状に電氣的ノイズがのってくる。これは静電容量測定の際に $0.1\sim 0.2$  pFレベルの誤差を与え、共振点の微妙なずれを生じる原因になる。静電容量を正確に測れないことは、反共振周波数 $f_a$ (機械的並列共振周波数 $f_p$ )を正確に測れないことを意味する。温調器の交流の影響を避けるため、本研究では直流電源を使用した。



図 3.71 インピーダンスアナライザと連結した温度特性の測定系。液体窒素により冷却し、温調器により温度勾配を制御。

### 3.4.1 誘電率の温度係数の算出

浮遊容量は測定静電容量にブランクとしての測定系に寄生する容量である。正確な誘電率を得るためには浮遊容量を測定値から差し引き、正味の静電容量を求める必要がある。そこで、 $-10^{\circ}\text{C}$  から  $50^{\circ}\text{C}$  までの温度範囲において浮遊容量を測定した。図 3.72 に示すように、この温度範囲において測定系に軒並み  $120\text{ fF}$  から  $140\text{ fF}$  の浮遊容量が存在することがわかった。最小自乗法による直線近似を行ったところ、近似直線は  $\text{Blank} = 125.3 + 0.156T$  となった。尚、最小自乗の精度を表す  $R$  ファクタは  $R^2$  にして  $0.392$  であった。誘電率、圧電定数の温度係数の評価では、その共振子の静電容量の温度変化を同時に調べる。その際、この浮遊容量の近似直線を考慮し、各温度における正味の静電容量ならびに誘電率を求め、各材料定数を評価した。図 3.73 に LaCOB 結晶の誘電率  $\epsilon_{ij}^T/\epsilon_0$  ( $i = j = 1, 2, 3$ ) の温度変化を、図 3.74 に  $\epsilon_{13}^T/\epsilon_0$  の温度変化をそれぞれ示す。図 3.73 からわかるように、 $\epsilon_{11}^T/\epsilon_0$  と  $\epsilon_{33}^T/\epsilon_0$  が温度上昇に伴い増加する一方で、 $\epsilon_{22}^T/\epsilon_0$  は減少した。また、図 3.74 に示す  $\epsilon_{13}^T/\epsilon_0$  も減少した。この温度範囲に相転移はないことから、 $\epsilon_{22}^T/\epsilon_0$  の減少は  $Y$  面に存在する鏡面に起因するものと推察される。算出した LaCOB 結晶の誘電率の温度係数は、 $\epsilon_{11}^T/\epsilon_0$  で  $56.30\text{ ppm}/^{\circ}\text{C}$ 、 $\epsilon_{22}^T/\epsilon_0$  で  $-273.6\text{ ppm}/^{\circ}\text{C}$ 、 $\epsilon_{33}^T/\epsilon_0$  で  $135.8\text{ ppm}/^{\circ}\text{C}$ 、 $\epsilon_{13}^T/\epsilon_0$  で  $-258.4\text{ ppm}/^{\circ}\text{C}$  となり、これより  $\epsilon_{22}^T/\epsilon_0$  と  $\epsilon_{13}^T/\epsilon_0$  で負の温度係数が得られた。さらに、YCOB 結晶についても同様に誘電率の温度特性を評価したところ、 $\epsilon_{11}^T/\epsilon_0$  で  $52.50\text{ ppm}/^{\circ}\text{C}$ 、 $\epsilon_{22}^T/\epsilon_0$  で  $168.2\text{ ppm}/^{\circ}\text{C}$ 、 $\epsilon_{33}^T/\epsilon_0$  で  $72.86\text{ ppm}/^{\circ}\text{C}$  の温度係数が得られた。これより、LaCOB 結晶と YCOB 結晶とで、 $\epsilon_{22}^T/\epsilon_0$  の温度係数の符号が異なることがわかった。さらにこのことを確認するため、GdCOB 結晶の  $\epsilon_{22}^T/\epsilon_0$  の温度特性を評価した。その結果を図 3.75 に示す。YCOB 結晶と GdCOB 結晶では、温度上昇に伴い  $\epsilon_{22}^T/\epsilon_0$  が増加する一方で、LaCOB 結晶は減少することがわかった。これは、鏡面の存在に加え、 $R$  サイトを占有する元素のイオン半径の違いに起因しているものと考えられ、 $\text{La}^{3+}$  と  $\text{Gd}^{3+}$  の中間のイオン半径を有する  $\text{Nd}^{3+}$  を置換した NdCOB 結晶の  $\epsilon_{22}^T/\epsilon_0$  の温度特性に興味を持たれる。

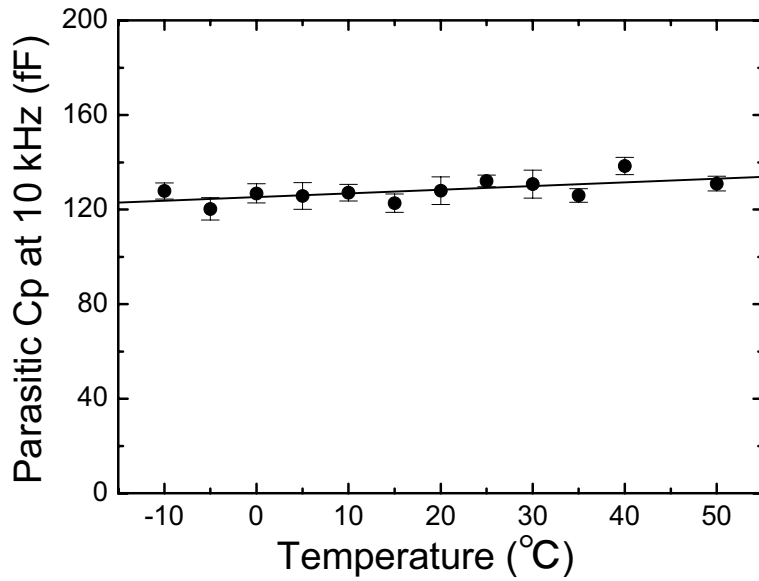


図 3.72 測定系に寄生する浮遊容量の温度依存性. 温度依存性は少ないが, 材料定数の温度特性測定の際に常に考慮. 近似直線は  $\text{Blank} = 125.3 + 0.156T$  である.

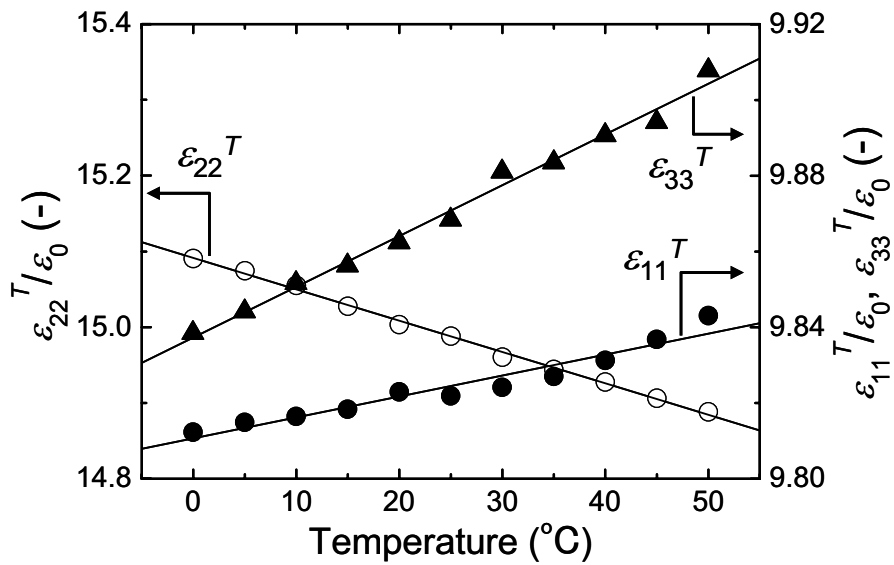


図 3.73 LaCOB 結晶の誘電率  $\epsilon_{11}^T/\epsilon_0$ ,  $\epsilon_{22}^T/\epsilon_0$ ,  $\epsilon_{33}^T/\epsilon_0$  の温度変化. 左軸が誘電率  $\epsilon_{22}^T/\epsilon_0$ , 右軸が誘電率  $\epsilon_{11}^T/\epsilon_0$  と  $\epsilon_{33}^T/\epsilon_0$ , 横軸が温度.

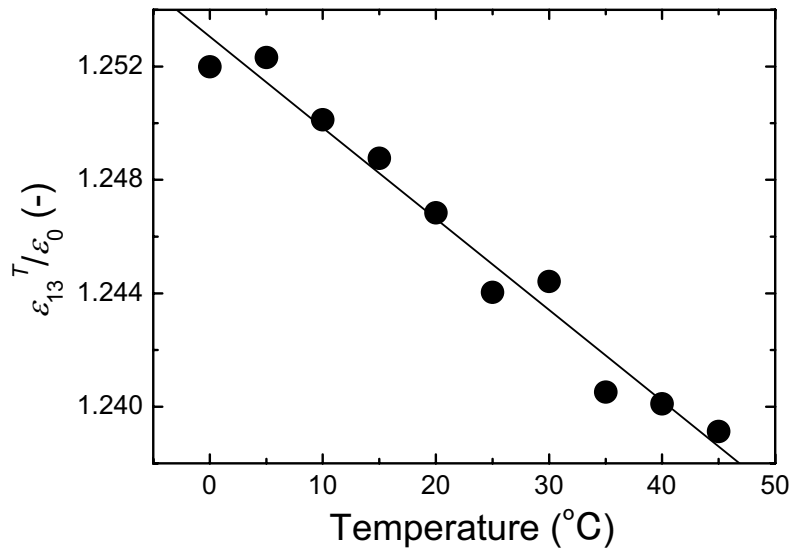


図 3.74 LaCOB 結晶の誘電率 $\epsilon_{13}^T/\epsilon_0$ の温度変化. 誘電率 $\epsilon_{13}^T/\epsilon_0$ の温度特性は, 誘電率 $\epsilon_{11}^T/\epsilon_0$ ,  $\epsilon_{33}^T/\epsilon_0$ ならびに $(XY)45^\circ$ の $\epsilon_{33}^T/\epsilon_0$ の温度特性から求めた.

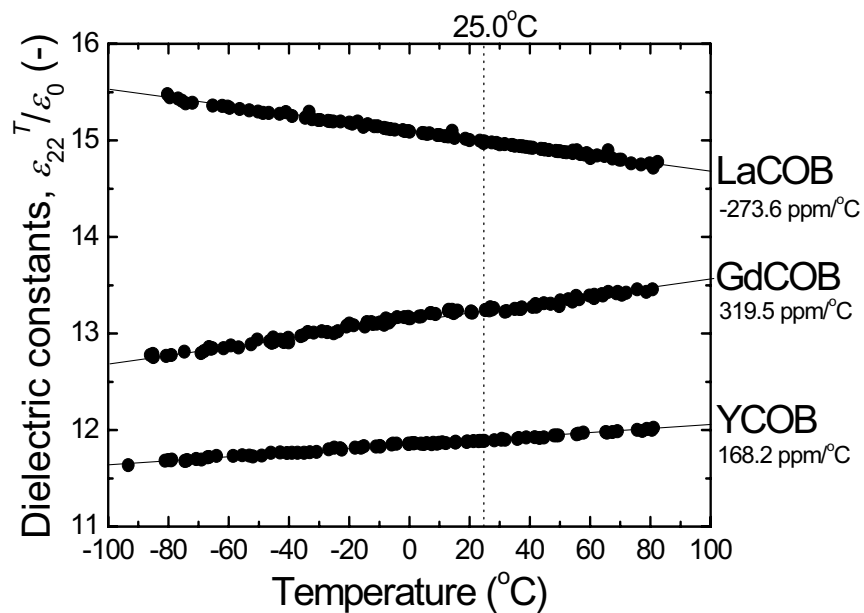


図 3.75 RCOB 結晶における誘電率 $\epsilon_{22}^T/\epsilon_0$ の温度変化. GdCOB 結晶, YCOB 結晶とは異なり, LaCOB 結晶の誘電率 $\epsilon_{22}^T/\epsilon_0$ は温度上昇に伴い単調減少.

### 3.4.2 弾性定数と圧電定数の温度係数の算出

本項では、基本カットから得られる弾性定数  $s_{11}^E$ 、 $s_{22}^E$ 、 $s_{33}^E$  と圧電定数  $d_{11}$ 、 $d_{12}$ 、 $d_{13}$ 、 $d_{31}$ 、 $d_{32}$ 、 $d_{33}$  の温度係数を算出した結果を示す。一例として、LaCOB 結晶の  $(ZYw)0^\circ$  の TE-LE 振動から得られる、弾性定数  $s_{22}^E$  と圧電定数  $d_{32}$  の温度係数の算出過程について述べる。図 3.76 に示すように、 $(ZYw)0^\circ$  の TE-LE 振動におけるインピーダンス - 位相の周波数 - 温度特性を示す。温度が上昇するにつれて TE-LE 振動の共振周波数ならびに反共振周波数は低周波数側にシフトし、インピーダンス  $Z$  の山谷比は大きくなった。これをアドミッタンスサークルで見た場合には  $GB$  サークルの径は小さくなった。共振周波数  $f_s$ 、 $f_p$  の温度変化を図 3.77 に示す。共振周波数  $f_s$ 、 $f_p$  は温度が上昇するにつれて低下した。両周波数の差  $\Delta f$  ならびに電気機械結合係数  $k_{32}$  は温度が上昇するにつれて増加した。TE-LE 振動は横効果であるため、弾性定数  $s_{22}^E$  は直列共振周波数  $f_s$ 、密度、振動方向の長さにより決定される。これより、図 3.78 に示すような弾性定数  $s_{22}^E$  の温度変化を得た。最小自乗法による一次近似から温度勾配を見積もり、 $25^\circ\text{C}$  の値で規格化した一次の温度係数を得た。その  $s_{22}^E$  の一次の温度係数は  $121.2 \text{ ppm}/^\circ\text{C}$  となった。また、電気機械結合係数  $k_{32}$ 、誘電率  $\epsilon_{33}$ 、弾性定数  $s_{22}^E$  の温度変化から、図 3.79 に示すような圧電定数  $d_{32}$  の温度変化を得た。これより、圧電定数  $d_{32}$  の一次の温度係数は  $409.6 \text{ ppm}/^\circ\text{C}$  となった。

表 3.23 に、LaCOB 結晶と YCOB 結晶における一部の材料定数(誘電率、弾性定数、圧電定数)の温度係数を示す。ここに示す温度係数はすべて  $25^\circ\text{C}$  の値で規格化してある。弾性定数  $s_{11}^E$ 、 $s_{22}^E$ 、 $s_{33}^E$  が温度とともに増加することを確認した。これは、温度が上昇すると結晶が柔らかくなることを意味している。また、圧電定数の温度係数の符号に正と負が存在したことから、 $TCF$ 、 $TCD$  を低減することのできるカット面の存在が示唆された<sup>1)</sup>。

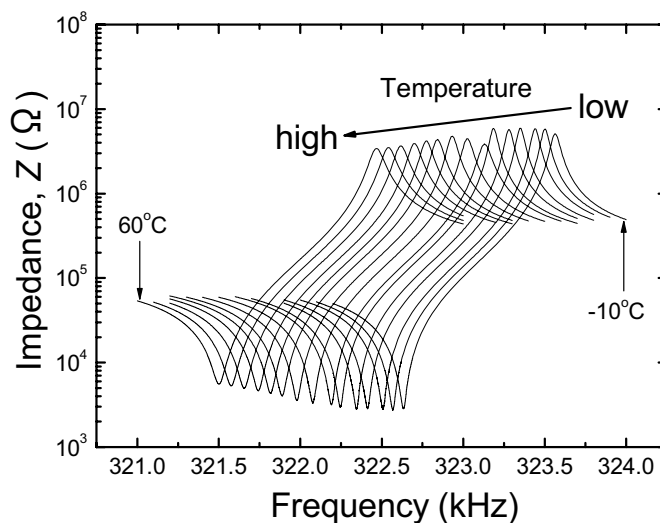


図 3.76 LaCOB 結晶の  $(ZYw)0^\circ$  の TE-LE 振動におけるインピーダンス - 位相の周波数温度特性. 共振・反共振周波数は温度上昇に伴い低下.

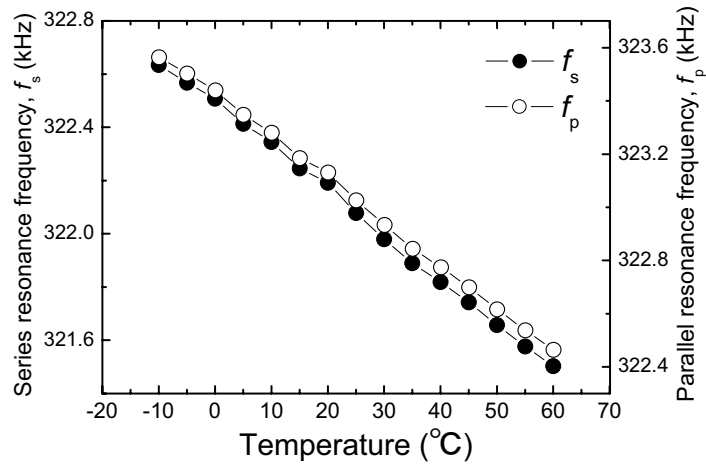


図 3.77 LaCOB 結晶の(ZYw)0° の TE-LE 振動の共振周波数と反共振周波数の温度変化. 左軸は直列共振周波数  $f_s$ , 右軸は並列共振周波数  $f_p$ , 横軸は温度.

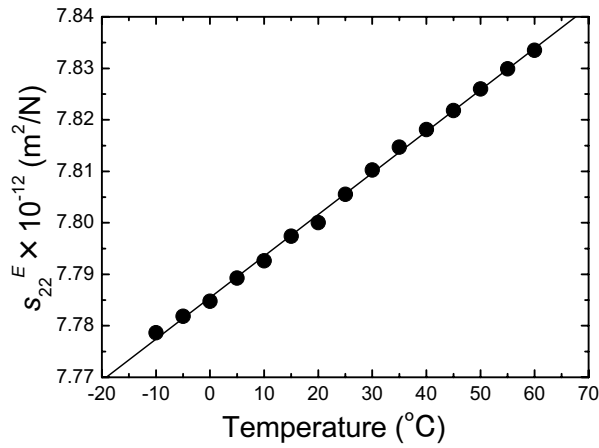


図 3.78 LaCOB 結晶の(ZYw)0° の TE-LE 振動より求まる弾性定数  $s_{22}^E$  の温度変化.

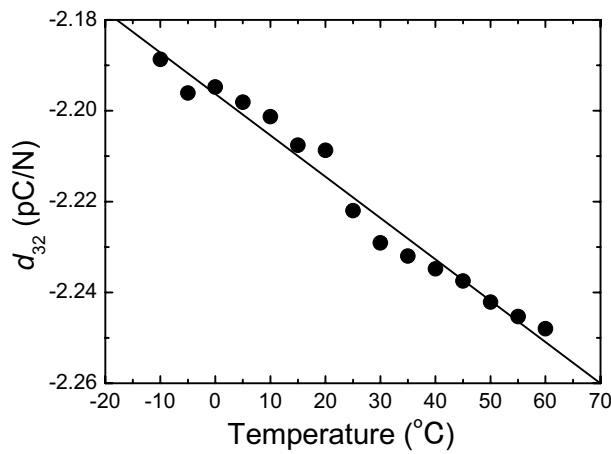


図 3.79 LaCOB 結晶の(ZYw)0° の TE-LE 振動より求まる圧電定数  $d_{32}$  の温度変化.



表 3.23 LaCOB 結晶と YCOB 結晶における材料定数の一次の温度係数

LaCOB 結晶 (ppm/°C)							
$\varepsilon_{11}^T/\varepsilon_0$	56.30	$s_{11}^E$	30.00	$d_{11}$	-408.3	$d_{31}$	-301.1
$\varepsilon_{22}^T/\varepsilon_0$	-273.6	$s_{22}^E$	121.2	$d_{12}$	83.60	$d_{32}$	409.6
$\varepsilon_{33}^T/\varepsilon_0$	135.8	$s_{33}^E$	164.9	$d_{13}$	-89.60	$d_{33}$	413.5
$\varepsilon_{13}^T/\varepsilon_0$	-258.4						
YCOB 結晶 (ppm/°C)							
$\varepsilon_{11}^T/\varepsilon_0$	52.50	$s_{11}^E$	83.43	$d_{11}$		$d_{31}$	-1018
$\varepsilon_{22}^T/\varepsilon_0$	168.2	$s_{22}^E$	157.4	$d_{12}$	149.3	$d_{32}$	371.1
$\varepsilon_{33}^T/\varepsilon_0$	72.86	$s_{33}^E$	148.1	$d_{13}$	-47.46	$d_{33}$	
$\varepsilon_{13}^T/\varepsilon_0$	-444.0						

### 3.4.3 熱膨張係数の評価

RCOB 結晶の熱的異方性を調べるため、LaCOB 結晶、GdCOB 結晶、YCOB 結晶に関して、熱膨張係数の測定を行った。圧電軸  $X(1)$ 、 $Y(2)$ 、 $Z(3)$  にそれぞれ対応して、3 つの独立な熱膨張係数  $\alpha_{11}$ 、 $\alpha_{22}$ 、 $\alpha_{33}$  がある。これらの熱膨張係数を評価するため、試料には各結晶の棒柱試料  $X$ -bar、 $Y$ -bar、 $Z$ -bar を用いた。測定にはディラトメータ (TD5020S: マックサイエンス) を用い、18°C から 800°C までの温度範囲にて測定を行い、昇温速度は 5.0 °C/min とした。また、標準試料にはアルミナ多結晶棒を用いた。図 3.80、図 3.81、図 3.82 に、それぞれ LaCOB 結晶、GdCOB 結晶、YCOB 結晶における熱膨張係数の温度依存性を示す。各図の (a)、(b)、(c) は、各結晶の  $X$ -bar、 $Y$ -bar、 $Z$ -bar における測定結果である。これより得られた 25°C 付近の線熱膨張係数を表 3.24 に示す。各結晶で共通した知見として、 $X$  軸方向と  $Y$  軸方向の線熱膨張係数はほぼ同程度であったのに対し、最大の線熱膨張係数が  $Z$  軸方向で得られることがわかった。また、このことが弾性定数  $s_{ij}^E (i = j = 1, 2, 3)$  の中で  $s_{33}^E$  が最大であることと密接に関係していることを確認した。

表 3.24 25°C 付近の RCOB 結晶の線熱膨張係数 ( $\times 10^{-6}/\text{°C}$ )

	LaCOB	GdCOB	YCOB
$X$ -bar ( $\alpha_{11}$ )	7.36	8.74	7.74
$Y$ -bar ( $\alpha_{22}$ )	8.17	7.38	7.63
$Z$ -bar ( $\alpha_{33}$ )	11.4	11.2	12.7

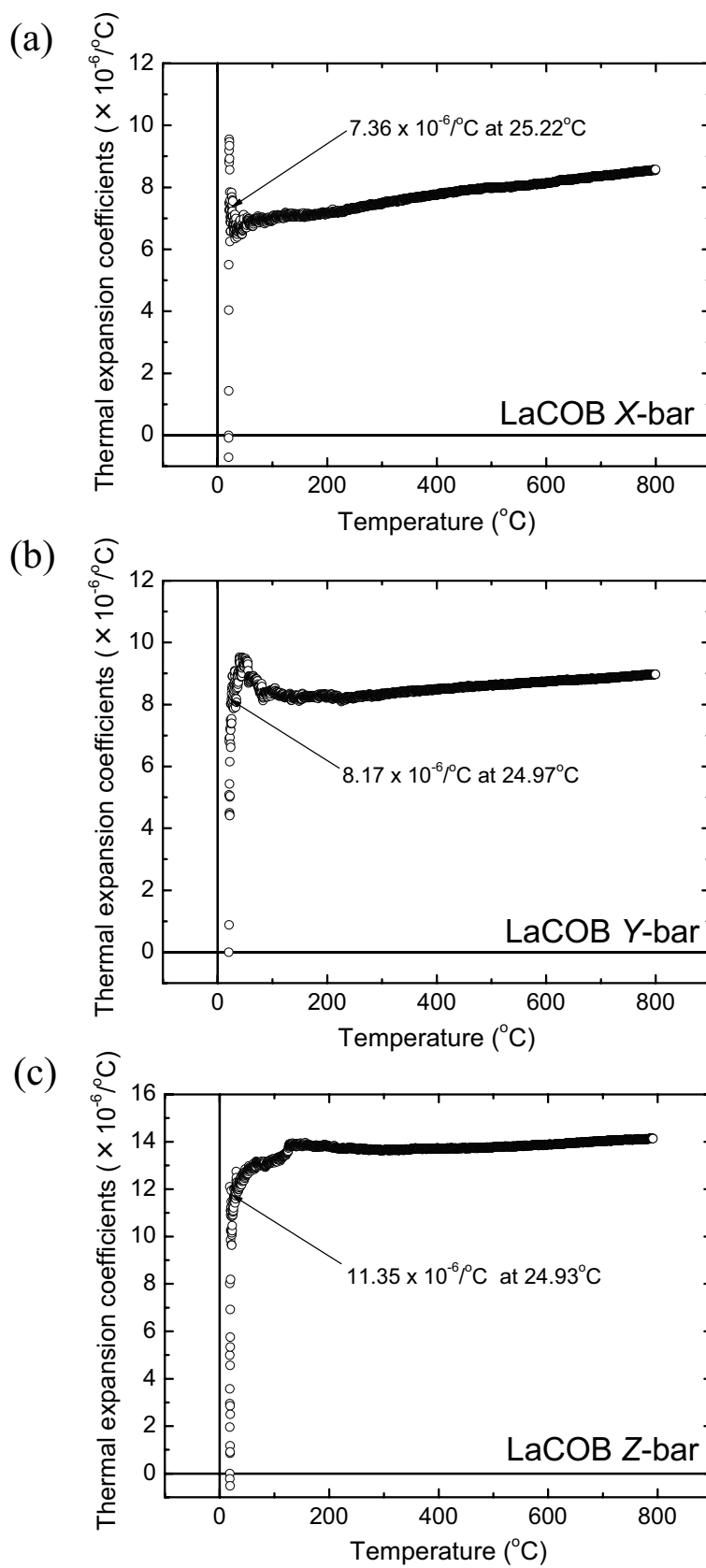


図 3.80 LaCOB 結晶の熱膨張係数 (a)X-bar ( $\alpha_{11}$ ), (b)Y-bar ( $\alpha_{22}$ ), (c)Z-bar ( $\alpha_{33}$ ).

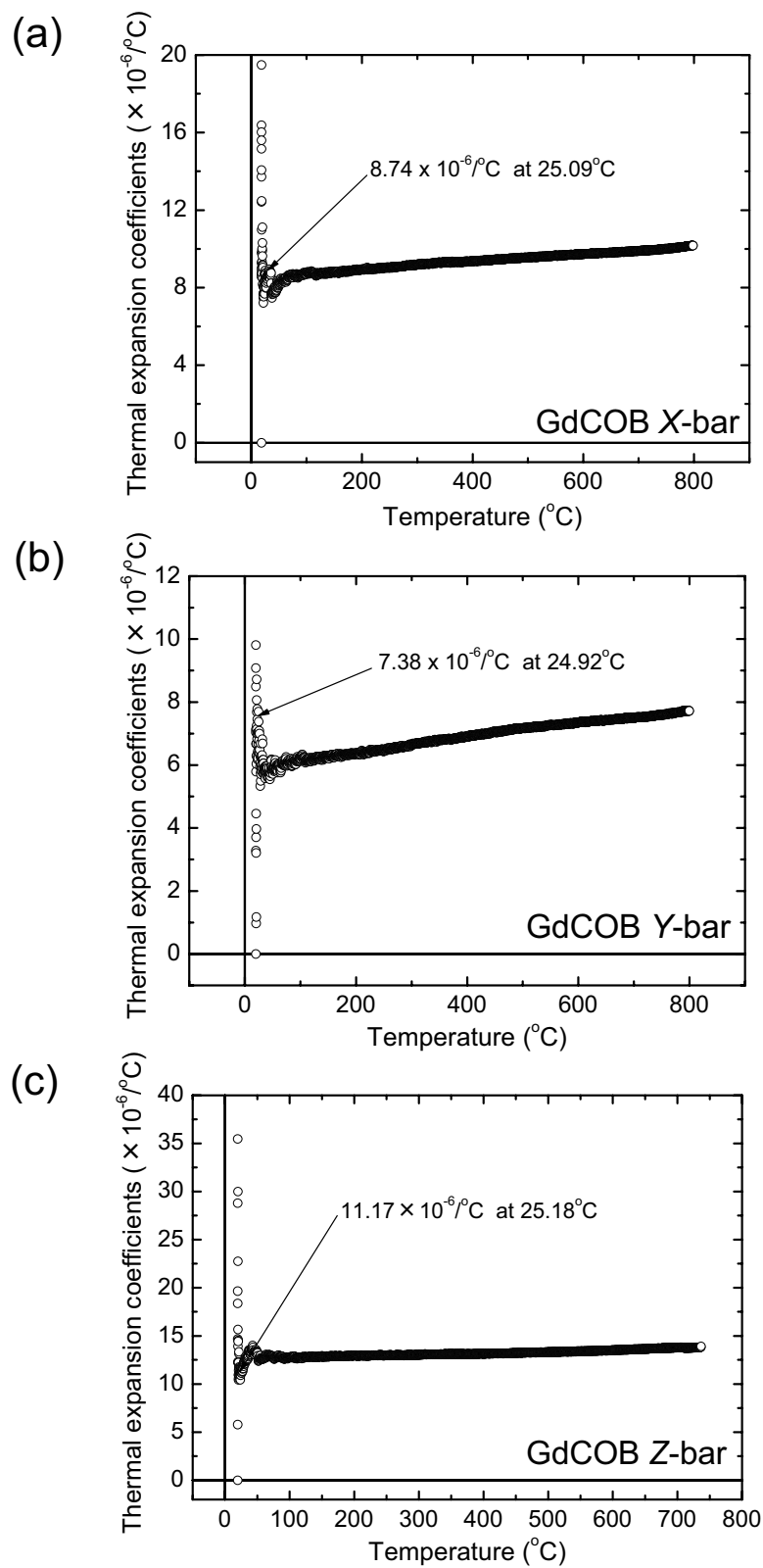


図 3.81 GdCOB 結晶の熱膨張係数 (a)X-bar ( $\alpha_{11}$ ), (b)Y-bar ( $\alpha_{22}$ ), (c)Z-bar ( $\alpha_{33}$ ).

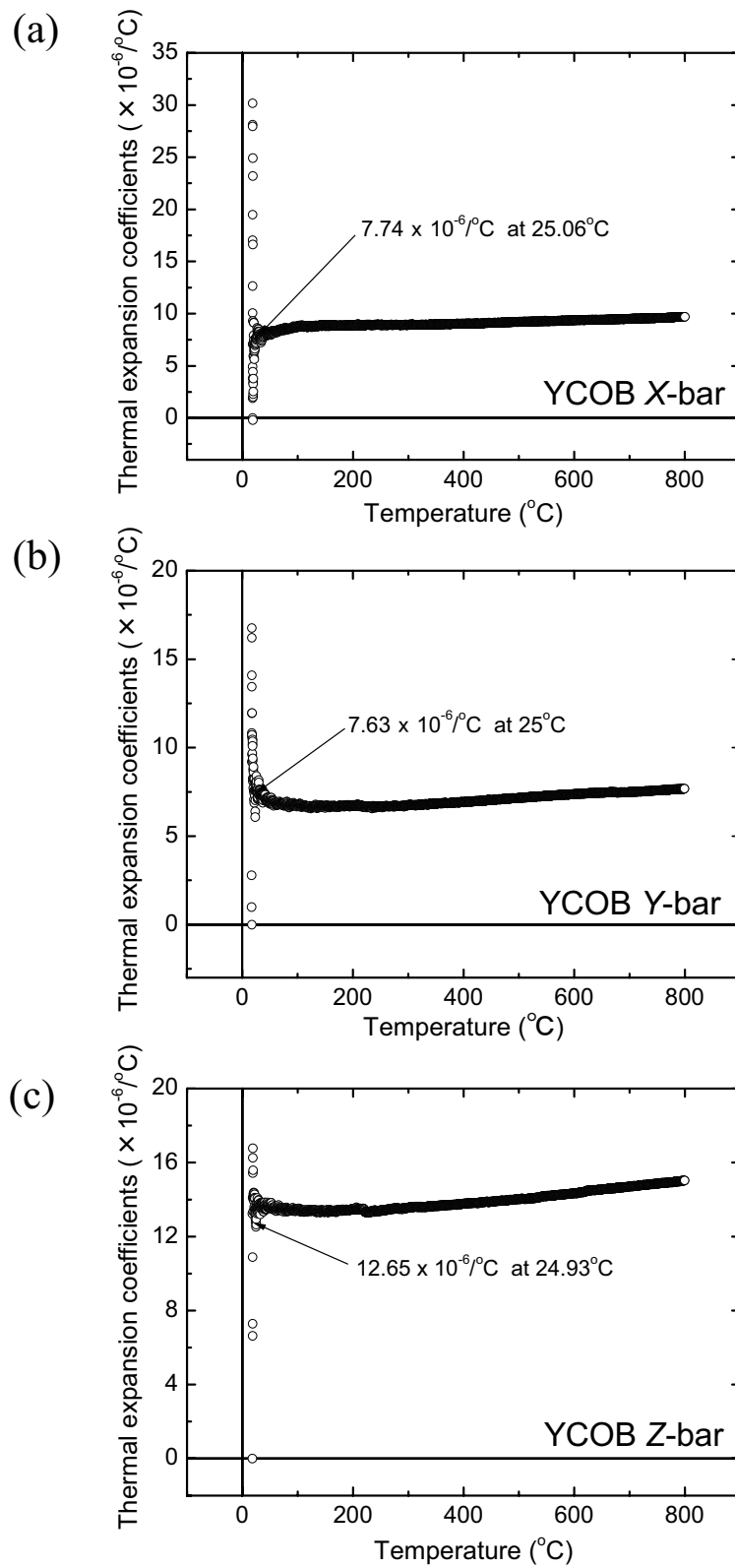


図 3.82 YCOB 結晶の熱膨張係数 (a)X-bar ( $\alpha_{11}$ ), (b)Y-bar ( $\alpha_{22}$ ), (c)Z-bar ( $\alpha_{33}$ ).

### 3.5 結言

本章では、前章で確立した材料定数の評価方法を、点群  $m$  に属する RCOB 結晶の材料定数評価に適用し、それらの材料定数を決定したことについて述べた。また、評価に用いたバルク単結晶の作製やその諸特性評価の結果についても示した。以下、本章で得られた結果をまとめる。

RCOB 結晶の中でも利点のある  $R$  サイトが La、Gd、Y である LaCOB 結晶、GdCOB 結晶、YCOB 結晶を選択し、それらのバルク単結晶を Cz 法により作製した。さらに、作製結晶の諸特性評価を行った。その結果、作製結晶が材料定数(圧電特性)を評価するに十分良質であることを示した。具体的に得られた結果としては、以下のようなことが挙げられる。

- 作製結晶にインクルージョン、バブル、クラックなどのマクロ欠陥は見られず、このことはポストアニールを施した後も同様であった。
- 不純物のない単相かつ成長方向における組成変動が 2~4%と小さいことを確認した。
- 結晶外形と結晶軸、圧電軸の関係を本研究により初めて見出し、結果、結晶の方位カット・切断加工が容易になった。
- 作製結晶が平滑平面、無色透明であることを確認した。
- 作製結晶の直胴部に  $\{101\}$  と  $\{20\bar{1}\}$  が発達し、成長方向から見た場合にそれらの面に囲まれた四辺形状をしていることを確認した。
- 2 本の成長稜を観測し、それらが  $(101)$  と  $(20\bar{1})$  ファセット間ならびに  $(\bar{1}0\bar{1})$  と  $(\bar{2}01)$  ファセット間にそれぞれ現れることがわかった。
- 2 本の成長稜が圧電軸の  $+X$  軸と  $-X$  軸にそれぞれ対応することを見出した。
- エッチピットパターンと結晶軸、圧電軸の関係を見出した。
- $X$  面と  $Y$  面では正極性の面の方が負極性の面よりも速く腐蝕することを見出した。

第 2 章で示したカットと振動モードを基に、RCOB 結晶の材料定数の評価を行った。その結果、GdCOB 結晶のすべりの圧電定数  $d_{ij}$  を除くすべての誘電率  $\epsilon_{ij}^T$ 、弾性定数  $s_{ij}^E$ 、圧電定数  $d_{ij}$  を各結晶において決定した。これより得られた知見を以下に示す。

- RCOB 結晶は水晶や LBO と同等以上の比誘電率を示すが、その他の既存の圧電結晶である LN や LT などと比べその値は小さく、比較的低誘電率の圧電結晶であることがわかった。また、RCOB 結晶の中でも、格子定数の小さな YCOB 結晶が最小の誘電率を示すことがわかった。

- RCOB 結晶のように誘電率が小さい材料の場合、棒柱試料の縦効果厚み伸び振動を用いた共振 - 反共振法による圧電定数  $d_{11}$  と  $d_{33}$  の評価では電束密度の低下が問題となるため、その評価では代替的に  $d_{33}$  メータの使用が有効であることを示した。
- 側面電極を用いた縦効果面内すべり振動から圧電定数  $d_{24}$  と  $d_{26}$  を算出した結果、 $d_{24}$  は小さい( $k_{24}$  は 2~3%)一方で、 $d_{26}$  はそれと比べ大きく( $k_{26}$  は 15~19%)、さらに  $e_{26}$  成分は点群 32 に属する既存材料と比べても大きいことがわかった。
- 圧電定数  $d_{11}$ 、 $d_{12}$ 、 $d_{13}$ 、 $d_{31}$ 、 $d_{32}$ 、 $d_{33}$  は 3 結晶で同程度であった。
- RCOB 結晶の圧電定数、電気機械結合係数は既存材料と比べ比較的小さいことを明らかにした。最大でも LaCOB 結晶の  $d_{26} = 10.6$  pC/N、 $k_{26} = 19\%$  であった。
- 弾性定数マトリックスに関して、対角成分  $s_{ij}^E (i = j = 1 \sim 6)$  が非対角成分  $s_{ij}^E (i \neq j)$  と比べ大きく、さらに対角成分のうちすべりの弾性定数  $s_{ij}^E (i = j = 4, 5, 6)$  が  $s_{ij}^E (i = j = 1, 2, 3)$  の 2 倍から 3 倍程度の値を示し、これが一般的な圧電結晶の弾性定数と同様であることを確認した。
- 弾性定数  $s_{ij}^E (i = j = 1, 2, 3)$  に関して、R サイトを占有する元素のイオン半径(格子定数)が最大の LaCOB 結晶が最大であることを明らかにした。
- RCOB 結晶の圧電軸方向の硬さが、既存材料の中でも中間的なものであることを明らかにした。
- 既存の圧電結晶とは異なり、RCOB 結晶の圧電定数  $d_{12}$  の符号が正であることを見出した。

LaCOB 結晶と YCOB 結晶に関して、基本カットから得られる材料定数の温度特性を評価し、それらの温度係数を算出した。さらに、すべての結晶の圧電軸 X、Y、Z 方向における熱膨張率の測定を行った。これより得られた知見を以下に示す。

- LaCOB 結晶の  $\epsilon_{22}^T/\epsilon_0$  は負の温度係数を示す一方で、GdCOB 結晶と YCOB 結晶のそれは正の温度係数を示すことがわかった。
- 弾性定数  $s_{11}^E$ 、 $s_{22}^E$ 、 $s_{33}^E$  が温度上昇に伴い増加し、結晶が柔らかくなることを確認した。
- 圧電定数では正負双方の温度係数が存在したことから、SAW の TCF や TCD を低減することのできるカット面の存在が示唆された。
- X 軸方向と Y 軸方向の線熱膨張係数はほぼ同程度であることがわかった。
- 最大の線熱膨張係数が Z 軸方向で得られ、これが弾性定数  $s_{11}^E$ 、 $s_{22}^E$ 、 $s_{33}^E$  の中で  $s_{33}^E$  が最大であることと密接に関係していることを確認した。

## 参考文献

- 1) H. Shimizu, K. Kodama, H. Takeda, T. Nishida, T. Shikida, S. Okamura and T. Shiosaki: "Evaluation of Material Constants and Temperature Properties in Lanthanum Calcium Oxoborate  $\text{LaCa}_4\text{O}(\text{BO}_3)_3$  Single Crystals", *Jpn. J. Appl. Phys.*, Vol. 43, No. 9B, pp. 6716-6720 (2004).
- 2) H. Shimizu, T. Nishida, M. Nishida, H. Takeda, and T. Shiosaki: "Dielectric, Elastic and Piezoelectric Constants of Lanthanum Calcium Oxoborate Single Crystals with Monoclinic Structure of Point Group  $m$ ", *Jpn. J. Appl. Phys.*, Vol. 44, No. 9B, pp. 7059-7063 (2005).
- 3) J. Czochralski: "Ein neues Verfahren zur Messung des Kristallisationsgeschwindigkeit der Metalle", *Z. Phys. Chem. in Germany*, Vol. 92, pp. 219-221 (1918).
- 4) H. Takeda, M. Ohgaki, T. Kizuki, K. Hashimoto, Y. Toda, S. Udagawa, and K. Yamashita: "Formation Mechanism and Synthesis of Apatite-type Structure  $\text{Ba}_{2+x}\text{La}_{8-x}(\text{SiO}_4)_6\text{O}_{2-\delta}$ ", *J. Am. Ceram. Soc.*, Vol. 83, No. 11, pp. 2884-2886 (2000).
- 5) W. C. Dash: "Silicon crystals free of dislocations", *J. Appl. Phys.*, Vol. 29, pp. 736-737 (1958).
- 6) 中尾日六士: "希土類・カルシウム・オキシボレート結晶の育成と応用に関する研究", 大阪大学大学院工学研究科 学位論文, pp. 16-17 (2002年).
- 7) R. D. Shannon: "Revised Effective Ionic Radii and Systematic Studies of Interatomic Distances in Halides and Chalcogenides", *Acta Crystallographica*, A32, pp. 751-767 (1976).
- 8) Qing Ye, and Bruce H. T. Chai: "Crystal Growth of  $\text{YCa}_4\text{O}(\text{BO}_3)_3$  and Its Orientation", *J. Cryst. Growth*, Vol. 197, pp. 228-235 (1999).
- 9) J. J. Adams, C. A. Ebbers, K. I. Schaffers, and S. A. Payne: "Nonlinear Optical Properties of  $\text{LaCa}_4\text{O}(\text{BO}_3)_3$ ", *OPTICS LETTERS*, Vol. 26, No. 4, pp. 217-219 (2001).
- 10) H. J. Zhang, H. D. Jiang, J. Y. Wang, X. B. Hu, G. W. Yu, W. T. Yu, L. Gao, J. A. Liu, S. J. Zhang, M. H. Hang: "Growth and Characterization of a  $\text{LaCa}_4\text{O}(\text{BO}_3)_3$  Crystal", *Appl. Phys. A*, Vol. 78, Materials Science & Processing, pp. 889-893 (2004).
- 11) H. Takeda, H. Sako, H. Shimizu, K. Kodama, M. Nishida, H. Nakao, T. Nishida, S. Okamura, T. Shikida and T. Shiosaki: "Growth and Characterization of Lanthanum Calcium Oxoborate  $\text{LaCa}_4\text{O}(\text{BO}_3)_3$  Single Crystals", *Jpn. J. Appl. Phys.*, Vol. 42, pp. 6081-6085 (2003).
- 12) M. Iwai, T. Kobayashi, H. Furuya, Y. Mori and T. Sasaki: "Crystal Growth and Optical Characterization of Rare-Earth (Re) Calcium Oxyborate  $\text{ReCa}_4\text{O}(\text{BO}_3)_3$  (Re = Y or Gd) as New Nonlinear Optical Material", *Jpn. J. Appl. Phys.*, Vol. 36, pp. L276-L279 (1997).

- 13) F. Mougél, A. Kahn-Harari, G. Aka and D. Pelenc: "Structural and Thermal Stability of Czochralski Grown GdCOB Oxoborate Single Crystals", *J. Mater. Chem.*, Vol. 8, No. 7, pp. 1619-1623 (1998).
- 14) G. Aka, F. Mougél, F. Augé, A. Kahn-Harari, D. Vivien, J.M. Bénitez, F. Salin, D. Pelenc, F. Balembois, P. Georges, A. Brun, N. Le Nain, M. Jacquet: "Overview of the Laser and Non-Linear Optical Properties of Calcium-Gadolinium-Oxo-Borate  $\text{Ca}_4\text{GdO}(\text{BO}_3)_3$ ", *Journal of Alloys and Compounds*, Vol. 303-304, pp. 401-408 (2000).
- 15) A. Klos, A. L. Bajor, A. Pajaczkowska: "Investigation of Optical and Structural Homogeneity of  $\text{Ca}_4\text{GdO}(\text{BO}_3)_3$  Single Crystals", *Cryst. Res. Technol.*, Vol. 36, pp. 885-891 (2001).
- 16) A. Pajaczkowska, A. Klos, B. Hilczer, N. Menguy, and A. Novosselov: "Growth of  $\text{GdCa}_4\text{O}(\text{BO}_3)_3$  by the Czochralski Method and Some Structure Properties", *Crystal Growth & Design*, Vol. 1, No. 5, pp. 363-365 (2001).
- 17) Andrzej Klos, Anna Pajaczkowska, Czeslaw Pawlaczyk, Ewa Markiewicz: "On Growth and Dielectric Properties of  $\text{Ca}_4\text{GdO}(\text{BO}_3)_3$  Single Crystals", *Intl. Conference on Solid State Crystals 2000 proceedings of SPIE*, Vol. 4412, pp. 369-374 (2001).
- 18) Anna Pajaczkowska: "Anomalies in Pure and Doped  $\text{GdCa}_4\text{O}(\text{BO}_3)_3$  Crystals Grown by CZ Method", *Journal of Ceramic Proceeding Research*, Vol. 5, No. 1, pp. 10-13 (2004).
- 19) L. X. Li, M. Guo, H. D. Jiang, X. B. Hu, Z. S. Shao, J. Y. Wang, J. Q. Wei, H. R. Xia, Y. G. Liu, M. H. Jiang: "Growth and Spectra of YCOB and Nd:YCOB Crystals", *Cryst. Res. Technol.*, Vol. 35, pp. 1361-1371 (2000).
- 20) D. Vivien, G. Aka, A. Kahn-Harari, A. Aron, F. Mougél, J. M. Bénitez, B. Ferrand, R. Klein, G. Kugel, N. L. Nain, M. Jacquet: "Crystal Growth and Optical Properties of Rare Earth Calcium Oxoborates", *Journal of Crystal Growth*, Vol. 237-239, pp. 621-628 (2002).
- 21) Zhang Shujun, Yang Hua, Cheng Zhenxiang, Liu Xuesong, Chen Huanchu: "Crystal Growth, Thermal and Optical Properties of  $\text{SmCa}_4\text{O}(\text{BO}_3)_3$  Crystal", *J. Cryst. Growth*, Vol. 208, pp. 482-486 (2000).
- 22) IEEE Standard on Piezoelectricity, ANSI/IEEE Std 176-1987, pp. 1-54 (1987).
- 23) Warren P. Mason: "Piezoelectric Crystals and Their Application to Ultrasonics", D. Van Nostrand Company, Inc., Princeton, New Jersey, New York (1950).
- 24) 二宮祐一: "LiNbO<sub>3</sub> 単分域結晶の育成", *NHK 技術研究*, 第 24 卷, 第 4 号, 通巻第 131 号, pp. 215-233 (1972).
- 25) H. Shimizu, H. Takeda, T. Nishida, T. Shikida, S. Okamura and T. Shiosaki: "Evaluation of Material Constants and Temperature Properties in Lanthanum Calcium Oxoborate  $\text{LaCa}_4\text{O}(\text{BO}_3)_3$  Single Crystals", *Proc. IEEE Ultrasonics Symp.*, pp. 1218-1222 (2004).



- 26) 塩寄忠・著: “電気電子材料”, 共立出版株式会社, pp. 167-169 (1999).
- 27) J. Kushibiki, I. Takanaga and S. Nishiyama: “Accurate Measurements of the Acoustical Physical Constants of Synthetic  $\alpha$ -quartz for SAW Devices”, IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control, Vol. 49, No. 1, pp. 125-135 (2002).
- 28) M. Adachi, T. Shiosaki, H. Kobayashi, O. Ohnishi and A. Kawabata: “Temperature Compensated Piezoelectric Lithium Tetraborate Crystal for High Frequency Surface Acoustic Wave and Bulk Wave Device Applications”, IEEE 1985 Ultrason. Symp., pp. 228-232 (1985).
- 29) R. T. Smith and F. S. Welsh: “Temperature Dependence of the Elastic, Piezoelectric, and Dielectric Constants of Lithium Tantalate and Lithium Niobate”, J. Appl. Phys., Vol. 42, No. 6, pp. 2219-2230 (1971).
- 30) Dr T. Karaki at Toyama Prefecture University: “Private communication”, Tokyo, Japan (2004).
- 31) M. Zgonik, R. Schlessler, I. Biaggio, E. Voit, J. Tsherry and P. Guter: “Materials constants of  $\text{KNbO}_3$  relevant for electro- and acousto-optics”, J. Appl. Phys., Vol. 74, pp. 1287-1297 (1993).
- 32) R. Norrestam, M. Nygren and J. O. Bovin: “Structural Investigations of New Calcium-Rare Earth (R) Oxoborates with the Composition  $\text{Ca}_4\text{RO}(\text{BO}_3)_3$ ”, Chem. Mater., Vol. 4, pp. 737-743 (1992).
- 33) 池田拓郎・著: “圧電材料学の基礎”, オーム社 (1984).
- 34) M. Adachi, T. Karaki and W. Miyamoto: “Surface Acoustic Wave Properties of  $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$  (Langasite) and Single Crystal”, Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 38, No. 5, pp. 3283-3287 (1999).
- 35) N. Onozato, M. Adachi and T. Karaki: “Surface Acoustic Wave Properties of  $\text{La}_3\text{Ta}_{0.5}\text{Ga}_{5.5}\text{O}_{14}$  Single Crystals”, Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 39, No. 5, pp. 3028-3031 (2000).
- 36) Yu. V. Pisarevsky, P. A. Senushecov, P. A. Popov and B. V. Mill: “New Strong Piezoelectric  $\text{La}_3\text{Ga}_{5.5}\text{Nb}_{0.5}\text{O}_{14}$  with Temperature Compensation Cuts”, 1995 Proc. IEEE Int. Freq. Contr. Symp., pp. 653-656 (1995).
- 37) 松村源太郎・訳: “新版 カリティ X 線回折要論”, 株式会社アグネ承風社, pp. 461-463 (1999).
- 38) 橋本研也・著: “弾性表面波(SAW)デバイスシミュレーション技術入門”, 株式会社リアライズ社, p. 177 (1997).
- 39) 日本電子工業振興会・編: “表面弾性波素子材料データブック”, 53-M-131, 社団法人 日本電子工業振興協会, pp. 8-10 (1978).

## 第4章 希土類カルシウムオキソボレート結晶の弾性表面波特性の実験的・理論的検証

### 4.1 緒言

弾性表面波(Surface Acoustic Wave: SAW)は圧電体などの弾性基板の表面に、エネルギーが集中した状態で伝搬する弾性的波動である。その伝搬速度は 3000~4000 m/s と電磁波と比較して 10 万分の 1 程度であること、また波長あたりの伝搬減衰が小さいため、マイクロ波帯の信号処理用部品の小型化に向いている。さらに、振動エネルギーは表面に集中しているため、表面に形成された櫛型電極(Inter-digital transducer: IDT)によって励振・受信が可能である。このため、半導体集積回路と同じ方法で大量生産が可能であり、生産性に優れている。

前章の 3.4 節で述べたように、一般に、SAW 素子用圧電材料としての性能は、伝搬する SAW の伝搬速度  $v$ (m/s)、SAW の電気機械結合係数  $K^2$ (%)および温度変化に対する素子安定性の指標である遅延時間温度係数(Temperature Coefficient of Delay: TCD)(ppm/°C)により表すことができる。SAW 素子の基礎特性には、 $K^2$  が大きいこと(実用的には 0.5%以上が必要<sup>1)</sup>)、TCD が小さいこと(ゼロが最適)が望まれる。また、伝搬速度については用途によるが、素子の高周波化には速いことが望まれる<sup>1,2)</sup>。

前章で、確立した評価方法<sup>3,4,5)</sup>を実際に適用し、RCOB 結晶の材料定数を決定したことについて述べた<sup>5,6)</sup>。本章では、RCOB 結晶の SAW 素子用圧電材料としての可能性を検討するため、実験的ならびに理論的評価を行ったことについて述べる。まず 4.2 節で、実験的評価として IDT の作製(SAW フィルタの作製)ならびに測定原理について述べた後で、各結晶の基本カット  $X$ 、 $Y$ 、 $Z$  面における SAW(レイリー波と漏洩弾性表面波)伝搬特性の測定結果を示す。次に 4.3 節で、材料定数を用いた理論的評価として、各結晶の基本カット面におけるレイリー波(Rayleigh Surface Acoustic Wave: RSAW)伝搬特性の計算結果について示し、さらに実測値と比較した結果について述べる。さらに、基本カット面のみならず全方位で計算機解析を行い、RSAW 伝搬速度と電気機械結合係数の最適なカット面を探り、既存材料との特性比較を行う。最後に 4.4 節で、本章で得られた結果をまとめる。

## 4.2 弾性表面波特性の実験的評価

### 4.2.1 楕形電極の作製

SAW 特性を評価するために必要な SAW フィルタの基本構造を図 4.1 に示す。基本構造は、圧電単結晶表面に IDT を形成した構造をとる。IDT に周波数  $f$  の電界を印加すると、圧電効果により表面付近が歪む。IDT の電極間距離を  $\lambda_0$ 、表面波の伝搬速度を  $v$  とすると、中心周波数  $f_0 (= v/\lambda_0)$  の波は同相で加えられるため最も強く励振され、同様に IDT で最も感度良く受信される。これが SAW フィルタの原理である。本研究における SAW フィルタの作製手順を以下に示す。

SAW 特性の実測評価を各結晶の基本カット  $X$ 、 $Y$ 、 $Z$  面を用いて行うため、まず作製結晶からダイヤモンドカッター(ISOMET: BUEHLER)により、 $X$ 、 $Y$ 、 $Z$  面の露出した結晶基板を切り出した。切り出した結晶基板を、#2000 のカーボン粉末(C2000: マルトー)を用いて両面を研磨した。さらに、IDT を作製する方の面のみを、平均粒径 3.0、1.0、0.25  $\mu\text{m}$  のダイヤモンドスラリ(アクアダイヤ液: マルトー)を用いて順に鏡面研磨した。もう一方の面は、バルク波の影響(SAW 素子のスプリアス)をなくすため#2000 のカーボン粉末を用いて研磨したままの粗い状態にした。SAW が基板表面のみを伝搬するのに対し、バルク波とは基板全体に伝わる波のことを言う。測定の際に裏面が平坦であると、基板表面で励振されたバルク波が基板内部へと放射し、その裏面で反射され、測定に支障をきたす。この影響をなくすため、基板の裏面を粗く研磨するか、あるいは柔らかい材質のものを貼り付けるのが一般的である。

次に、IDT の作製をフォトリソグラフィ法により行った。RCOB 結晶のアルカリ耐性は比較的高く、エッチング溶液にほとんど腐蝕されないことが確認されたため、エッチング法を採用した。作製のフローチャートを図 4.2 に示す。まず、研磨した結晶基板をエタノールで超音波洗浄した後、鏡面研磨した面に Al を抵抗加熱により蒸着させた。次に、レジストとして紫外線硬化樹脂(S1813: シプレイファーイースト)を、スピナー(1H-D7: ミカサ)を用いて、回転速度 3000 rpm、回転時間 30 秒で基板表面に塗布し、オープン中 80°C で 30 分間乾燥させた。その後、各方位に IDT 形状を設けた自作マスクを用いて、マスクアラインメント(MA-10: ミカサ)により基板に紫外線を 10~15 秒間露光し、IDT 形状にレジストを硬化させた。次に、基板を現像液(MF CD-2: シプレイファーイースト)に浸し、硬化していないレジストを除去した後、エッチング液(セミコクリーン 54: フルウチ化学)に浸すことで、レジストに保護されていない部分の Al を溶解させた。最後に Al 電極上に残ったレジストをアセトンで洗浄除去し、IDT を基板表面上に形成した。結晶基板(基本カット)上に形成した IDT の対数  $N$  は 20、電極間ピッチ  $\lambda_0$  は 37~40  $\mu\text{m}$  であり、IDT の厚さは 1.6  $\mu\text{m}$  であった。

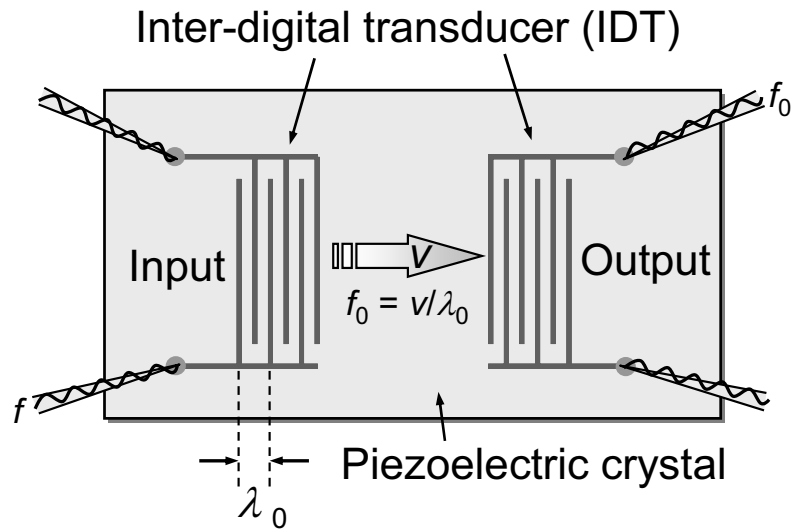


図 4.1 SAW フィルタの基本構造. IDT ピッチが  $\lambda_0$  の場合, 励振される SAW の伝搬速度  $v$  により, フィルタの中心周波数  $f_0$  は  $v/\lambda_0$  で与えられる.

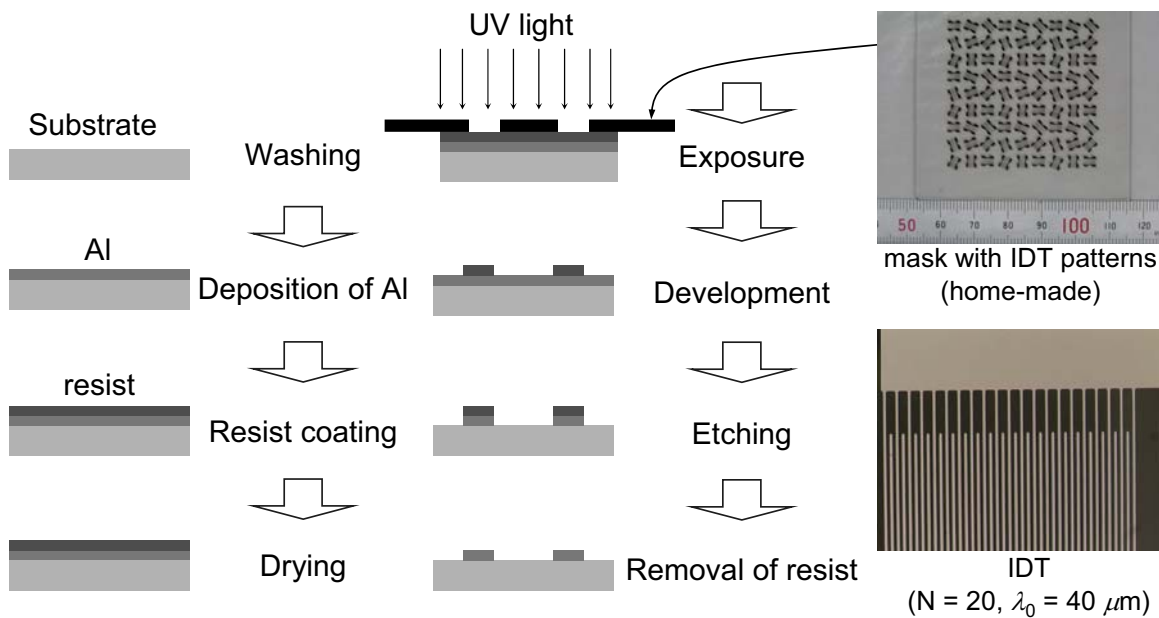


図 4.2 IDT 作製の流れ. RCOB 結晶基板上に作製した IDT の対数  $N$  は 20, 電極間ピッチ  $\lambda_0$  は  $37\sim 40 \mu\text{m}$ , IDT の厚さは  $1.6 \mu\text{m}$ .

## 4.2.2 測定原理

圧電性を持つ異方性媒質を伝搬する SAW などの波は、圧電基本式、静電方程式、運動方程式により記述できる。以下に、それら表面波伝搬の基本式を示す。

$$(圧電基本式) \quad T_{ij} = c_{ijkl} S_{kl} - e_{kij} E_k \quad (4-1)$$

$$D_i = e_{ikl} S_{kl} + \varepsilon_{ik} E_k \quad (4-2)$$

$$(静電基本式) \quad \frac{\partial D_j}{\partial x_j} = 0 \quad (4-3)$$

$$E_i = -\frac{\partial \Psi}{\partial x_i} \quad (4-4)$$

$$(運動方程式) \quad \rho \frac{\partial^2 u_i}{\partial t^2} = \frac{\partial T_{ij}}{\partial x_j} \quad (4-5)$$

ここで、 $T$ は応力、 $D$ は電気変位、 $c$ は弾性スティフネス、 $S$ は歪み、 $E$ は電界、 $e$ は圧電応力定数、 $\varepsilon$ は誘電率、 $\Psi$ は電位、 $u$ は変位を表す。式(4-1)から式(4-5)を満たし、変位  $u$  および電位  $\Psi$  が深さ方向に指数関数的な減衰を示す波が弾性表面波である。SAW 用材料としての性能は、4.1 節で述べたとおり、伝搬する表面波の伝搬速度  $v$ (m/s)、電気的エネルギーと機械的エネルギーの相互変換効率の指標である電気機械結合係数  $K^2$ (%)および素子の温度変化に対する安定性の指標である遅延時間温度係数(Temperature Coefficient of Delay: TCD)(ppm/°C)により表すことができる。表面波の速度は、次式によって求めることができる。

$$v = f_0 \lambda_0 \quad (4-6)$$

このとき、 $f_0$  は表面波の中心周波数、 $\lambda_0$  は電極間ピッチである。また、表面波の電気機械結合係数  $K^2$  は次式で定義される。

$$K^2 = 2(v_f - v_m) / v_f \quad (4-7)$$

ここで、 $v_f$  は表面開放における表面波速度、 $v_m$  は表面短絡におけるそれである。しかし、表面波速度  $v_f$  および  $v_m$  を測定して、式(4-7)から電気機械結合係数  $K^2$  を求めることは非常に困難である。そのため一般には、IDT をモデル化した Smith の等価回路により、SAW 特性を解析する。その原理モデルと等価回路をそれぞれ図 4.3

と図 4.4 に示す。Smith の等価回路<sup>7,8)</sup>にはクロストフィールドモデル(Crossed field model)とインラインフィールドモデル(In-line field model)の 2 種類があり、前者は表面に垂直な電界成分が主に機械的エネルギーに変換される場合であり、後者は表面に平行な電界成分が主に機械的エネルギーに変換される場合に用いられる。クロストフィールドモデルにおけるコンダクタンス  $G_a(\omega)$  とサセプタンス  $B_a(\omega)$  を式(4-8)に、インラインモデルにおけるレジスタンス  $R_a(\omega)$  とリアクタンス  $X_a(\omega)$  を式(4-9)にそれぞれ示す。

$$G_a(\omega) \cong \hat{G}_a \left[ \frac{\sin x}{x} \right]^2, \quad B_a(\omega) \cong \hat{G}_a \left[ \frac{\sin 2x - 2x}{2x^2} \right] \quad (4-8)$$

$$R_a(\omega) \cong \hat{R}_a \left( \frac{\omega_0}{\omega} \right)^2 \left[ \frac{\sin x}{x} \right]^2, \quad X_a(\omega) \cong \hat{R}_a \left( \frac{\omega_0}{\omega} \right)^2 \left[ \frac{\sin 2x - 2x}{x} \right] \quad (4-9)$$

但し、

$$\begin{aligned} \hat{G}_a &= \frac{\pi}{4} K^2 \omega_0 C_s N^2 \\ \hat{R}_a &= \frac{\pi}{4} K^2 \frac{1}{\omega_0 C_s} \\ C_T &= C_s N \\ x &= \frac{N\pi(\omega - \omega_0)}{\omega_0} \end{aligned} \quad (4-10)$$

である。ここで、 $\omega$  および  $\omega_0$  は角周波数と中心角周波数、 $C_s$  は IDT の 1 対の容量、 $C_T$  は IDT の全容量、 $N$  は IDT の対数である。IDT の放射アドミッタンス特性  $G_a(\omega)$  と  $B_a(\omega)$  を測定し、その測定結果と  $\omega_0$ 、 $C_s$ 、 $K$  などを上式に与えて理論計算した  $G_a(\omega)$  と  $B_a(\omega)$  とが、最小自乗法により最もよく一致するように  $\omega_0$ 、 $C_s$ 、 $K$  などを決定し、それより伝搬速度  $v$  と電気機械結合係数  $K^2$  を求める。一般にこの近似にはクロストフィールドモデルを用いる場合が多く、測定値との一致も良いことが知られているため、本研究でも電気機械結合係数  $K^2$  の評価にこれを採用した。伝搬速度  $v$  については、SAW フィルタの利得特性から中心周波数  $f_0$  を直接測定し、 $f_0$  と IDT 電極間ピッチ  $\lambda_0$  から求めることもできるため、本研究ではこれより伝搬速度  $v$  を評価した。また、遅延時間温度係数  $TCD$  は、SAW フィルタの中心周波数  $f_0$  の温度変化( $TCF$ )を測定し、電極や加工の効果を無視して、

$$TCD = -TCF \quad (4-11)$$

で与えられることから、この関係を用いて  $TCD$  を求めた。

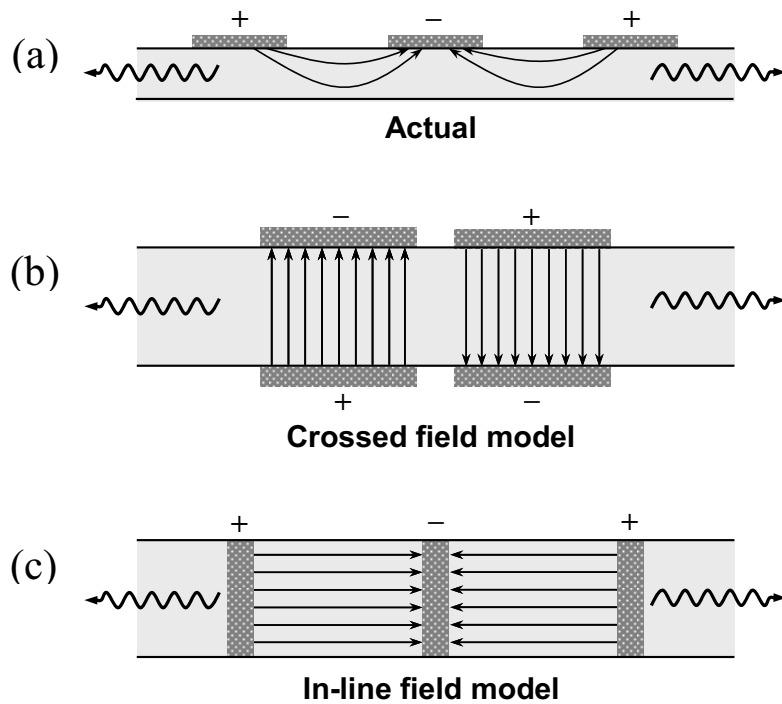


図 4.3 Smith の等価回路の原理モデル. (a)実際の印加電界, (b)クロストフィールドモデル, (c)インラインフィールドモデル. 図中の矢印は印加電界を, 波線矢印は伝搬する SAW を表す.

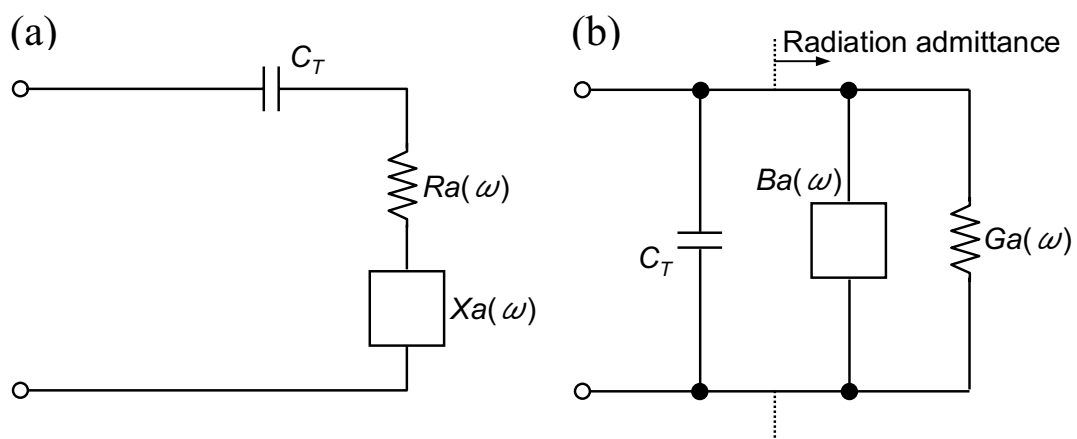


図 4.4 IDT をモデル化した Smith の等価回路. (a)インラインフィールドモデル, (b)クロストフィールドモデル. クロストフィールドモデルは, IDT の放射アドミッタンス特性を理論的に計算するためのモデルである.

### 4.2.3 弾性表面波特性の測定とその結果

伝搬速度  $v$ 、電気機械結合係数  $K^2$ 、遅延時間温度係数  $TCD$  などの SAW 特性は、結晶のカット方位や表面波の伝搬方向(IDT 方位)により異なるため、各結晶の基本カット  $X$ 、 $Y$ 、 $Z$  面内で IDT 方位を変化させ、それら各方位に対して測定を行った。測定では、伝搬速度  $v$  と電気機械結合係数  $K^2$  を求めるため、放射アドミッタンス特性をネットワークアナライザ(MS560J: Hewlett Packard)を用いて測定した(図 4.5(a))。尚、IDT とプローブとの接続を導電性銀ペースト(ドータイト: 藤倉化成)で固定した(図 4.6)。また、 $TCD$  に関しては、特に大きな  $K^2$  が得られた伝搬方向に対してのみ、SAW フィルタの利得特性の温度依存性を評価し(図 4.5(b))、そこから得られた中心周波数  $f_0$  の温度変化から見積った。ここで、放射アドミッタンスとは、IDT の電気端子アドミッタンスの実部  $G_a$  と虚部  $B_a$  の周波数特性のことである。

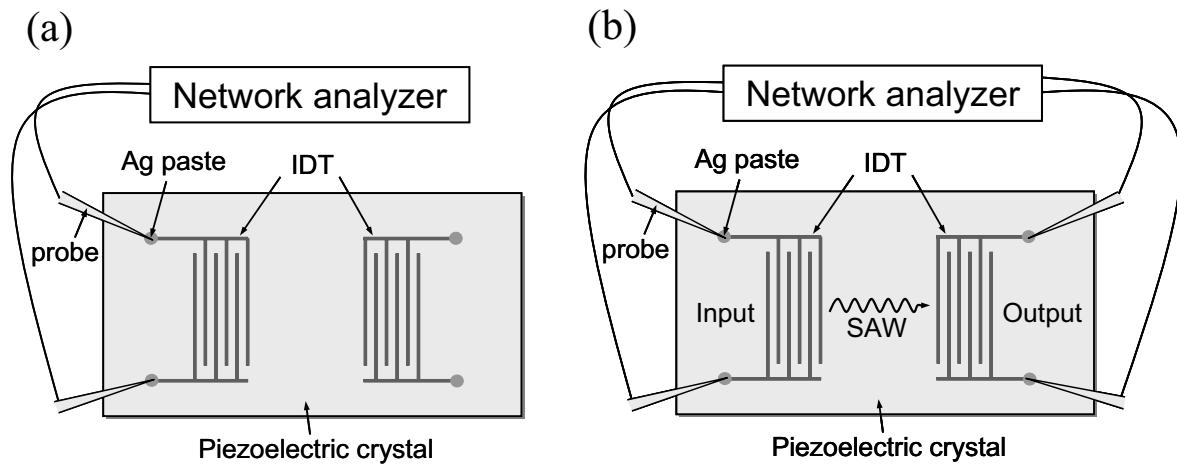


図 4.5 弾性表面波特性の測定系. (a)IDT の放射アドミッタンス測定, (b)SAW フィルタの利得特性測定.

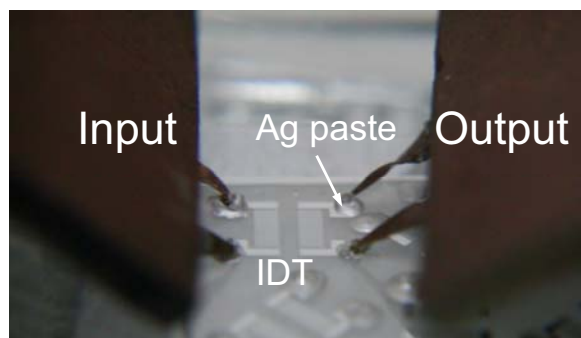


図 4.6 IDT とプローブとの接続. 写真は SAW フィルタの利得特性測定時のもの. IDT と高周波プローブを Ag ペーストで固定.



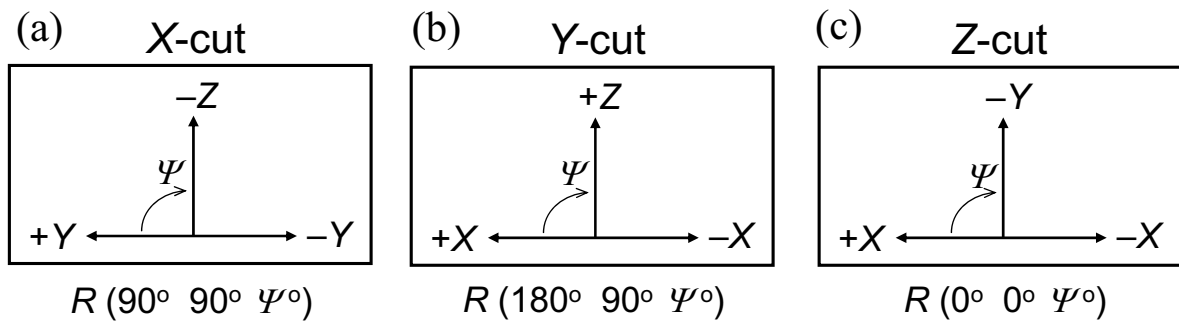


図 4.7 基本カット  $X$ ,  $Y$ ,  $Z$  面における圧電軸方向とオイラー角表記. (a) $X$  カット:  $R(90^\circ, 90^\circ, \Psi^\circ)$ , (b) $Y$  カット:  $R(180^\circ, 90^\circ, \Psi^\circ)$ , (c) $Z$  カット:  $R(0^\circ, 0^\circ, \Psi^\circ)$ .

基本カット面における圧電軸の方向は図 4.7 に示すとおりである。一般に、弾性表面波では結晶基板をオイラー角表記で表し、基本カット  $X$ ,  $Y$ ,  $Z$  面をそれぞれ  $R(90^\circ, 90^\circ, \Psi^\circ)$ ,  $R(180^\circ, 90^\circ, \Psi^\circ)$ ,  $R(0^\circ, 0^\circ, \Psi^\circ)$  と表す。但しここでは、カット面・伝搬方向を明確にするため“ $Y$  カット  $Z$  軸方向”のように表現する。

ここで一例として、LaCOB 結晶の  $Z$  カット  $Y$  軸方向における SAW フィルタの利得特性を図 4.8 に示す。中心周波数 73MHz と 108MHz において 2 つのピークが見られた。これより、伝搬速度の異なる 2 つの SAW が 1 つの IDT で励振されることがわかった。低周波数側のピークはレイリー波(Rayleigh Surface Acoustic Wave: RSAW)である。一方、高周波数側のピークは漏洩弾性表面波(Leaky Surface Acoustic Wave: LSAW)である。この 2 つの SAW を区別するには、アセトンを結晶基板に滴下し、一時的に消失するものを RSAW(横波に近い伝搬モード)、消失しないものを LSAW(遅い横波よりも縦波に近い伝搬モード)とした。これは、横波では表面と偏波面が直交することにより、表面にせん断歪みが生じることを利用している。各結晶の基本カット面上の面内方位において、この 2 つの波が観測された。但し、図 4.9 の模式図に示す方位( $X$  カット  $Z$  軸方向、 $Y$  カット  $X$  軸方向、 $Z$  カット  $X$  軸方向の近傍)では、すべての結晶で LSAW が励振されないことがわかった。一般に、LSAW は特定のカット面・伝搬方向で励振されないことが知られている。以上より、各結晶の基本カット面内で観測された RSAW と LSAW の伝搬速度  $v$  を、得られた中心周波数  $f_0$  と IDT 電極間ピッチ  $\lambda_0$  から求めた。また、良好な伝搬特性の得られた方位に対して、その中心周波数  $f_0$  の温度変化、即ち TCF を評価し、それより TCD を求めた。ここで、RSAW とは異方性基板を含むすべての固体上に存在し、波動伝搬方向に変位をもつバルク波の縦(Longitudinal: L)波成分と、表面と偏波面がほぼ直交する横(Shear-vertical: SV)波成分とが表面を介して結合する波で、SAW の中でも伝搬速度が遅く、安定な伝搬モードである<sup>9)</sup>。また、LSAW とは SV 波成分が波動のエネルギーを基板表面に集中させることができずに、固有モードのエネルギーを漏洩バルク波(Leaked Bulk Wave)として徐々に漏洩しながら伝搬するモードであり、遅い横波よりも速い伝搬速度をもつ<sup>9)</sup>。RSAW と LSAW の放射と

伝搬の様子を、図 4.10 の(a)と(b)にそれぞれ示す。(a)の角度 $\theta_c$ の直線は、SAW が伝搬とともに深さ方向に浸透していく限界を示しており、これは基板内においてもバルク波の速度  $V_B$  よりも速く信号の伝達ができないことを意味する。RSAW の速度を  $V_R$  とすると、 $\theta_c = \cos^{-1}(V_R/V_B)$  で与えられる。一方、(b)の角度 $\theta_L$ の直線は LSAW と漏洩バルク波が基板表面で同位相となる条件より導かれ、それより下の領域に波動は放射されない。この $\theta_L$ は LSAW の速度  $V_L$  により、 $\theta_L = \cos^{-1}(V_L/V_B)$  で与えられる。

次に、放射アドミッタンス特性の一例として、LaCOB 結晶 Z カット Y 軸方向におけるその実測値と Smith の等価回路モデルを用いた計算値を図 4.11 に示す。前述したように、実測値と計算値との最小自乗フィッティングにより、各結晶の基本カット面内で観測された RSAW と LSAW の電気機械結合係数  $K^2$  を求めた。

以下の(1)、(2)、(3)に、各結晶の基本カット X、Y、Z 面における、RSAW と LSAW の伝搬速度  $v$ 、電気機械結合係数  $K^2$ 、遅延時間温度係数  $TCD$  の実測結果を示す。

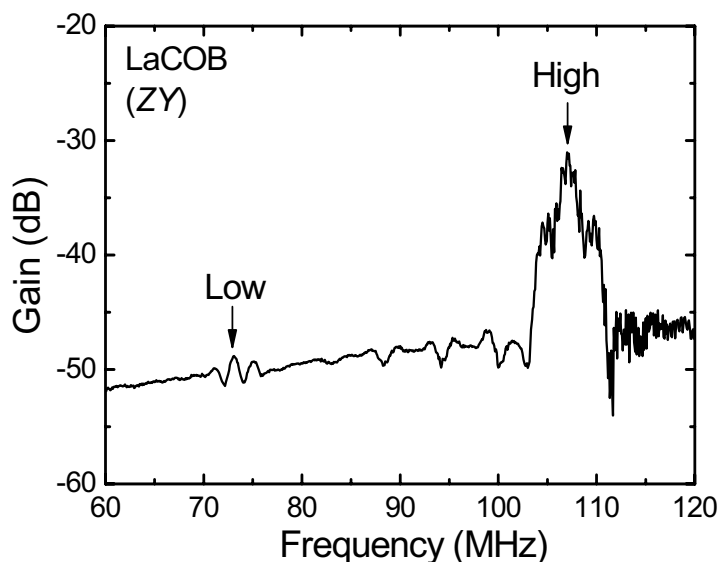


図 4.8 LaCOB 結晶の Z カット Y 軸方向における弾性表面波フィルタの利得特性。低周波数側のピークが低速波、高周波数側のピークが高速波はである。

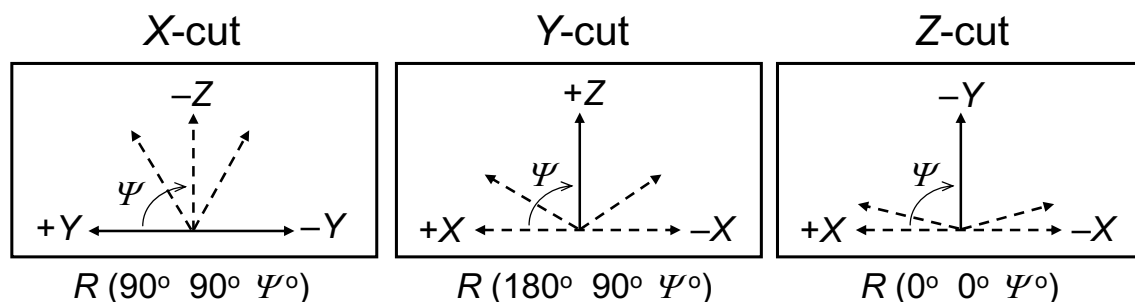


図 4.9 基本カット X、Y、Z 面における LSAW 不励振の方位。図中の点線矢印がそれ。

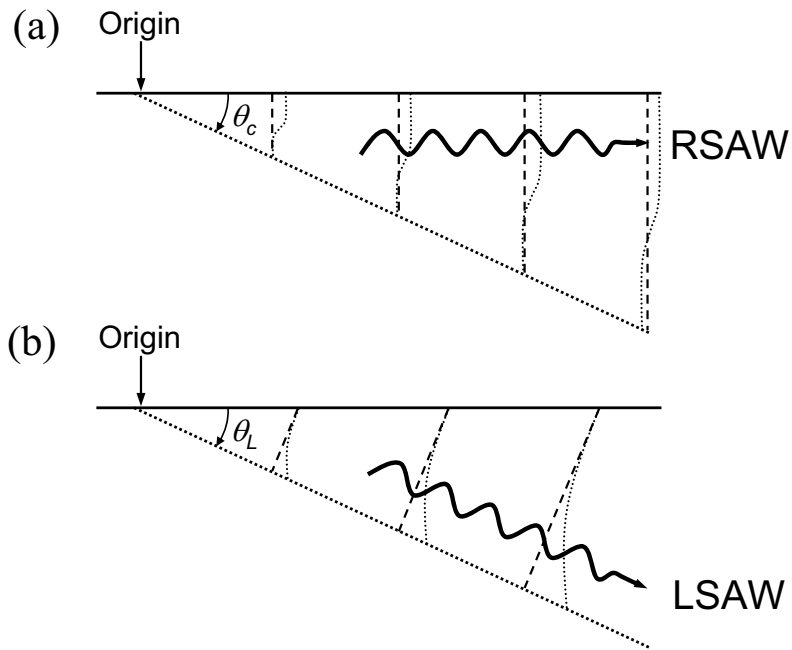


図 4.10 RSAW と LSAW の放射と伝搬の様子. (a)RSAW の放射と伝搬, (b)LSAW における漏洩バルク波の放射と伝搬.

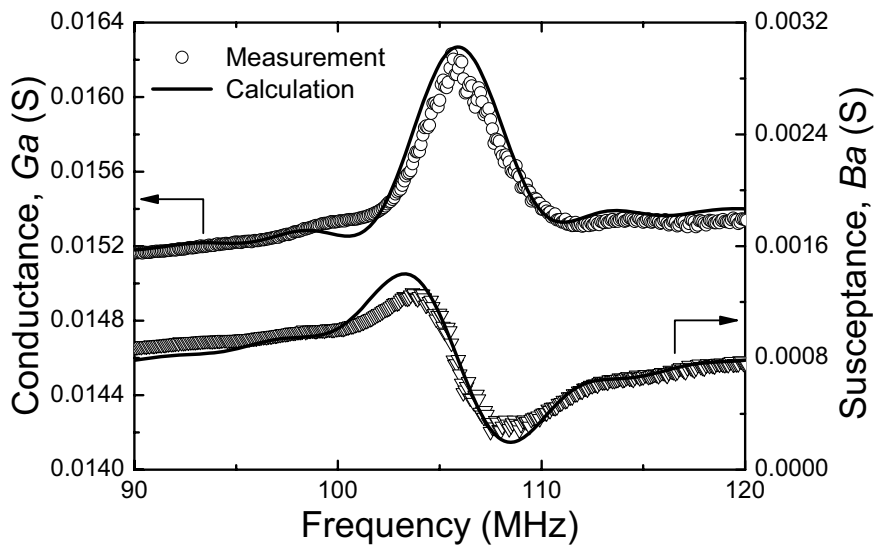


図 4.11 放射アドミッタンス特性の実測値と計算値の一例. 図は LaCOB 結晶の Z カット Y 軸方向伝搬のもの. 左軸がコンダクタンス  $G_a$ , 右軸がサセプタンス  $B_a$ .

### (1) LaCOB 結晶

図 4.12 に、LaCOB 結晶の基本カット面における SAW 特性の実測結果を示す。図 4.12(a)と(d)に、それぞれ  $X$  面における伝搬速度  $v$  の方位依存性、電気機械結合係数  $K^2$  の方位依存性を示す。RSAW の伝搬速度  $V_R$  は 3150~3300 m/s を示し、その電気機械結合係数  $K^2$  は 0.1~0.3% を示した。LSAW の伝搬速度  $V_L$  は 3600 m/s 程度でほとんど変化はなかったが、LSAW の伝搬速度  $V_L$  の方が RSAW の伝搬速度  $V_R$  よりも高速であることを確認した。また、その電気機械結合係数  $K^2$  は 0.2~0.5% を示した。

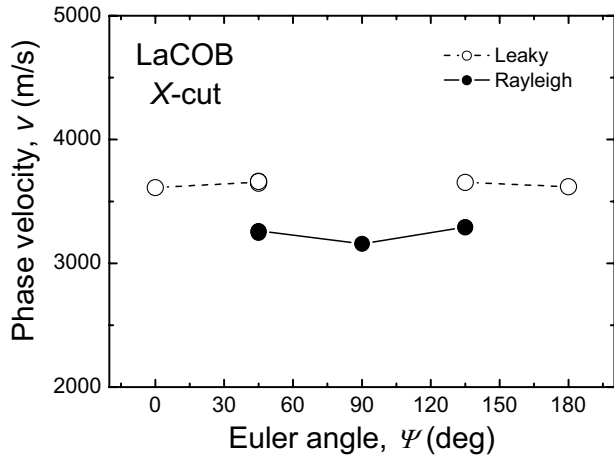
図 4.12(b)と(e)に、それぞれ  $Y$  面における伝搬速度  $v$  の方位依存性、電気機械結合係数  $K^2$  の方位依存性を示す。RSAW の伝搬速度  $V_R$  は 2750~3550 m/s であり、電気機械結合係数は 0.1~0.3% を示した。また、LSAW の伝搬速度  $V_L$  は 3500 m/s 程度であり、 $X$  面と同様  $V_R$  に比べ高速であることを確認した。また、その電気機械結合係数  $K^2$  は 0.1~0.2% であった。

図 4.12(c)と(f)に、それぞれ  $Z$  面における伝搬速度  $v$  の方位依存性、電気機械結合係数  $K^2$  の方位依存性を示す。RSAW の伝搬速度  $V_R$  は 2750~3150 m/s であり、その電気機械結合係数は 0.01~0.15% を示した。LSAW の伝搬速度  $V_L$  は 3700~4000 m/s を示し、 $X$  面や  $Y$  面と比べ  $Z$  面での  $V_L$  が高速であることを確認した。また、その電気機械結合係数は 0.01~0.60% であり、 $X$  面と  $Y$  面には見られなかった最大の電気機械結合係数 0.6% を示した。

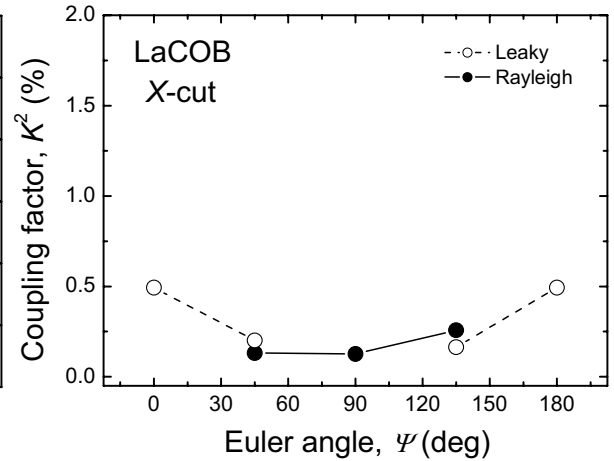
5~45°C の温度範囲(5°C 刻み)において SAW フィルタの中心周波数  $f_0$  を測定し、その変化から  $TCD$  を算出した。各基本カット面における  $TCD$  と伝搬速度  $v$  ならびに電気機械結合係数  $K^2$  を表 4.1 にまとめる。 $Y$  カット面の  $X$  軸方向の RSAW において、測定した中で最小の  $TCD$  48 ppm/°C を得た。また、 $Z$  カット面の  $Y$  軸方向の LSAW において、最大の伝搬速度  $V_L$  4000 m/s ならびに電気機械結合係数  $K^2$  0.60% を得た<sup>4)</sup>。これより、伝搬速度  $v$  と電気機械結合係数  $K^2$  に関して、RSAW では  $Y$  カット面の  $X$  軸方向が、LSAW では  $Z$  カット面の  $Y$  軸方向が優れた伝搬特性を示すことがわかった。

表 4.1 LaCOB 結晶の基本カット面における SAW 伝搬特性

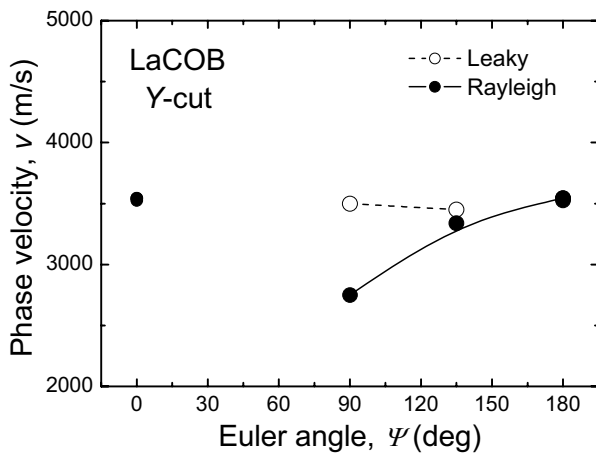
カット	伝搬方向	$v$ [m/s]		$K^2$ [%]		$TCD$ [ppm/°C]	
		RSAW	LSAW	RSAW	LSAW	RSAW	LSAW
$X$	$Z$	3150	—	0.13	—	65	—
	$Y$	—	3600	—	0.56	—	60
$Y$	$X$	3550	—	0.26	—	48	—
	$Z$	2800	3500	0.03	0.09	—	—
$Z$	$X$	3150	—	0.12	—	65	—
	$Y$	2750	4000	0.01	0.60	56	65



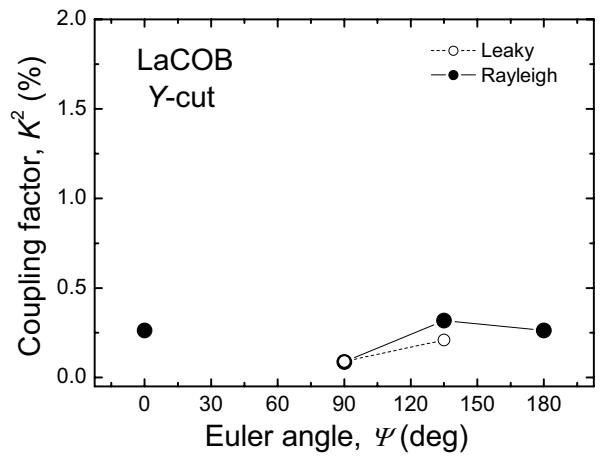
(a) Xカットにおける伝搬速度  $v$



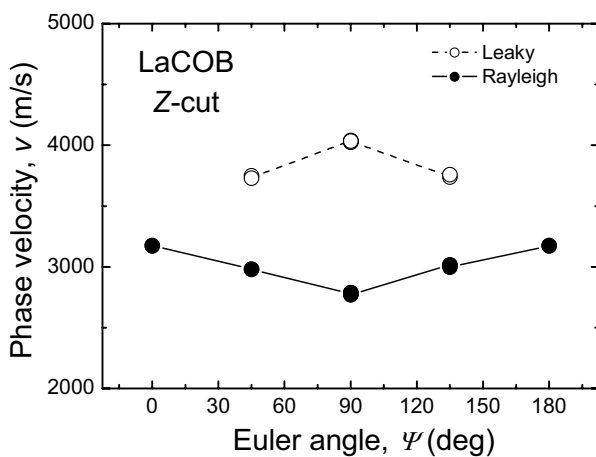
(d) Xカットにおける電気機械結合係数  $K^2$



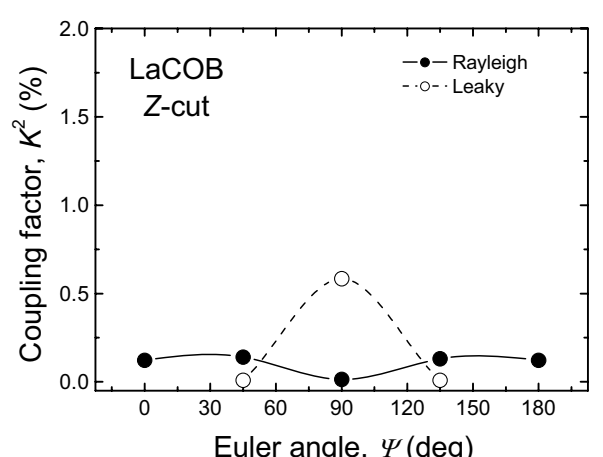
(b) Yカットにおける伝搬速度  $v$



(e) Yカットにおける電気機械結合係数  $K^2$



(c) Zカットにおける伝搬速度  $v$



(f) Zカットにおける電気機械結合係数  $K^2$

図 4.12 LaCOB 結晶の基本カット X, Y, Z 面における SAW 伝搬特性(伝搬速度  $v$  と電気機械結合係数  $K^2$ )の実測結果. 黒丸が Rayleigh SAW, 白丸が Leaky SAW の伝搬特性.

## (2) GdCOB 結晶

GdCOB 結晶と YCOB 結晶の SAW 特性の実測に関しては、文献 10)にその報告があるが、圧電軸  $X$ 、 $Y$ 、 $Z$  の極性が決定されていないため、それらが右手直交系に従っているかどうか定かではなく、検討の余地があった。そこで、本研究であらためて評価を行った。

図 4.13 に、GdCOB 結晶の基本カット面における SAW 特性の実測結果を示す。図 4.13(a)と(d)に、それぞれ  $X$  面における伝搬速度  $v$  の方位依存性、電気機械結合係数  $K^2$  の方位依存性を示す。RSAW の伝搬速度  $V_R$  は 2760~3250 m/s であり、その電気機械結合係数は 0.04~0.13%を示した。LSAW における伝搬速度  $V_L$  は 3400~3660 m/s を示し、LaCOB 結晶と同様、LSAW の伝搬速度  $V_L$  の方が  $V_R$  よりも高速であることを確認した。また、その電気機械結合係数は純モード軸以外の方向では 0.08%程度であったが、 $Y$  軸方向では 0.52%を示した。

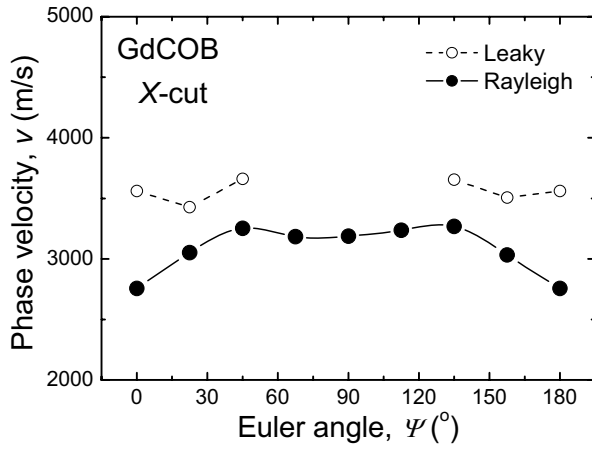
図 4.13(b)と(e)に、それぞれ  $Y$  面における伝搬速度  $v$  の方位依存性、電気機械結合係数  $K^2$  の方位依存性を示す。RSAW の伝搬速度  $V_R$  は 2640~3480 m/s であり、その電気機械結合係数は 0.05~0.34%を示した。LSAW の伝搬速度  $V_L$  は全体にわたり 3470 m/s を示し、その電気機械結合係数は 0.05~0.17%を示した。

図 4.13(c)と(f)に、それぞれ  $Z$  面における伝搬速度  $v$  の方位依存性、電気機械結合係数  $K^2$  の方位依存性を示す。RSAW の伝搬速度  $V_R$  は 2660~3200 m/s であり、その電気機械結合係数は 0.08~0.12%を示した。また、LSAW の伝搬速度  $V_L$  は全体にわたり 3900 m/s を示し、 $X$  面や  $Y$  面と比べ  $Z$  面での  $V_L$  が高速であることを確認した。その電気機械結合係数は 0.01~0.90%であり、 $X$  面と  $Y$  面には見られなかった最大の電気機械結合係数 0.90%を示した。

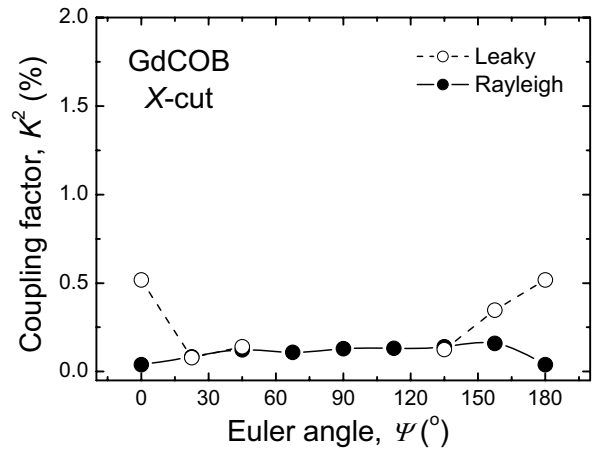
表 4.2 に、良好な特性の示されたカットの伝搬方向に対して TCD を測定した結果と併せて、伝搬速度  $v$  ならびに電気機械結合係数  $K^2$  をまとめる。 $Z$  カット面の  $Y$  軸方向伝搬の LSAW において、最大の伝搬速度  $V_L$ ~3910 m/s ならびに電気機械結合係数  $K^2$ ~0.90%を得た。伝搬速度  $v$  と電気機械結合係数  $K^2$  に関して、LaCOB 結晶と同様、RSAW では  $Y$  カット面の  $X$  軸方向が、LSAW では  $Z$  カット面の  $Y$  軸方向が優れた伝搬特性を示すことがわかった。

表 4.2 GdCOB 結晶の基本カット面における SAW 伝搬特性

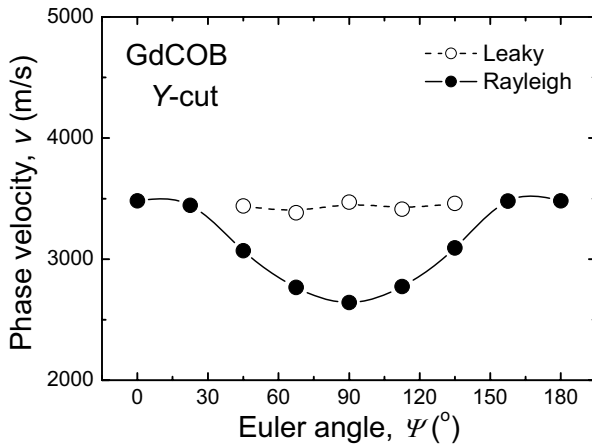
カット	伝搬方向	$v$ [m/s]		$K^2$ [%]		TCD [ppm/°C]	
		RSAW	LSAW	RSAW	LSAW	RSAW	LSAW
$X$	$Z$	3190	—	0.13	—	—	—
	$Y$	2760	3560	0.04	0.52	—	—
$Y$	$X$	3480	—	0.34	—	91	—
	$Z$	2640	3470	0.05	0.06	—	—
$Z$	$X$	3200	—	0.12	—	—	—
	$Y$	2660	3910	0.08	0.90	53	77



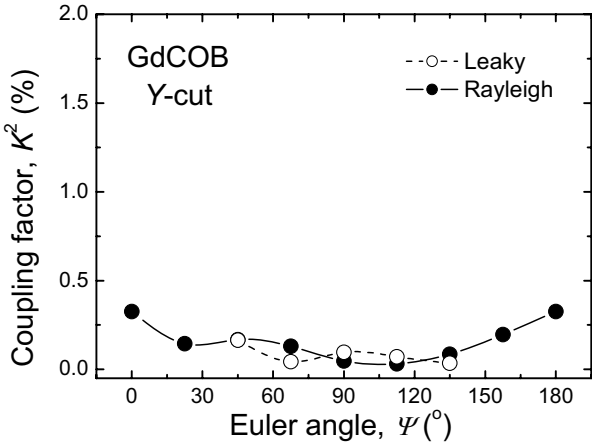
(a) Xカットにおける伝搬速度  $v$



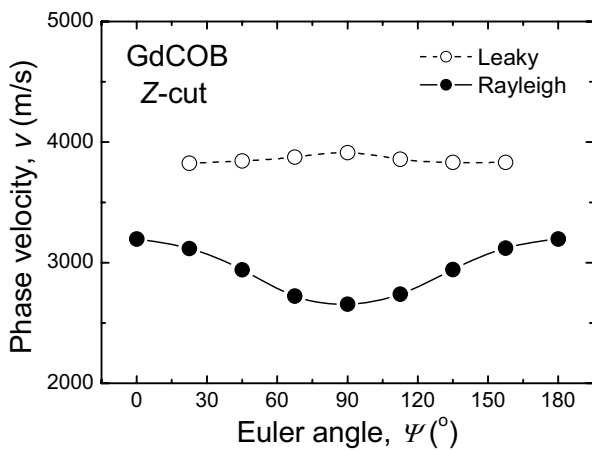
(d) Xカットにおける電気機械結合係数  $K^2$



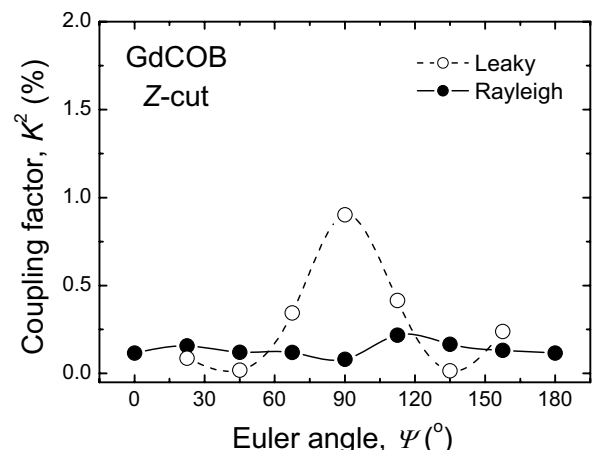
(b) Yカットにおける伝搬速度  $v$



(e) Yカットにおける電気機械結合係数  $K^2$



(c) Zカットにおける伝搬速度  $v$



(f) Zカットにおける電気機械結合係数  $K^2$

図 4.13 GdCOB 結晶の基本カット X, Y, Z 面における SAW 伝搬特性(伝搬速度  $v$  と電気機械結合係数  $K^2$ )の実測結果. 黒丸が Rayleigh SAW, 白丸が Leaky SAW の伝搬特性.

### (3) YCOB 結晶

図 4.14 に、YCOB 結晶の基本カット面における SAW 特性の実測結果を示す。図 4.14(a)と(d)に、それぞれ X 面における伝搬速度  $v$  の方位依存性、電気機械結合係数  $K^2$  の方位依存性を示す。RSAW の伝搬速度  $V_R$  は 2880~3550 m/s であり、その電気機械結合係数は 0.06~0.22% を示した。一方、LSAW の伝搬速度  $V_L$  は全体にわたり 3900 m/s と高速であり、さらにこれが RSAW の伝搬速度  $V_R$  よりも高速であることを確認した。また、その電気機械結合係数は、Y 軸方向で 0.47% を示した。

図 4.14(b)と(e)に、それぞれ Y 面における伝搬速度  $v$  の方位依存性、電気機械結合係数  $K^2$  の方位依存性を示す。RSAW の伝搬速度  $V_R$  は 2775~3850 m/s であり、その電気機械結合係数は 0.06~0.33% を示した。一方、LSAW の伝搬速度  $V_L$  は全体にわたり 3800 m/s と高速であり、その電気機械結合係数は 0.03~0.20% を示した。

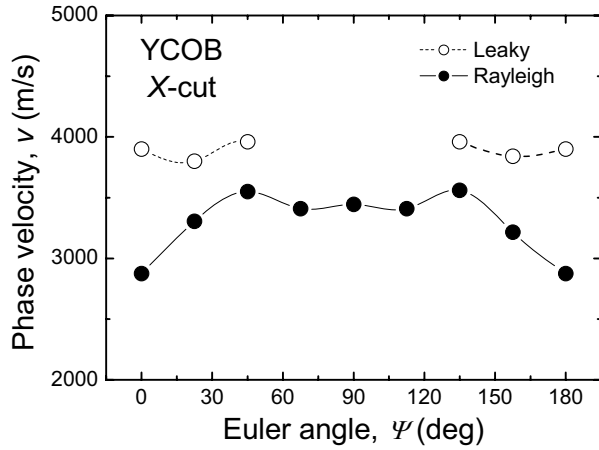
図 4.14(c)と(f)に、それぞれ Z 面における伝搬速度  $v$  の方位依存性、電気機械結合係数  $K^2$  の方位依存性を示す。RSAW の伝搬速度  $V_R$  は 2780~3445 m/s であり、その電気機械結合係数は 0.08~0.20% を示した。LSAW の伝搬速度  $V_L$  は全体にわたり 4300 m/s を示し、X 面や Y 面と比べ Z 面での  $V_L$  が高速であることを確認した。さらに、これが LaCOB 結晶や GdCOB 結晶と比べても非常に高速であることがわかった。その電気機械結合係数は 0.03~0.77% を示し、X 面と Y 面には見られなかった最大の電気機械結合係数 0.77% を示した。

表 4.3 に、良好な特性の示されたカットの伝搬方向に対して TCD を測定した結果と併せて、伝搬速度  $v$  ならびに電気機械結合係数  $K^2$  をまとめる。YCOB 結晶の伝搬速度は他結晶と比べ高速であり、これには YCOB 結晶の密度の低さが起因していると考えられる。Z カット面の Y 軸方向の LSAW において、最大の伝搬速度  $V_L$  ~3910 m/s ならびに電気機械結合係数  $K^2$  ~0.90% を得た。伝搬速度  $v$  と電気機械結合係数  $K^2$  に関して、RSAW では Y カット面の X 軸方向が、LSAW では Z カット面の Y 軸方向が優れた伝搬特性を示すことがわかった。このことは LaCOB 結晶、GdCOB 結晶と共通していた<sup>11)</sup>。

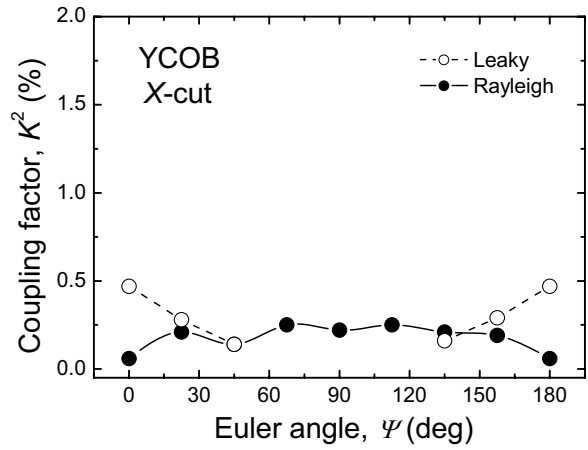
表 4.3 YCOB 結晶の基本カット面における SAW 伝搬特性

カット	伝搬方向	$v$ [m/s]		$K^2$ [%]		TCD [ppm/°C]	
		RSAW	LSAW	RSAW	LSAW	RSAW	LSAW
X	Z	3450	—	0.22	—	—	—
	Y	2880	3900	0.06	0.47	—	—
Y	X	3850	—	0.33	—	76	—
	Z	2775	3760	0.06	0.20	—	—
Z	X	3445	—	0.2	—	—	—
	Y	2780	4320	0.09	0.77	53	77

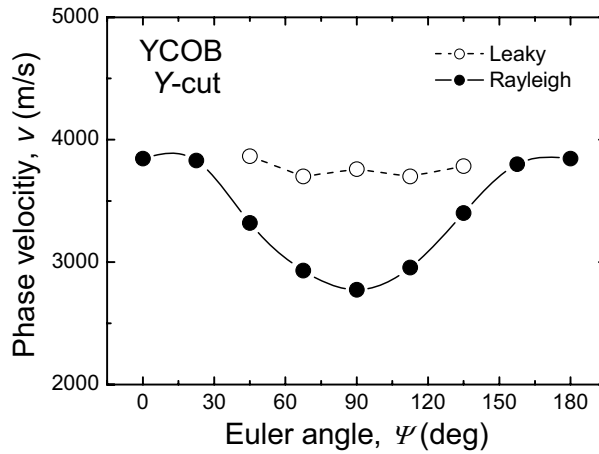




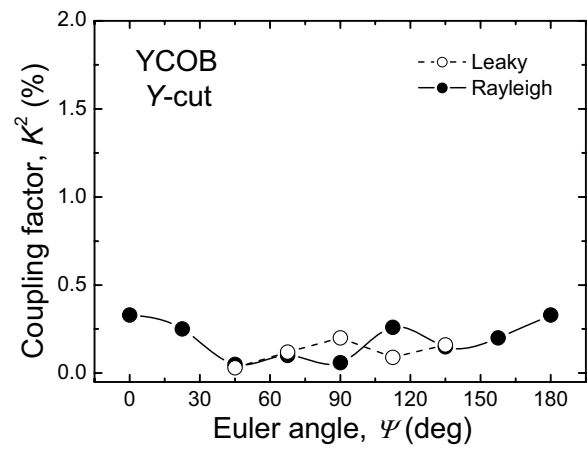
(a) Xカットにおける伝搬速度  $v$



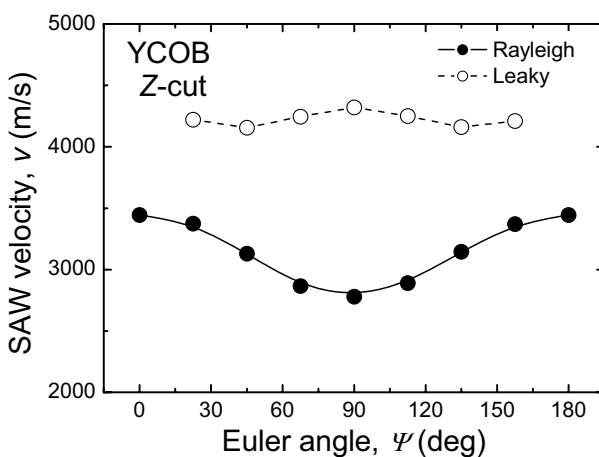
(d) Xカットにおける電気機械結合係数  $K^2$



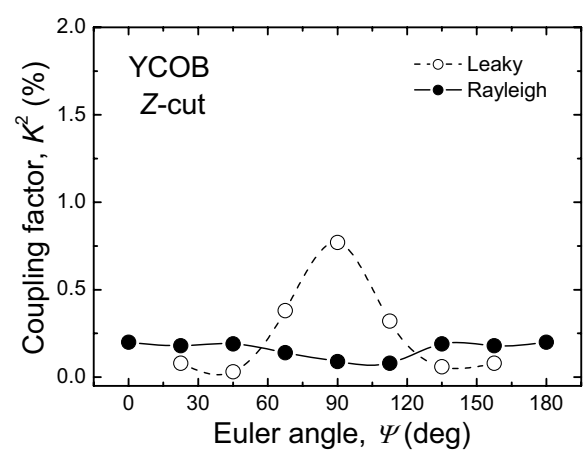
(b) Yカットにおける伝搬速度  $v$



(e) Yカットにおける電気機械結合係数  $K^2$



(c) Zカットにおける伝搬速度  $v$



(f) Zカットにおける電気機械結合係数  $K^2$

図 4.14 YCOB 結晶の基本カット X, Y, Z 面における SAW 伝搬特性(伝搬速度  $v$  と電気機械結合係数  $K^2$ )の実測結果. 黒丸が Rayleigh SAW, 白丸が Leaky SAW の伝搬特性.

#### 4.2.4 弾性定数と実測の伝搬速度

前項で、各結晶における SAW 特性の実測結果を示した。そこで、RSAW では Y カット面の X 軸方向が、LSAW では Z カット面の Y 軸方向が優れた伝搬特性を示し、これがすべての結晶で共通していたことを述べた<sup>11)</sup>。ここでは、伝搬速度の実測結果について、各結晶の密度ならびに弾性定数と併せて論じる。

伝搬速度の実測結果のうち、RSAW では Y カット面の X 軸方向伝搬ならびに Z カット面の Y 軸方向伝搬、さらに LSAW では最適結果が得られた Z カット面の Y 軸方向伝搬に着目する。一般に、伝搬速度は、密度  $\rho$  と弾性定数  $s_{ij}^E$  の積の逆数の平方根 (=  $1/(\rho \cdot s_{ij}^E)$  の平方根) で表すことができる。特に、弾性定数に関しては、マトリクス成分のうち対角成分  $s_{ij}^E (i = j = 1 \sim 6)$  の方が、非対角成分  $s_{ij}^E (i \neq j: 1 \sim 6)$  と比べ伝搬速度への寄与が大きいことが知られている<sup>1)</sup>。これは、対角成分が主軸あるいは主軸周りの応力・歪みに対する柔らかさを表す物理量であり、その絶対値も非対角成分と比べ大きいことである。図 4.15 に、各結晶における実測の伝搬速度と、伝搬速度に寄与する密度と弾性定数対角マトリクス成分の積の逆数の平方根を示す。前述したように、LSAW は横波 SV 波成分の漏洩バルク波であること、さらに全体として縦波に近い伝搬モードであることから、これには弾性定数対角マトリクス成分のすべて  $s_{ij}^E (i = j = 1 \sim 6)$  の寄与が考えられる。図 4.15 から、LSAW 伝搬速度 (Z カット面の Y 軸方向) の変化を、弾性定数対角マトリクス成分と密度の積の逆数の平方根が良く反映し、これには  $s_{66}^E$  の寄与が特に大きいことがわかる。また、前述したように、RSAW は SAW の中でも伝搬速度の遅い横波に近い伝搬モードであるため、弾性定数対角マトリクス成分の中でも、特にすべりの弾性定数  $s_{44}^E, s_{55}^E, s_{66}^E$  の寄与が大きいと考えられる。図 4.15 から、Z カット面の Y 軸方向ならびに Y カット面の X 軸方向における RSAW 伝搬速度の変化を、すべりの弾性定数と密度の積の逆数の平方根が良く反映していることがわかる。

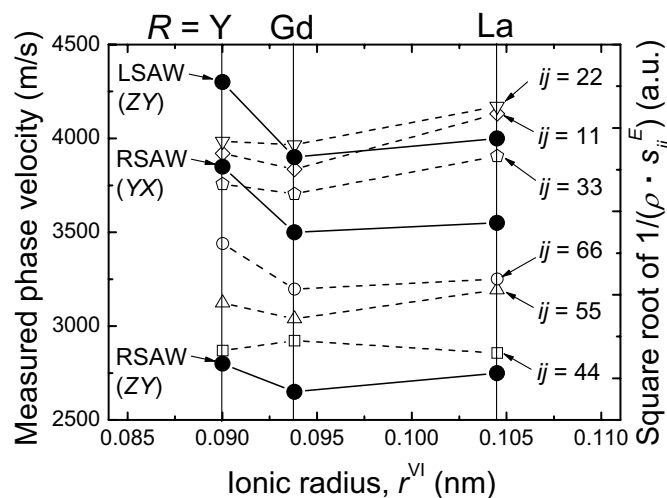


図 4.15 各結晶の SAW 伝搬速度ならびに密度と弾性定数の積の逆数の平方根。左軸は実測の伝搬速度、右軸は各結晶の密度と弾性定数対角成分の積の逆数の平方根。

ここまでは、密度と弾性定数対角マトリックス成分  $s_{ij}^E (i = j = 1 \sim 6)$  を併せて議論したが、次に密度と弾性定数の寄与を分けて考える。図 4.16 に、各結晶における実測の伝搬速度と密度(逆数)の関係を示す。これより、各結晶の密度が伝搬速度に大きく寄与していることがわかる。また、実測の伝搬速度は、RSAW と LSAW とともに YCOB 結晶が他の 2 結晶と比べ大きな値を示した。これには YCOB 結晶の低い密度( $3270 \text{ kg/m}^3$ )が起因している。図 4.17 に示すように、希土類元素はイオン半径(価数 3 価の酸素 6 配位)が大きいものほど低い密度を示すが、YCOB 結晶は希土類元素と比べ原子量が小さく、密度が低いことがわかる。

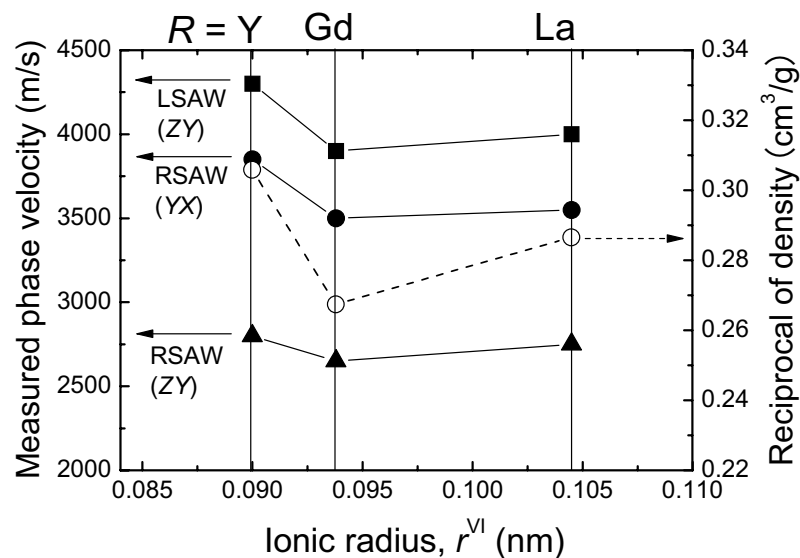


図 4.16 各結晶の SAW 伝搬速度と密度の関係. 左軸は実測の RSAW ならびに LSAW 伝搬速度, 右軸は各結晶の密度の逆数.

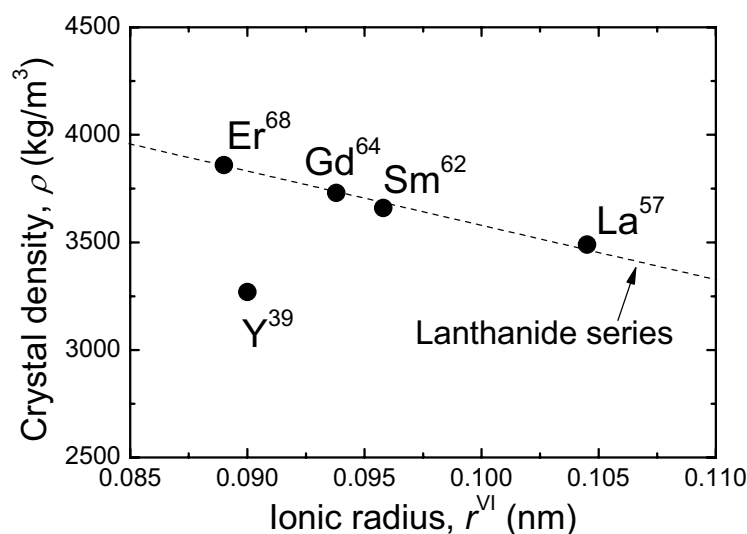


図 4.17 RCOB 結晶の密度. 希土類元素の密度はイオン半径に対して線形的変化. Y は希土類元素ではなくそれらより原子量が小さく密度が低い.

### 4.3 材料定数を用いての弾性表面波特性の理論的評価

#### 4.3.1 計算機解析の結果と測定値との比較

第3章で決定した LaCOB 結晶、GdCOB 結晶、YCOB 結晶の材料定数を用いて、SAW 特性の計算機解析を行った。但し、応用の観点から、電極設計が容易でありかつ単純な表面波である RSAW の伝搬速度  $V_R$  と電気機械結合係数  $K^2$  に関して、基本カット  $X$ 、 $Y$ 、 $Z$  面における計算機解析を行った。尚、GdCOB 結晶についてはすべりの圧電定数を算出できなかったため、弾性定数を用いて伝搬速度  $v$  に関してのみ計算機解析を行った。計算機解析手法は文献 12) を参考にした。この内容については付録 A.11 を参照されたい。表面波の計算では、誘電率、弾性定数、圧電定数として  $\varepsilon_{ij}^T$ 、 $s_{ij}^E$ 、 $d_{ij}$  ではなく  $\varepsilon_{ij}^S$ 、 $c_{ij}^E$ 、 $e_{ij}$  が必要となる。そのため、第3章で決定した材料定数を逆マトリクス変換して、これらを得る必要がある。逆変換して得られたこれらの材料定数を式(4-12)、式(4-13)、式(4-14)にまとめる。これらを計算機解析のパラメータとして用いた。

$$\begin{array}{c} \text{Y} \\ \text{Gd} \\ \text{La} \end{array} \left[ \begin{array}{ccc} 8.86 & & -0.70 \\ 9.39 & 0 & 0.45 \\ 8.94 & & 1.25 \\ & 10.8 & \\ & 13.8 & 0 \\ & 13.6 & \\ & & 9.41 \\ & & 9.54 \\ & & 9.73 \end{array} \right] \quad (4-12)$$

誘電率  $\varepsilon_{ij}^S / \varepsilon_0$  (-)

$$\begin{array}{c} \text{Y} \\ \text{Gd} \\ \text{La} \end{array} \left[ \begin{array}{cccccc} 1.60 & 0.128 & 0.51 & & -0.02 & \\ 2.70 & 1.85 & 2.1 & 0 & 0.14 & 0 \\ 1.28 & 0.271 & 0.35 & & -0.262 & \\ & 1.47 & 0.159 & & 0.03 & \\ & 3.40 & 2.55 & 0 & 0.225 & 0 \\ & 1.47 & 0.205 & & -0.26 & \\ & & 1.32 & & 0.055 & \\ & & 3.36 & 0 & 0.16 & 0 \\ & & 1.11 & & 0.021 & \\ & & & 0.291 & & -0.07 \\ & & & 0.360 & 0 & -0.03 \\ & & & 0.297 & & -0.022 \\ & & & & 0.445 & \\ & & & & 0.45 & 0 \\ & & & & 0.577 & \\ & & & & & 0.700 \\ & & & & & 0.565 \\ & & & & & 0.570 \end{array} \right] \quad (4-13)$$

弾性定数  $c_{ij}^E$  ( $\times 10^{11}$  N/m<sup>2</sup>)

圧電定数  $e_{ij}$  (C/m<sup>2</sup>)

$$\begin{array}{c} \text{Y} \\ \text{Gd} \\ \text{La} \end{array} \left[ \begin{array}{cccccc} 0.08 & 0.490 & -0.455 & 0 & -0.34 & 0 \\ 0.31 & 0.729 & -0.292 & 0 & -0.53 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -0.131 & 0 & 0.580 \\ -0.025 & -0.316 & 0.08 & -0.01 & 0 & 0.604 \\ -0.040 & -0.206 & 0.09 & 0 & 0.097 & 0 \\ -0.040 & -0.206 & 0.09 & 0 & -0.16 & 0 \end{array} \right] \quad (4-14)$$

以下、各結晶の基本カット面における RSAW の伝搬速度  $V_R$  と電気機械結合係数  $K^2$  の実測値と計算値の比較について述べる。

図 4.18 に、LaCOB 結晶における RSAW 伝搬特性の実測結果と計算結果を示す。同様に、図 4.19 に GdCOB 結晶、図 4.20 に YCOB 結晶における RSAW 伝搬特性の実測結果と計算結果をそれぞれ示す。これらすべての結晶の  $X$  面では、 $\Psi = 30^\circ$  ならびに  $150^\circ$  近傍において、RSAW と BGS(Bleustein-Gulyaev-Shimizu)波、バルク波とのモード分離ができず、RSAW の伝搬速度を解として得ることができなかった。また、電気機械結合係数  $K^2$  は、式(4-7)にあるように、電気的表面開放状態の伝搬速度  $v_f$  と電気的表面短絡状態の伝搬速度  $v_m$  により決定されるため、この伝搬方位における  $K^2$  も同様であった。ここで、BGS 波とは基板と平行方向の変位をもつ横波(Shear-horizontal: SH)成分と圧電性とは表面を介して結合し、互いにエネルギーを授受しながら伝搬する固有モードであり、圧電性基板のある特定の方位のみに存在することが知られている<sup>1)</sup>。図 4.21 に示す  $X$  カット  $\text{LiNbO}_3$  の電気機械結合係数の伝搬方位依存性からわかるように、RSAW は方位に対して滑らかに変化するが、BGS 波は方位により特性が急激に変化することがわかる。また、バルク波は L 波、SV 波、SH 波などであり、伝搬モードとしては単独で基板表面の境界条件を満足できないため、基板表面方向にはバルク波という形態で伝搬できず、基板内部へと放射される波である。バルク波は本来基板内部へと拡散・減衰していくが、SSBW(Surface Skimming Bulk Wave)のように基板表面に平行に励振されるバルク波もある<sup>9)</sup>。これらの伝搬モードの伝搬速度差が非常に小さかったため、モード分離が困難であった。

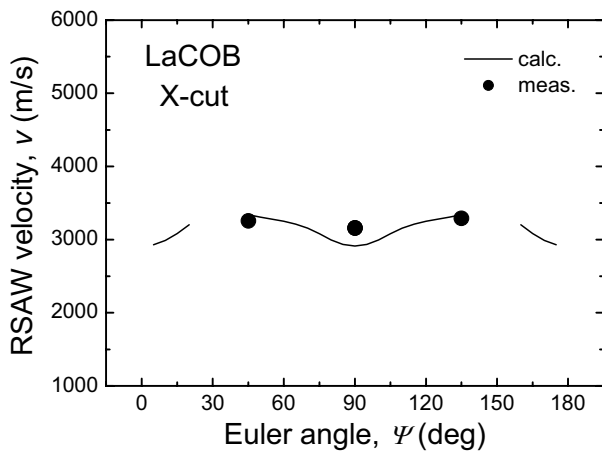
ここで、図 4.18(LaCOB 結晶)、図 4.19(GdCOB 結晶)、図 4.20(YCOB 結晶)における RSAW 伝搬速度  $V_R$  の実測値と計算値の比較結果について議論する。すべての結晶で実測値と計算値が比較的よく一致したことから、各結晶の弾性定数マトリックスの対角成分  $s_{ij}^E$  ( $i = j = 1 \sim 6$ ) が精度よく算出されていることが示唆された。LaCOB 結晶と YCOB 結晶の伝搬速度プロファイルでは特に良い一致を示したが、GdCOB 結晶では純モード軸( $\Psi = 0^\circ, 90^\circ, 180^\circ$ )において実測値と計算値の若干の不一致が見られた。これには実測と計算の双方の誤差要因が考えられる。表面波の伝搬速度は中心周波数  $f_0$  と IDT 電極間ピッチ  $\lambda_0$  により決定されるため、伝搬速度実測値の

誤差要因には中心周波数  $f_0$  の測定精度と IDT 電極間ピッチ  $\lambda_0$  の不均一性が考えられる。ネットワークアナライザによる周波数の測定精度は~0.03%である。本研究で使用した IDT の電極間ピッチ  $\lambda_0$  は 37~40  $\mu\text{m}$  (IDT 線幅は 4 分の 1 の 9~10  $\mu\text{m}$ ) であるが、1 つの IDT ではその不均一性は~2%以内である。従って、伝搬速度の実測誤差は $\pm 2\%$ ( $\pm 100$  m/s)以下であることがわかる。これより、純モード軸における伝搬速度の実測値と計算値の不一致は主に計算誤差によるものであり、計算に用いた弾性定数のうち特にすべりの弾性定数  $s_{55}^E(c_{55}^E)$  のモード結合誤差( $\pm 6\%$ )に起因するものと推察される。LaCOB 結晶の Z 面の RSAW 伝搬速度プロファイルにおいても、X 軸方向で実測値と計算値の若干の不一致が見られたが、これについても GdCOB 結晶と同様、すべりの弾性定数  $s_{55}^E(c_{55}^E)$  のモード結合誤差( $\pm 4\%$ )に起因するものと推察される。ここでの比較から、RSAW 伝搬速度に関して次に示す知見が得られた。各結晶の基本カット面における RSAW 伝搬速度の計算プロファイルから、RSAW 伝搬速度の最大値と最小値がともに Y 面上に存在し、さらにその最小値が Z 面上の RSAW 伝搬速度の最小値と同程度の値を示すことがわかった。また、実測ではわからなかったが、計算結果から各基本カット面における RSAW 伝搬速度の方位依存性において、X 面と Z 面では左右対称なプロファイルであるのに対し、Y 面では左右非対称なプロファイルになることがわかった。図 4.22 に示すように、これは点群  $m$  の結晶対称性(Y 面に対称性がない)に起因するものと推察される。対称性がある場合、その面における伝搬速度の最小値は純モード軸で  $\Psi = 90^\circ$ (Z 軸)であるが、RCOB 結晶の Y 面では伝搬速度の最小値が  $\Psi = 97^\circ$ (LaCOB 結晶)、 $\Psi = 100^\circ$ (GdCOB 結晶)、 $\Psi = 99^\circ$ (YCOB 結晶)と、すべての結晶で  $\Psi = 100^\circ$  付近に存在した<sup>13)</sup>。これはビームステアリングの存在を示唆するものである。ビームステアリングとは異方性を有する場合に波動位相の伝搬方向と波動のパワーの流れ(パワーフロー)の方向が異なる現象のことを言う<sup>1)</sup>。

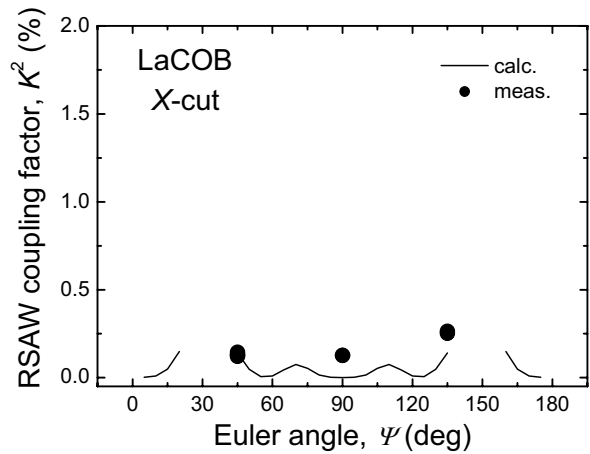
次に、図 4.18(LaCOB 結晶)、図 4.20(YCOB 結晶)における RSAW 電気機械結合係数  $K^2$  の実測値と計算値の比較結果について議論する。LaCOB 結晶と YCOB 結晶の基本カット X、Y、Z 面における RSAW の電気機械結合係数  $K^2$  は弱く、実測値と計算値とが完全に一致することはなかったが、すべての基本カット面で概ね実測プロファイルを再現することができた。ここでの不一致にも、伝搬速度と同様、実測と計算の双方の誤差要因が考えられる。電気機械結合係数  $K^2$  の実測では、中心周波数  $f_0$  近傍における IDT の放射アドミッタンス特性を測定し、クロストフィールドモデルによる計算値とのフィッティングから、電気機械結合係数  $K^2$  を求めた。このため IDT の電界を単純なモデルで置き換えたことによる誤差が考えられる。特に、RSAW の電気機械結合係数  $K^2$  は小さいため(伝搬速度  $v_f$  と  $v_m$  が接近している)、放射アドミッタンス特性の測定において、寄生コンダクタンスの影響を受け観測されにくいものもあった。また、伝搬速度の計算プロファイルから示唆されたように、Y 面にはビームステアリングが存在するため、Y 面の実測値がパワーフロー角を考慮していないことによる誤差も考えられる。これら誤差要因がそれぞれ実測結果に

どの程度反映されたかは検討の余地があるが、0.3%以下の小さな電気機械結合係数  $K^2$  がすべての結晶で類似した方位分布で得られたことから、実測値と計算値との不一致には実測による誤差よりも計算による誤差の方が大きく寄与していると考えられる。計算の誤差要因は計算に用いた材料定数であり、RSAW の電気機械結合係数  $K^2$  であるためすべりの圧電定数の測定誤差が直接反映される。 $X$  面では前述したモード分離の問題があり、実測値と計算値との比較は難しいため、以下、 $Y$  面と  $Z$  面に関して計算誤差を議論することにする。LaCOB 結晶と YCOB 結晶の電気機械結合係数プロファイルでは、実測値と計算値との一致の程度に差異がある。これは計算に用いた材料定数の測定誤差に起因している。LaCOB 結晶の  $Z$  面の電気機械結合係数プロファイルにおける不一致には、すべりの圧電定数  $d_{15}$  と  $d_{35}$  の測定誤差(5~7%)が寄与していると考えられる。図 4.23 に示した圧電定数  $d_{35}$  を変化させた場合の LaCOB 結晶  $Z$  面の  $K^2$  計算プロファイルからわかるように、圧電定数  $d_{35}$  の絶対値が増加するにつれて、 $\Psi = 0^\circ$ ( $X$  軸)、 $180^\circ$ ( $-X$  軸)で電気機械結合係数  $K^2$  は増加した。また、圧電定数  $d_{15}$  についても同様、その絶対値が増加するにつれて電気機械結合係数  $K^2$  は増加することを確認した。これより圧電定数  $d_{15}$  と  $d_{35}$  の測定誤差が、 $Z$  面の電気機械結合係数  $K^2$  の計算プロファイルに寄与していることがわかった。一方、YCOB 結晶の  $Z$  面の電気機械結合係数プロファイルにおける不一致の程度は LaCOB 結晶ほどではなかった。LaCOB 結晶と同様、圧電定数  $d_{15}$  と  $d_{35}$  の測定誤差が寄与していると考えられるが、それらの測定誤差が LaCOB 結晶と比べ~2.6%と小さいため、YCOB 結晶では比較的良い一致を示したと考えられる。 $Y$  面の電気機械結合係数プロファイルにおける不一致は、ビームステアリングが存在するため  $Y$  面の実測値がパワーフロー角を考慮していないことによる誤差に加え、すべりの圧電定数  $d_{15}$  と  $d_{35}$  の測定誤差にも起因しているものと推察される。 $Y$  面の純モード軸( $\Psi = 0^\circ, 180^\circ$ )における一致の程度が、LaCOB 結晶と YCOB 結晶とで異なるのは  $Z$  面と同様である。ここでの比較から、RSAW の電気機械結合係数に関して、伝搬速度と同様、 $X$  面と  $Z$  面では左右対称なプロファイルであるのに対し、 $Y$  面では左右非対称なプロファイルであることを確認した。

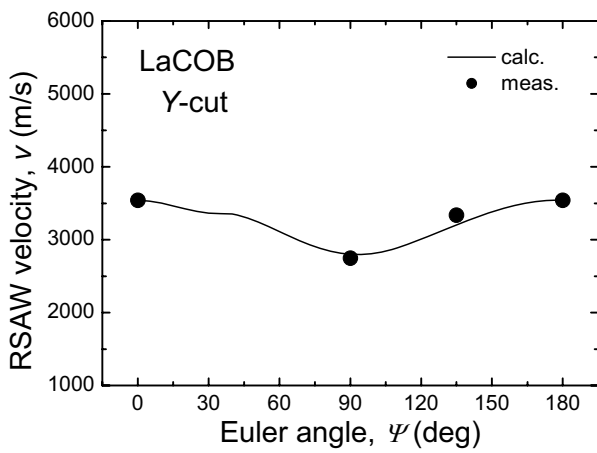
以上、実測値と計算値との比較から、決定した材料定数の確からしさをある程度確認することができた。特に伝搬速度を良く再現できたことから、弾性定数、即ち共振周波数の決定方法の妥当性が示唆された。また、RSAW の電気機械結合係数が弱いために実測値と計算値が完全に一致することはなかったが、全体にわたり小さい電気機械結合係数のプロファイルを再現することができた。



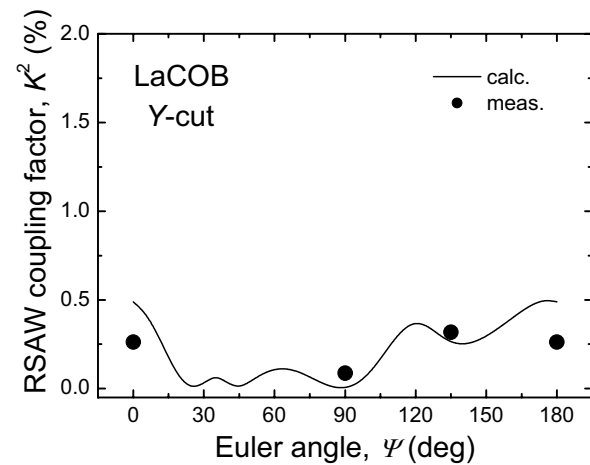
(a) Xカットにおける伝搬速度  $v$



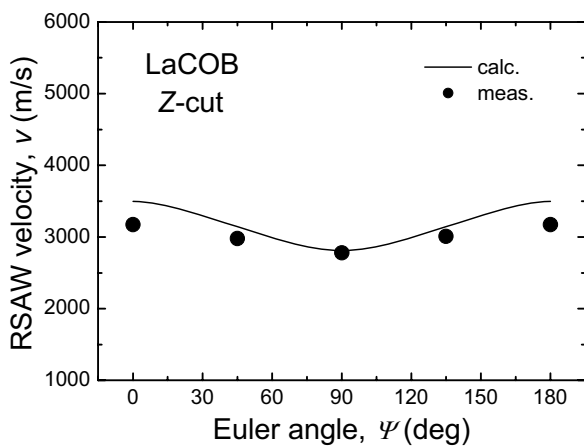
(d) Xカットにおける電気機械結合係数  $K^2$



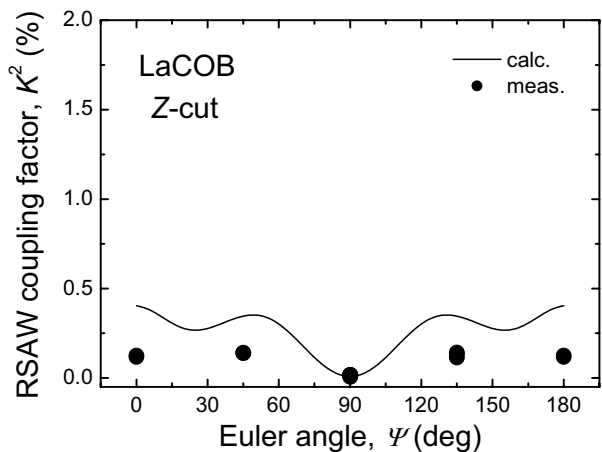
(b) Yカットにおける伝搬速度  $v$



(e) Yカットにおける電気機械結合係数  $K^2$



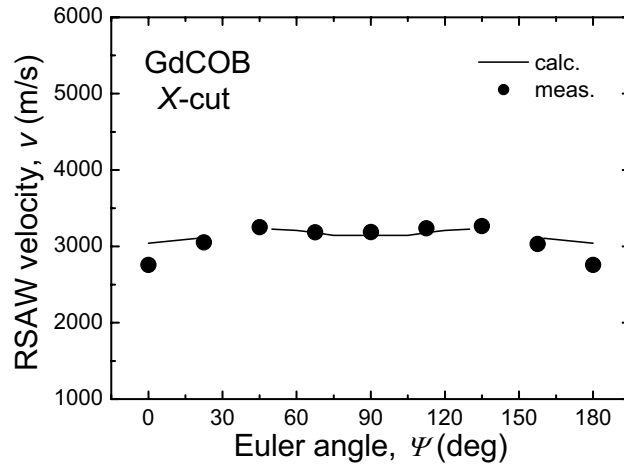
(c) Zカットにおける伝搬速度  $v$



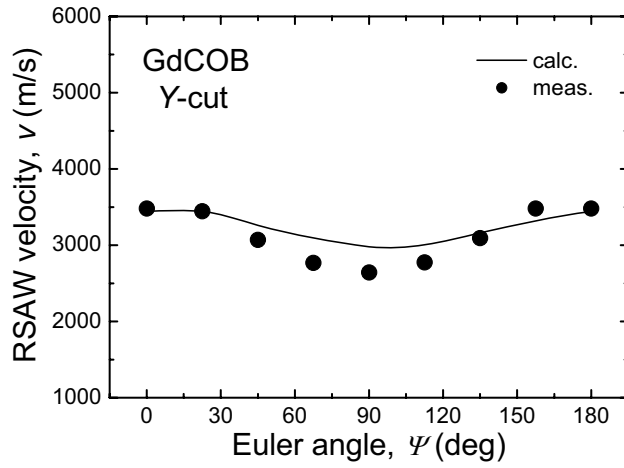
(f) Zカットにおける電気機械結合係数  $K^2$

図 4.18 LaCOB 結晶の基本カット X, Y, Z 面における RSAW 伝搬特性(伝搬速度  $V_R$  と電気機械結合係数  $K^2$ )の実測結果と計算結果. 黒丸が実測, 実線が計算.

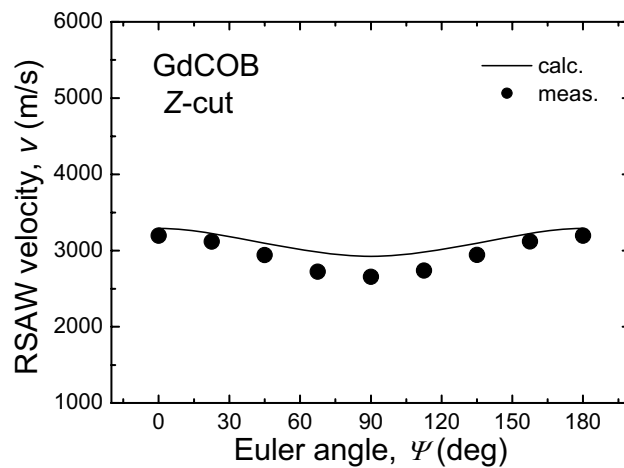




(a) Xカットにおける伝搬速度  $v$

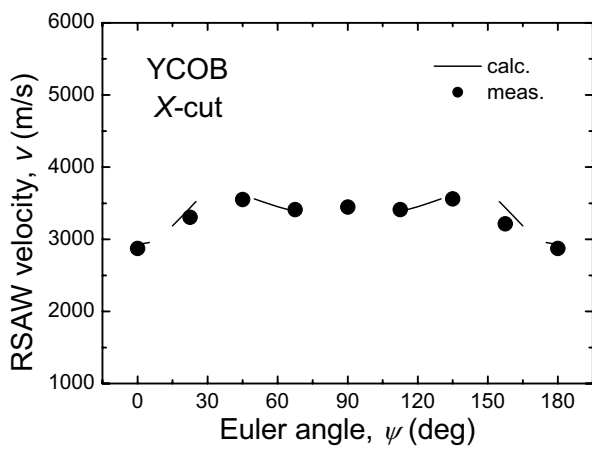


(b) Yカットにおける伝搬速度  $v$

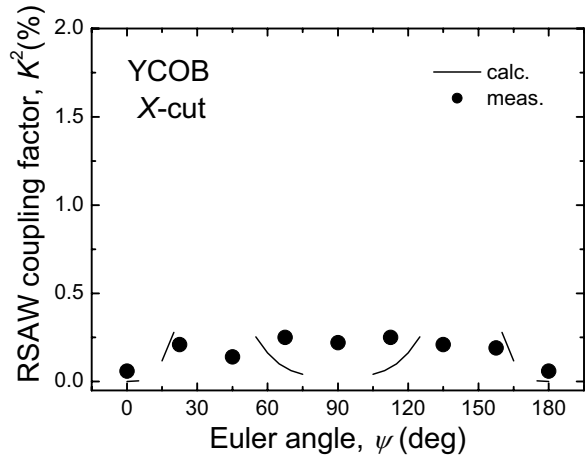


(c) Zカットにおける伝搬速度  $v$

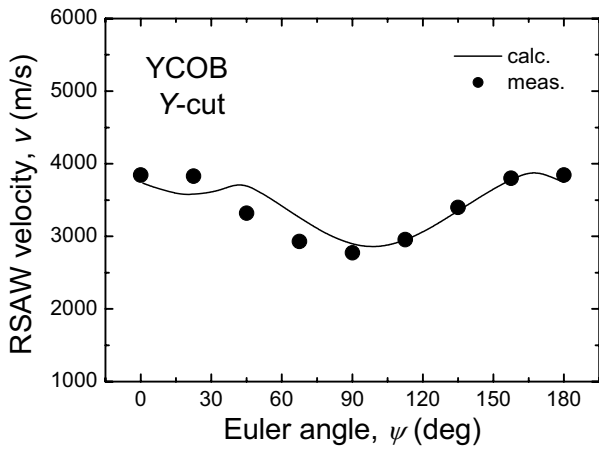
図 4.19 GdCOB 結晶の基本カット X, Y, Z 面における RSAW 伝搬特性(伝搬速度  $V_R$ ) の実測結果と計算結果<sup>14)</sup>. 黒丸が実測, 実線が計算.



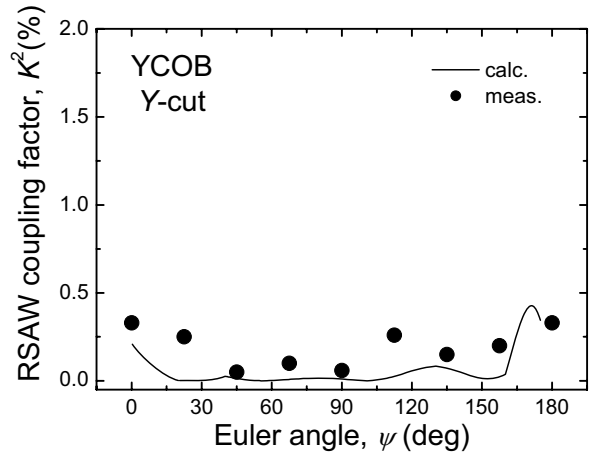
(a) Xカットにおける伝搬速度  $v$



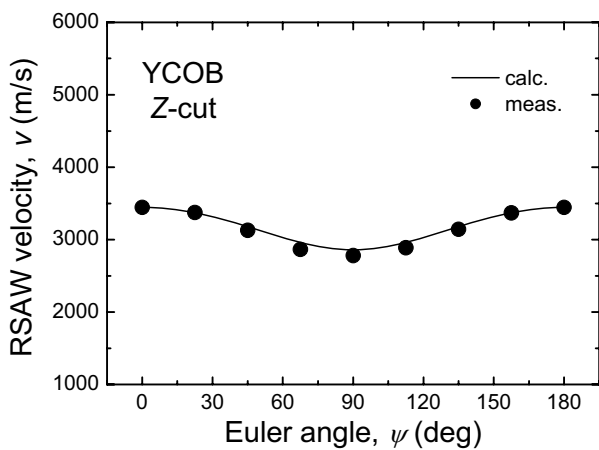
(d) Xカットにおける電気機械結合係数  $K^2$



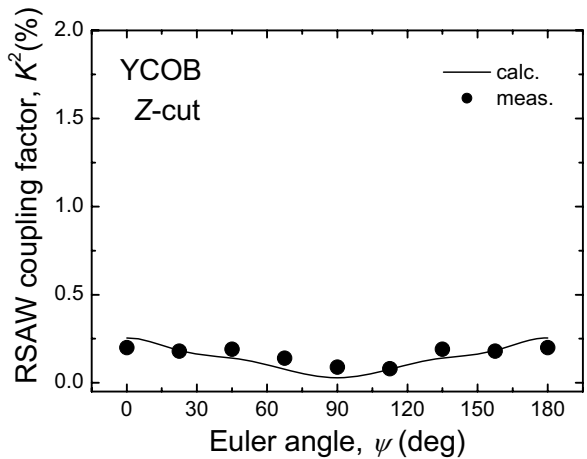
(b) Yカットにおける伝搬速度  $v$



(e) Yカットにおける電気機械結合係数  $K^2$



(c) Zカットにおける伝搬速度  $v$



(f) Zカットにおける電気機械結合係数  $K^2$

図 4.20 YCOB 結晶の基本カット X, Y, Z 面における R SAW 伝搬特性(伝搬速度  $V_R$  と電気機械結合係数  $K^2$ )の実測結果と計算結果. 黒丸が実測, 実線が計算.

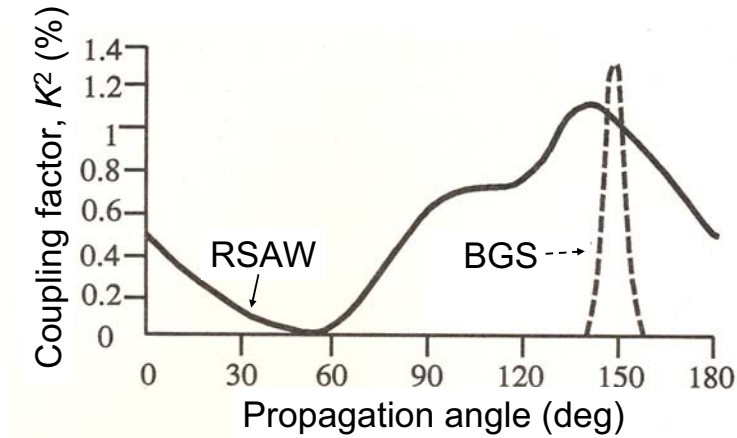


図 4.21 Xカット LiNbO<sub>3</sub>における電気機械結合係数伝搬方位依存性<sup>9)</sup>. RSAWは方位に対して滑らかに変化するが, BGS波は方位により特性が急激に変化する.

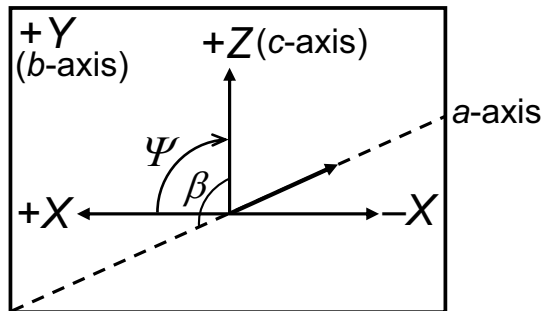


図 4.22 Yカット面における純モード軸  $X, Y, Z$  と結晶軸  $a, b, c$  との関係. RCOB 結晶の Yカット面には対称性がなく,  $X$  軸と  $a$  軸は一致しない.

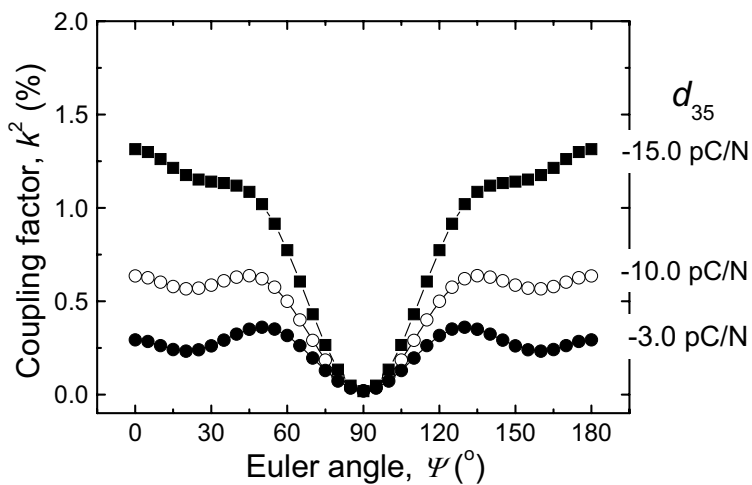


図 4.23 圧電定数  $d_{35}$  を変化した場合の LaCOB 結晶の Z 面における電気機械結合係数  $K^2$  計算プロファイル. 圧電定数  $d_{35}$  の増加に伴い  $\Psi = 0^\circ, 180^\circ$  で  $K^2$  が増加.

### 4.3.2 全方位計算による最適伝搬方位の探索

実測から、Yカット面のX軸方向で優れたRSAW伝搬特性を示すことがわかった。また前項で、基本カット面におけるRSAWの伝搬速度 $V_R$ と電気機械結合係数 $K^2$ の実測値と計算値とを比較し、計算機解析に用いた材料定数の妥当性を示した。本項では、基本カット面以外のRSAW伝搬特性を調べるため、全方位計算によりRSAWの伝搬速度 $V_R$ と電気機械結合係数 $K^2$ の最適なカット面・伝搬方位を探索した結果について述べる。

基本カットでは、その面内での伝搬方位をオイラー角 $\Psi$ のみを振ることで調べた。全方位計算では、オイラー角を以下のように振ることでRSAW伝搬特性を空間的に調べた。全方位計算でのオイラー角の変化は、 $\Phi$ が $30^\circ$ 刻みの $0\sim 180^\circ$ 、 $\Theta$ が $30^\circ$ 刻みの $0\sim 360^\circ$ 、 $\Psi$ が $5^\circ$ 刻みの $0\sim 180^\circ$ とした。全方位計算の結果、LaCOB結晶とYCOB結晶で、基本カット面上よりも良好なRSAW伝搬特性を示す方位が、オイラー角 $\Phi = 180^\circ$ に存在することがわかった。図4.24と図4.25に、LaCOB結晶の $\Phi = 180^\circ$ におけるRSAW伝搬速度方位依存性と電気機械結合係数方位依存性をそれぞれ示す。同様に、図4.26と図4.27にYCOB結晶のそれらを示す。各図の(a)は3次元マッピングを、(b)は2次元マッピングをそれぞれ示す。

LaCOB結晶では、基本カット面で得られたYカット面のX軸方向における $V_R$ (実測 3550 m/s)、 $K^2$ (実測 0.26%)と比べ、 $V_R$ があまり変化せず $K^2$ が大きく増大する方位が見つかった。その方位は、図4.25(b)に示す4つの方位①、②、③、④である。このうち①と④ならびに②と③はそれぞれ対称関係にある。方位③と④はそれぞれオイラー角が $R(180^\circ, 34^\circ, 159^\circ)$ と $R(180^\circ, 146^\circ, 159^\circ)$ である。前者は $V_R\sim 3500$  m/s、 $K^2\sim 0.9\%$ を示し、後者でも同様に $V_R\sim 3500$  m/s、 $K^2\sim 0.9\%$ を示した。但し、前項で述べた $K^2$ の実測値と計算値との比較において両者が完全には一致せず、Yカット面で計算値の方が実測値よりも大きかったことから、ここに示した $K^2$ は若干過大評価されている。しかし、この方位に最適伝搬方位があることは、次に示すYCOB結晶から確からしいと考えられる。Yカット面で実測の最適値( $V_R = 3550$ 、 $K^2 = 0.26\%$ )が得られた方位は、オイラー角で $R(180^\circ, 90^\circ, 0^\circ)$ と $R(180^\circ, 90^\circ, 180^\circ)$ であったことから、方位③と④は伝搬速度がほとんど変わらず電気機械結合係数が大きく増大する最適方位であると同時に、Yカット面のX(厳密には-X)軸方向と非常に近い方位であることがわかった。

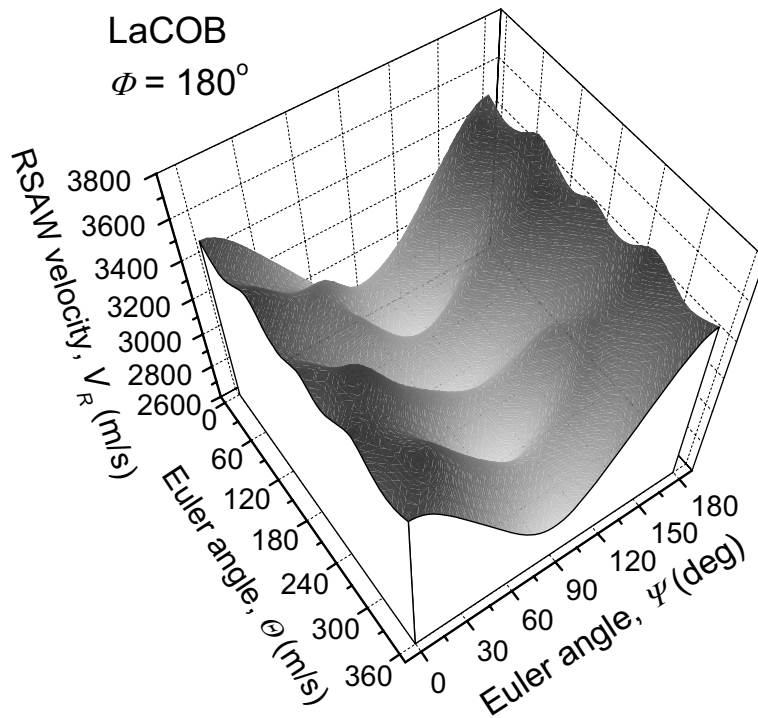
また、YCOB結晶でもLaCOB結晶と同様、Yカット面のX軸方向における $V_R$ (実測 3850 m/s)、 $K^2$ (実測 0.33%)と比べ、 $V_R$ は若干低下するが、 $K^2$ が大きく増大する方位が見つかった。その方位は、図4.27(b)に示す4つの方位①、②、③、④である。このうち①と④ならびに②と③はLaCOB結晶のときと同様にそれぞれ対称関係にある。方位③と④はそれぞれオイラー角が $R(180^\circ, 51^\circ, 167^\circ)$ と $R(180^\circ, 120^\circ, 167^\circ)$ である。前者は $V_R\sim 3600$  m/s、 $K^2\sim 0.7\%$ を示し、後者は $V_R\sim 3700$  m/s、 $K^2\sim 0.7\%$ を示した。方位③と④はLaCOB結晶と同様、伝搬速度は若干低下するが電気機械

結合係数が大きく増大する方位であると同時に、 $Y$  カット面の  $X$ (厳密には $-X$ )軸方向と非常に近い方位であることがわかった。

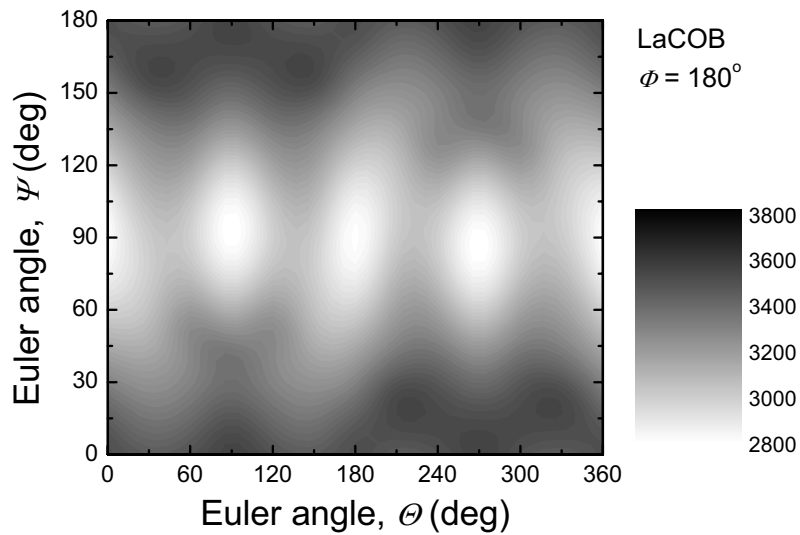
以上より、LaCOB 結晶と YCOB 結晶の RSAW 特性に関して、 $Y$  カット面の  $X$  軸方向の近傍に、伝搬速度と電気機械結合係数の最適伝搬方位が存在することが示唆された。上記の 4 つのカットはすべてオイラー角  $\Phi = 180^\circ$  であるため、2 回回転カットである。結晶からカットを切り出す加工面を考えた場合に、基本カットのような無回転カットが理想的ではあるが、既存の SAW 素子材料には 1 回あるいは 2 回回転カットが多く、中には 3 回回転カットもある。ここで、表 4.4 に代表的な SAW 素子材料の RSAW 特性との比較を示す。既存材料名には略称を用いてあるが、それらの材料の諸特性を含めて詳細は付録 A.1 を参照されたい。LaCOB 結晶、GdCOB 結晶、YCOB 結晶の  $Y$  カット面  $X$  軸方向における RSAW 特性は、 $K^2$  が 0.3% と小さい上に、 $TCD$  もゼロでないことから、既存材料を凌駕するには至らない。LaCOB 結晶の  $(180^\circ, 34^\circ, 159^\circ)$  カットならびに  $(180^\circ, 146^\circ, 159^\circ)$  カットでは、前述したように若干過大評価されてはいるが  $K^2$  が 0.9%、 $V_R$  が 3500 m/s であることから、両特性は既存材料を凌ぐ値を示したと言える。但し、このカットにおける  $TCD$  には検討の余地があるため、既存材料のようなゼロ  $TCD$  を有するカットかどうかは未知である。また、YCOB 結晶の  $(180^\circ, 51^\circ, 167^\circ)$  カットならびに  $(180^\circ, 120^\circ, 167^\circ)$  カットでは、 $K^2$  がともに 0.7%、 $V_R$  がそれぞれ 3600 m/s と 3700 m/s であることから、LaCOB 結晶と同様  $TCD$  は検討の余地があるが、両特性は既存材料を凌ぐ値を示したと言える。特に、YCOB 結晶の伝搬速度は非常に高速であり、かつ誘電率も低いことから、理論解析により  $TCD$  や  $TCF$  の優れたカットが見出せれば、高周波数帯での SAW フィルタとして大いに期待できる。

表 4.4 代表的な SAW 素子材料の RSAW 特性との比較

材料	点群	カット	$K^2$ [%]	$TCD$ [ppm/°C]	$V_R$ [m/s]	参考文献
LGS	32	$(0^\circ, 140^\circ, 25^\circ)$	0.38	0	2762	15)
		$(15^\circ, 151^\circ, 40.5^\circ)$	0.41	0	2860	16)
LTG	32	$(13^\circ, 150^\circ, 40.5^\circ)$	0.5	0	2690	17)
水晶	32	ST	0.1	0	3159	1)
LBO	4mm	$(40^\circ, 90^\circ, 90^\circ)$	0.8	0	3467	18)
LT	3m	$X-112^\circ Y$	0.8	-18	3296	19)
LN	3m	$128^\circ Y-X$	5.5	-74	3960	20, 21)
LaCOB	m	$Y-X$	0.3	48	3550	4, 13)
		$(180^\circ, 34^\circ, 159^\circ)$	0.9	-	3500	-
		$(180^\circ, 146^\circ, 159^\circ)$	0.9	-	3500	-
GdCOB	m	$Y-X$	0.3	91	3480	11, 13, 14)
YCOB	m	$Y-X$	0.3	76	3850	11, 13)
		$(180^\circ, 51^\circ, 167^\circ)$	0.7	-	3600	-
		$(180^\circ, 120^\circ, 167^\circ)$	0.7	-	3700	-

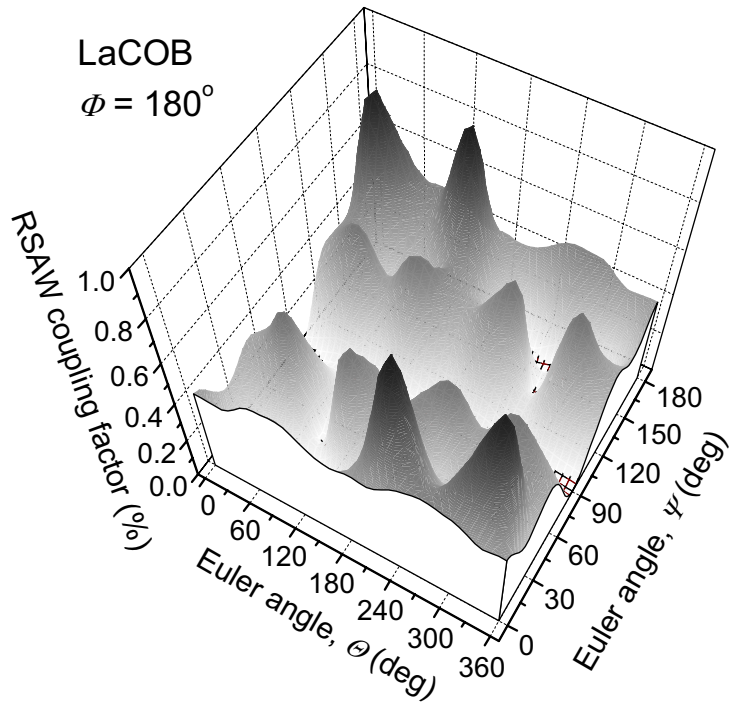


(a) 3次元マッピング

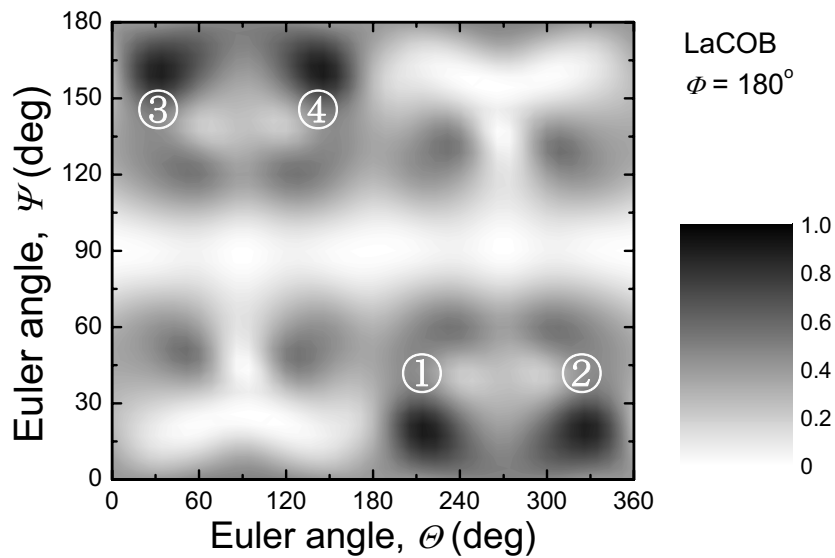


(b) 2次元マッピング

図 4.24 LaCOB 結晶の RSWA 伝搬速度  $V_R$  の  $\phi = 180^\circ$  における方位依存性 (a)3次元マッピング, (b)2次元マッピング.

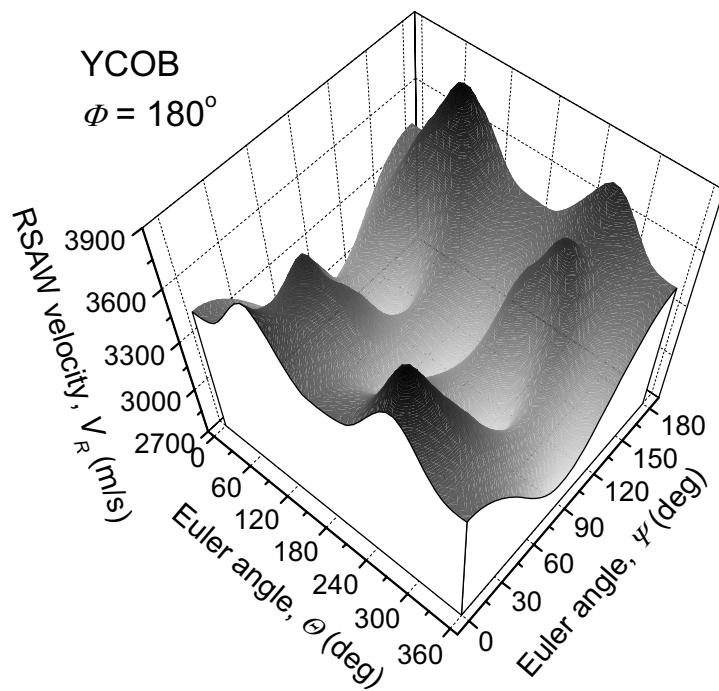


(a) 3次元マッピング

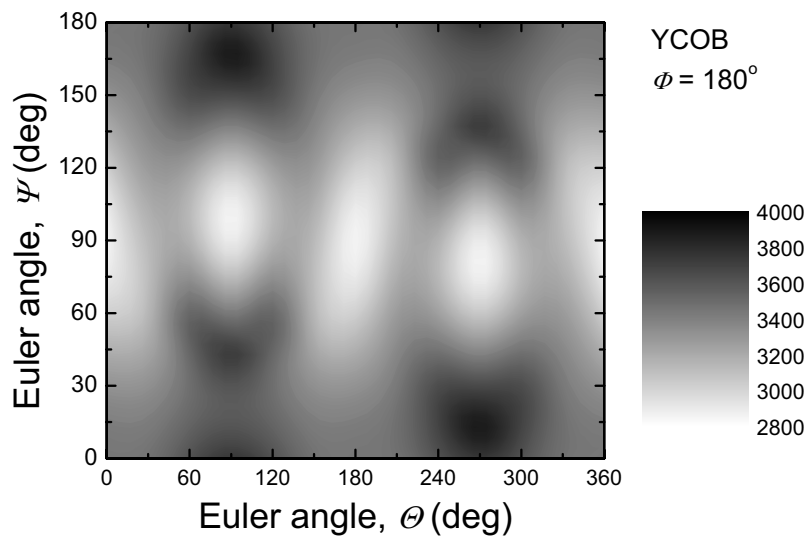


(b) 2次元マッピング

図 4.25 LaCOB 結晶の RSAW 電気機械結合係数の  $\phi = 180^\circ$  における方位依存性 (a)3次元マッピング, (b)2次元マッピング.



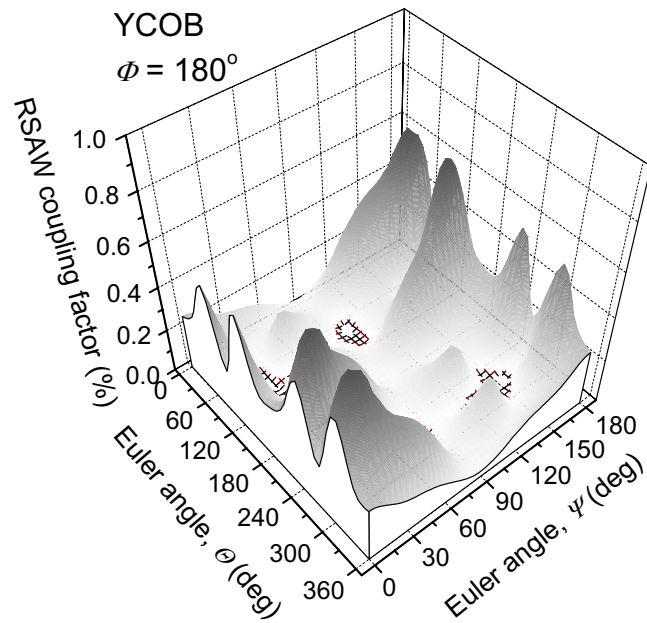
(a) 3次元マッピング



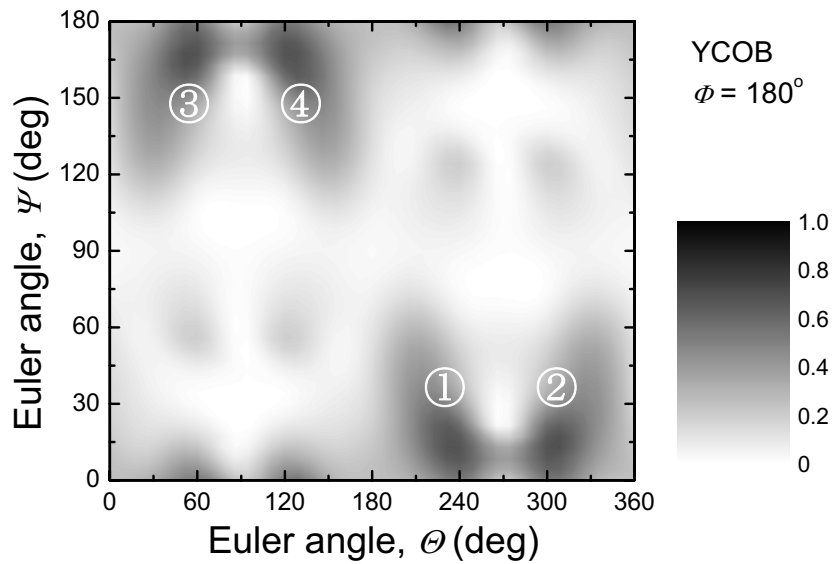
(b) 2次元マッピング

図 4.26 YCOB 結晶の RSAW 伝搬速度  $V_R$  の  $\phi = 180^\circ$  における方位依存性 (a)3次元マッピング, (b)2次元マッピング.





(a) 3次元マッピング



(b) 2次元マッピング

図 4.27 YCOB 結晶の RSAW 電気機械結合係数の  $\phi = 180^\circ$  における方位依存性 (a)3次元マッピング, (b)2次元マッピング.

## 4.4 結言

本章では、RCOB 結晶の SAW 素子用圧電材料としての可能性を検証するため、実験的・理論的評価を行った結果について述べた。以下、その内容をまとめる。

実験的評価では、各結晶の基本カット  $X$ 、 $Y$ 、 $Z$  面における SAW 特性を調べた。その結果、RSAW と LSAW の基本カット面における伝搬方位依存性を明らかにした。また、各結晶の実測の伝搬速度を弾性定数ならびに密度と併せて論じた。これより得られた結果を以下に示す。

- LaCOB 結晶では、 $Y$  カット面の  $X$  軸方向で最適の RSAW 特性( $v \sim 3500$  m/s、 $K^2 \sim 0.3\%$ 、 $TCD = 48$  ppm/ $^{\circ}$ C)を示し、 $Z$  カット面の  $Y$  軸方向で最適の LSAW 特性( $v \sim 4000$  m/s、 $K^2 \sim 0.6\%$ 、 $TCD = 65$  ppm/ $^{\circ}$ C)を示すことがわかった。
- GdCOB 結晶では、 $Y$  カット面の  $X$  軸方向で最適の RSAW 特性( $v \sim 3500$  m/s、 $K^2 \sim 0.3\%$ 、 $TCD = 91$  ppm/ $^{\circ}$ C)を示し、 $Z$  カット面の  $Y$  軸方向で最適の LSAW 特性( $v \sim 3900$  m/s、 $K^2 \sim 0.9\%$ 、 $TCD = 77$  ppm/ $^{\circ}$ C)を示すことがわかった。
- YCOB 結晶では、 $Y$  カット面の  $X$  軸方向で最適の RSAW 特性( $v \sim 3900$  m/s、 $K^2 \sim 0.3\%$ 、 $TCD = 76$  ppm/ $^{\circ}$ C)を示し、 $Z$  カット面の  $Y$  軸方向で最適の LSAW 特性( $v \sim 4300$  m/s、 $K^2 \sim 0.8\%$ 、 $TCD = 77$  ppm/ $^{\circ}$ C)を示すことがわかった。
- すべての結晶に共通して、RSAW では  $Y$  カット面の  $X$  軸方向が、LSAW では  $Z$  カット面の  $Y$  軸方向が優れた伝搬特性を示すことを明らかにした。
- SAW 伝搬速度は弾性定数の対角マトリクス成分と結晶の密度に依存することを、実測の伝搬速度と実際に決定した弾性定数ならびに密度を比較することで確認した。
- YCOB 結晶の非常に高速な伝搬速度には、密度の低さ( $3270$  kg/ $m^3$ )が大きく寄与していることを確認した。

材料定数を用いた理論的評価では、まず各結晶の基本カット面における RSAW 伝搬特性の計算結果と実測結果を比較した。これより得られた結果を以下に示す。

- すべての結晶に関して、RSAW 伝搬速度の実測値と計算値が比較的良く一致した。これより、伝搬速度に大きく寄与する弾性定数の対角マトリクス成分  $s_{ij}^E (i=j=1\sim 6)$  の算出方法、即ち共振周波数の決定方法の妥当性を示した。
- RSAW 伝搬速度の最大値と最小値がともに  $Y$  面上に存在し、さらにその最小値が  $Z$  面上の最小値と一致することがわかった。
- 基本カット面における伝搬速度ならびに電気機械結合係数の方位依存性において、 $X$  面と  $Z$  面では左右対称なプロファイルであるのに対し、 $Y$  面では左右非対称なプロファイルであることを確認し、同時に後者からビームステアリングの存在が示唆された。

- 一般に RSAW の電気機械結合係数は小さいため、その計算値と実測値が完全に一致することはなかったが、全体にわたり小さい電気機械結合係数のプロファイルを再現することができた。

また、材料定数を用いた理論的評価では、全方位計算による RSAW 最適伝搬方位の探索を行った。それより示唆された RSAW 伝搬特性を代表的な SAW 素子材料の特性値と比較した。これより得られた知見を以下に示す。

- 全方位計算の結果、LaCOB 結晶の 2 回回転カット( $180^\circ$ ,  $34^\circ$ ,  $159^\circ$ )ならびに( $180^\circ$ ,  $146^\circ$ ,  $159^\circ$ )において、 $K^2$  が $\sim 0.9\%$ 、 $v$  が $\sim 3500$  m/s を示すことがわかった。但し、 $Y$  カット面の  $K^2$  伝搬方位依存性において実測値と計算値が完全には一致しなかったことから、ここでの  $K^2$  が若干過大評価されてはいるが、この方位がおおよそ最適伝搬方位であることが YCOB 結晶の結果から伺えた。
- 全方位計算の結果、YCOB 結晶の 2 回回転カット( $180^\circ$ ,  $51^\circ$ ,  $167^\circ$ )ならびに( $180^\circ$ ,  $120^\circ$ ,  $167^\circ$ )において、 $K^2$  がともに $\sim 0.7\%$ 、 $v$  がそれぞれ $\sim 3600$  m/s、 $\sim 3700$  m/s を示すことがわかった。
- すべての結晶に共通して、 $Y$  カット面の  $X$  軸方向が基本カット面における RSAW 特性の最適伝搬方位であるが、その伝搬特性は  $K^2$  が $\sim 0.3\%$ と小さい上に  $TCD$  もゼロでないことから、既存材料を凌駕するには至らない。
- 上記の LaCOB 結晶ならびに YCOB 結晶の 2 回回転カットにおいて、 $TCD$  については未だ検討の余地があるが、伝搬速度  $v$  と電気機械結合係数  $K^2$  はともに既存材料を凌ぐ値を示す。

基本カット面における RSAW 最適伝搬特性は既存材料と比べ、電気機械結合係数  $K^2$  が概ね $\sim 0.3\%$ と小さく、伝搬速度  $v$  は同等あるいはそれ以上の値を示した。しかし、実測評価の範囲内では  $TCD = 0$  を示す方位が存在しなかったため、基本カット面における RSAW 最適伝搬特性が既存材料を凌駕するには至らないと言える。全方位計算の結果、LaCOB 結晶と YCOB 結晶の  $Y$  カット面  $X$  軸方向近傍の方位において、実測の最適値と比べ伝搬速度  $V_R$  がほとんど変わらず電気機械結合係数  $K^2$  が大きく増大することが示唆された。その方位における伝搬特性は LaCOB 結晶で  $K^2 \sim 0.9\%$ 、 $V_R \sim 3500$  m/s、YCOB 結晶で  $K^2 \sim 0.7\%$ 、 $V_R \sim 3600$  m/s あるいは $\sim 3700$  m/s であった。これより各結晶の両特性は既存材料を凌ぐ値を示すことが示唆されたが、 $TCD$  には検討の余地があるためこの方位が  $TCD = 0$  であるかは未知であり、 $TCD$  に関する詳細な理論解析が今後の課題である。尚、前章で述べたように、LaCOB 結晶ならびに YCOB 結晶における一部の圧電定数の温度係数から、 $TCD$  や  $TCF$  を低減することのできるカット面の存在が示唆されている。YCOB 結晶は伝搬速度が非常に高速であり、かつ誘電率も低いことから、理論解析により  $TCD$  の優れたカットが見出せれば、高周波帯での SAW フィルタ材料として期待できる。

## 参考文献

- 1) 日本学術振興会弾性波素子技術第 150 委員会・編: “弾性波デバイス技術”, オーム社 (2004).
- 2) 超音波便覧編集委員会・編: “超音波便覧”, 丸善 (1999).
- 3) H. Shimizu, K. Kodama, H. Takeda, T. Nishida, T. Shikida, S. Okamura and T. Shiosaki: “Evaluation of Material Constants and Temperature Properties in Lanthanum Calcium Oxoborate  $\text{LaCa}_4\text{O}(\text{BO}_3)_3$  Single Crystals”, Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 43, No. 9B, pp. 6716-6720 (2004).
- 4) H. Shimizu, H. Takeda, T. Nishida, T. Shikida, S. Okamura and T. Shiosaki, “Evaluation of Material Constants and Temperature Properties in Lanthanum Calcium Oxoborate  $\text{LaCa}_4\text{O}(\text{BO}_3)_3$  Single Crystals”, Proc. IEEE Ultrasonics Symp., pp. 1218-1222, (2004).
- 5) H. Shimizu, T. Nishida, M. Nishida, H. Takeda, and T. Shiosaki: “Dielectric, Elastic and Piezoelectric Constants of Lanthanum Calcium Oxoborate Single Crystals with Monoclinic Structure of Point Group  $m$ ”, Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 44, No. 9B, pp. 7059-7063 (2005).
- 6) H. Shimizu, A. Kondo, M. Nishida, H. Takeda, T. Nishida and T. Shiosaki: “Dielectric, Elastic, Piezoelectric Constants and Surface Acoustic Wave Properties of Rare-Earth Calcium Oxoborates,  $\text{RCa}_4\text{O}(\text{BO}_3)_3$  ( $R = \text{La, Gd, Y}$ ), Single Crystals”, Extended Abstracts in 12th US-Japan Seminar on Dielectric and Piezoelectric Ceramics, pp. 145-148 (2005).
- 7) W. R. Smith, H. M. Gerard and J. H. Collins, T. M. Reeder and H. J. Show: “Analysis of Interdigital Surface Wave Transducers by USE of an Equivalent Circuit Model”, IEEE Trans. Microwave Theory Tech., MMT-17, pp. 856-864 (1969).
- 8) W. R. Smith: “Experimental Distinction between Crossed-Field and In-Line Three-Port Circuit Models for Interdigital Transducers”, IEEE Trans. Microwave Theory Tech., MMT-17, pp. 960-964 (1974).
- 9) 橋本研也・著: “弾性表面波(SAW)デバイスシミュレーション技術入門”, 株式会社リアライズ社 (1997).
- 10) 中尾日六士: “希土類・カルシウム・オキシボレート結晶の育成と応用に関する研究”, 大阪大学大学院工学研究科 学位論文 (2002).
- 11) H. Nakao, M. Nishida, T. Shikida, H. Shimizu, H. Takeda and T. Shiosaki: “Growth and SAW Properties of Rare-Earth Calcium Oxoborate Crystals”, Journal of Alloys and Compounds, Vol. 408-412, pp. 582-585 (2006).
- 12) James J. Campbell and William R. Jones: “A Method for Estimating Optimal Crystal Cuts and Propagation Directions for Excitation of Piezoelectric Surface Waves”, IEEE Trans. Sonics & Ultrason., SU-15, pp. 209-217 (1968).

- 13) H. Shimizu, A. Kondo, M. Nishida, H. Takeda, T. Nishida and T. Shiosaki: “Electro-Acoustical Constants and Rayleigh SAW Propagation Characteristics of Rare-Earth Calcium Oxoborate Single Crystals”, 2005 Proc. IEEE Ultrason. Symp., pp. 934-938, (2005).
- 14) T. Nishida, H. Shimizu and T. Shiosaki: “Theoretical Calculation of the Surface Acoustic Wave Characteristics of GdCOB Single Crystals”, Journal of Alloys and Compounds, Vol. 408-412, pp. 577-581 (2006).
- 15) K. Inoue and K. Sato: “Propagation Characteristics of Surface Acoustic Waves on Langasite”, Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 37, No. 5, pp. 2909-2913 (1998).
- 16) M. Adachi, T. Karaki and W. Miyamoto: “Surface Acoustic Wave Properties of  $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$  (Langasite) Single Crystal”, Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 38, No. 5, pp. 3283-3287 (1999).
- 17) N. Onozato, M. Adachi and T. Karaki: “Surface Acoustic Wave Properties of  $\text{La}_3\text{Ta}_{0.5}\text{Ga}_{5.5}\text{O}_{14}$  Single Crystals”, Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 39, No. 5, pp. 3028-3031 (2000).
- 18) T. Shiosaki, M. Adachi and A. Kawabata: “Growth and Properties of Piezoelectric Lithium Tetraborate Crystal for BAW and SAW devices”, 1986 IEEE Int. Symp. on Applications of Ferroelectrics, pp. 455-464 (1986).
- 19) H. Hirano, T. Fukuda, S. Matsumura, and S. Takahashi, “Proceedings of the First Meeting on Ferroelectric Materials and Their Applications”, Kyoto, Japan, pp. 81-86 (1978).
- 20) 佐藤弘明, 目黒敏靖, 山之内和彦, 柴山乾夫: “日本音響学会誌”, Vol. 30, pp. 549-556 (1974).
- 21) K. Shibayama, K. Yamanouchi, H. Sato and T. Meguro: “Optimum cut for rotated Y-cut  $\text{LiNbO}_3$  crystal used as the substrate of acoustic-surface-wave filters”, Proc. IEEE, Vol. 64, No. 5, pp. 595-597 (1976).

## 第 5 章 結論

本論文は、単斜晶系の点群  $m$  に属する圧電結晶の材料定数評価方法を確立し、弾性表面波特性への興味を持たれた希土類カルシウムオキシボレート結晶に関して、確立した評価方法を適用して材料定数を決定し、弾性表面波特性の検証を実験的かつ理論的に行った結果についてまとめたものである。本研究により明らかになった事項はそれぞれ各章の「結言」の項に説明したので、ここでは各章における主要な成果だけをまとめ、最後に今後の課題と展望について述べる。

第 2 章では、点群 2 のカットを用いた場合に、点群  $m$  で利用可能な振動モードや算出可能な定数について検討した。その結果、4 個すべての誘電率、13 個のうちの 8 個の弾性定数、10 個のうちの 4 個の圧電定数を算出できることを明らかにした。点群 2 の既存カットを用いて求められない弾性定数と圧電定数を算出するための新たなカットを検討した結果、すべりの弾性定数  $s_{44}^E$ 、 $s_{66}^E$  をモード結合なく純粋に励振される  $d_{26}$  縦効果面内すべり振動を用いて、それぞれ圧電定数  $d_{24}$ 、 $d_{26}$  とともに算出する方法を考案した。さらに、点群 2 のカットを用いて算出できない弾性定数  $s_{35}^E$ 、 $s_{13}^E$ 、 $s_{15}^E$  を  $(ZXw)\theta^\circ$  ( $\theta = 22.5, 45, 135$  あるいは  $\pm 22.5, 45$ ) の横効果長さ伸び振動を用いて算出可能であることを明らかにし、結果、弾性定数  $s_{25}^E$ 、 $s_{46}^E$  も算出可能になったことで、点群  $m$  における 13 個すべての弾性定数の算出が可能になった。また、 $(ZXw)\theta^\circ$  ( $\theta = 45, 135$  あるいは  $\pm 22.5$ ) の横効果長さ伸び振動を用いて、すべりの圧電定数  $d_{15}$ 、 $d_{36}$  を算出可能であることを見出した。棒柱試料  $X$ -bar と  $Z$ -bar の縦効果厚み伸び振動を用いて、圧電定数  $d_{11}$ 、 $d_{33}$  を独立に評価する方法を考案したが(第 2 章)、希土類カルシウムオキシボレート結晶のような誘電率が小さい圧電結晶に対しては、共振 - 反共振法によるこれらの評価が困難であるため、第 3 章でその評価に  $d_{33}$  メータが有効であることを示した。

第 3 章では、確立した材料定数の評価方法を点群  $m$  に属する  $RCOB$  結晶の材料定数評価に適用し、それらの材料定数を決定した。また、評価に用いたバルク単結晶の作製やその諸特性評価についても行った。Cz 法により作製した  $LaCOB$  結晶、 $GdCOB$  結晶、 $YCOB$  結晶に関して圧電極性を調べた結果、結晶外形と結晶軸・圧電軸に関係があることを見出した。化学腐蝕法によるエッチピット観察により、エッチピットパターンと結晶軸・圧電軸の関係を明らかにしたと同時に、 $X$  面と  $Y$  面では正極性の面の方が負極性の面よりも速く腐蝕されることを見出した。材料定数に関して、希土類カルシウムオキシボレート結晶の誘電率が既存の弾性波素子用圧電結晶である水晶や  $LBO$  と同様に小さいことを見出したと同時に、希土類カルシウムオキシボレート結晶の中でも格子定数の小さな  $YCOB$  結晶が最小の誘電率を

示すことを明らかにした。希土類カルシウムオキシボレート結晶の弾性定数に関して、対角マトリックス成分  $s_{ij}^E (i=j=1\sim 6)$  が非対角マトリックス成分  $s_{ij}^E (i\neq j)$  と比べ大きいという既存の圧電結晶と同様の知見を確認したと同時に、圧電軸方向の硬さ  $c_{ij}^E (i=j=1, 2, 3)$  が既存の圧電結晶の中でも中間的なものであることを明らかにした。また、希土類カルシウムオキシボレート結晶の圧電定数ならびに電気機械結合係数が既存の圧電結晶と比べ比較的小さいこと(最大でも LaCOB 結晶の  $d_{26} = 10.6$  pC/N、 $k_{26} = 19\%$ )を明らかにした。さらに、圧電定数に関して正負双方の符号の温度係数が存在したことから、*TCD* や *TCF* を低減することのできるカット面の存在が示唆された。

第 4 章では、希土類カルシウムオキシボレート結晶の SAW 素子用圧電材料としての可能性を検証するため、実験的・理論的評価を行った。希土類カルシウムオキシボレート結晶の基本カット面において SAW 特性の実測評価を行った結果、RSAW が Y カット面の X 軸方向で、LSAW が Z カット面の Y 軸方向で優れた伝搬特性(伝搬速度と電気機械結合係数)を示すことが明らかになった。SAW 伝搬速度は弾性定数の対角マトリックス成分と結晶の密度に依存することを、実測の伝搬速度と実際に決定した弾性定数ならびに密度を比較することで確認した。材料定数を用いた計算機解析の結果、RSAW 伝搬速度の最大値と最小値がともに Y カット面上に存在し、さらにその最小値が Z カット面上の最小値と一致することを見出した。さらに、基本カット面における伝搬速度ならびに電気機械結合係数の方位依存性で、X カット面と Z カット面では左右対称なプロファイルであるのに対し、Y カット面では左右非対称なプロファイルであることを確認し、同時に後者からビームステアリングの存在が示唆された。材料定数を用いた全方位計算の結果、LaCOB 結晶では 2 回回転カット( $180^\circ, 34^\circ, 159^\circ$ )と( $180^\circ, 146^\circ, 159^\circ$ )が最適伝搬方位( $K^2 \sim 0.9\%$ 、 $v \sim 3500$  m/s)であることが、さらに YCOB 結晶では 2 回回転カット( $180^\circ, 51^\circ, 167^\circ$ )と( $180^\circ, 120^\circ, 167^\circ$ )が最適伝搬方位( $K^2$  がともに  $\sim 0.7\%$ 、 $v$  がそれぞれ  $\sim 3600$  m/s と  $\sim 3700$  m/s)であることが示唆された。両結晶のこれら 2 回回転カットにおける RSAW 伝搬特性は、*TCD*こそ未知であるものの伝搬速度  $V_R$  と電気機械結合係数  $K^2$  はともに既存材料を凌ぐものであった。

本研究で、希土類カルシウムオキシボレート結晶の誘電性・圧電性は既存材料を凌駕するほどのものではなく、加工し易い基本カット面においてそれらに匹敵するような RSAW 特性を示さないことがわかったが、算出した材料定数を用いて行った全方位計算により、Y カット面の X 軸(厳密には -X 軸)方向近傍に、電気機械結合係数が大きく向上する伝搬方位が存在することが示唆された。この方位における伝搬特性(伝搬速度と電気機械結合係数)は既存材料を凌ぐ値を示したため、この方位における伝搬特性を今後実験的に確認する必要がある。また、SAW 素子としての重要特性である *TCD* の理論的評価も同様に課題である。用途にもよるが、ある程

度小さな  $TCD$  が示されれば、実用に向け大きく期待され得るものと考えられる。特に、密度の低い YCOB 結晶の示す高速の RSAW 伝搬速度は、LN の  $128^\circ Y-X$  カットにこそ劣るが、他の既存材料と同等以上の値を示した。さらに、YCOB 結晶は希土類カルシウムオキシボレート結晶の中でも低誘電率であり、かつ比較的大型のバルク単結晶が得られることから、SAW フィルタ材料としての可能性は十分にある。

さて、本研究で確立した点群  $m$  における材料定数の評価方法は、本研究で対象とした希土類カルシウムオキシボレート結晶の評価にとどまるものではない。近年、圧電材料に関して、革命的な進歩が見られる。これまではジルコン酸チタン酸鉛 (PZT) セラミックスなどのペロブスカイト酸化物が広く用いられてきたが、1980 年代に、これよりも圧電定数が 4 倍以上大きく ( $d_{33} = 1000$  あるいは  $1570$  pC/N)、電気機械結合係数が 90% を越す材料が見つかった。この材料は、複合ペロブスカイト酸化物(リラクサー)の  $ABO_3$  構造の  $B$  サイトに電荷の異なる 2 種類のイオンを含む複合酸化物  $Pb(B'B'')O_3$  とチタン酸鉛 ( $PbTiO_3$ : PT) とを均一に混ぜた固溶体であり、その組成比によって 2 つの相に分かれる境界(モルフォトロピック相境界: MPB)付近で巨大な圧電効果の増強が見られる。最近、この巨大圧電効果の発現に関する理論・実験の両面の研究で大きな進展があった。それによると、MPB では対称性が三方晶系と正方晶系よりも低下し、その中間にある低対称相(斜方晶系あるいは単斜晶系)になることで分極回転が容易になり、大きな歪みが誘起され、これがこの巨大圧電効果発現の起因である。ここで言う単斜晶系は、正方晶系  $P4mm$  と三方晶系  $R3m$  両相の部分群で、空間群  $Cm$  (点群  $m$ ) である。現在、このように点群  $m$  に属し巨大圧電効果を示す圧電結晶が、アクチュエータなどの応用面から脚光を浴びている。本研究で確立した材料定数の評価方法が、点群  $m$  に属する圧電結晶の“一物性評価手法”としての役割を担い、その圧電特性評価の中心になることを、さらにその基礎的性質ならびに応用に関する端緒を開くことを願い、筆を置く。



# 付録

- A.1 材料定数の対称性と異方性媒質の材料定数
- A.2 32 晶族の記号とその諸性質
- A.3 歪みと応力の関係
- A.4 本論文中で使われている機械的・電氣的諸定数の意味
- A.5 圧電基本式の諸形式と定数相互の関係
- A.6 各種振動モードと軸の関係ならびに算出式
- A.7 点群  $m$  における物理的変数とオイラー角との関係
- A.8 圧電振動子の横効果と縦効果
- A.9 板状共振子を用いた圧電定数  $d_{11}$  と  $d_{33}$  の評価方法
- A.10 X 線回折実験の光学系
- A.11 弾性表面波の計算機解析の原理

## A.1 材料定数の対称性と異方性媒質の材料定数

ここでは、各点群について材料定数のテンソル対称性をまとめる。尚、マトリックス表示では対称行列になるので対角成分の右上半分のみを表示している。さらに、各点群における代表的な圧電結晶の特徴と材料定数についても記述する。

### 1 三斜晶系 (Triclinic system)

表 1 三斜晶系における材料定数の対称性

三斜晶系 (Triclinic system)		
弾性定数	圧電定数	誘電率
点群 1 (21 個)	(18 個)	(6 個)
$\begin{bmatrix} c_{11} & c_{12} & c_{13} & c_{14} & c_{15} & c_{16} \\ & c_{22} & c_{23} & c_{24} & c_{25} & c_{26} \\ & & c_{33} & c_{34} & c_{35} & c_{36} \\ & & & c_{44} & c_{45} & c_{46} \\ & & & & c_{55} & c_{56} \\ & & & & & c_{66} \end{bmatrix}$	$\begin{bmatrix} e_{11} & e_{12} & e_{13} & e_{14} & e_{15} & e_{16} \\ e_{21} & e_{22} & e_{23} & e_{24} & e_{25} & e_{26} \\ e_{31} & e_{32} & e_{33} & e_{34} & e_{35} & e_{36} \end{bmatrix}$	$\begin{bmatrix} \epsilon_{11} & \epsilon_{12} & \epsilon_{13} \\ & \epsilon_{22} & \epsilon_{23} \\ & & \epsilon_{33} \end{bmatrix}$

### 2 単斜晶系 (Monoclinic system)

表 2 単斜晶系における材料定数の対称性

単斜晶系 (Monoclinic system)		
弾性定数	圧電定数	誘電率
全点群共通 (13 個)	点群 2 (8 個)	(4 個)
$\begin{bmatrix} c_{11} & c_{12} & c_{13} & 0 & c_{15} & 0 \\ & c_{22} & c_{23} & 0 & c_{25} & 0 \\ & & c_{33} & 0 & c_{35} & 0 \\ & & & c_{44} & 0 & c_{46} \\ & & & & c_{55} & 0 \\ & & & & & c_{66} \end{bmatrix}$	$\begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & e_{14} & 0 & e_{16} \\ e_{21} & e_{22} & e_{23} & 0 & e_{25} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & e_{34} & 0 & e_{36} \end{bmatrix}$	$\begin{bmatrix} \epsilon_{11} & 0 & \epsilon_{13} \\ & \epsilon_{22} & 0 \\ & & \epsilon_{33} \end{bmatrix}$
	点群 $m$ (10 個)	
	$\begin{bmatrix} e_{11} & e_{12} & e_{13} & 0 & e_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & e_{24} & 0 & e_{26} \\ e_{31} & e_{32} & e_{33} & 0 & e_{35} & 0 \end{bmatrix}$	

### 3 斜方晶系 (Orthorhombic system)

斜方晶系のうち点群 222 に属する代表的な圧電結晶には、ロッシェル塩(RS,  $\text{NaKC}_4\text{H}_4\text{O}_6 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ )があるが、ここでは点群  $mm2$  に属し、近年高周波デバイスへの応用が期待されているニオブ酸カリウム( $\text{KNbO}_3$ : KN)圧電結晶について簡単に記述し、表 4 にその材料定数を示す。KN 強誘電結晶は、非線形光学や電気光学の定数が大きいほか、圧電性が大きいことで知られている。他の高結合圧電材料には鉛が含まれているものが多いが、環境への配慮から鉛に対する規制が厳しくなる傾向にある中で、鉛フリーの高結合材料である KN 結晶の有用性・将来性が高まっている<sup>1,2)</sup>。また、誘電率が比較的小さいことから、特に超音波トランスジューサ、圧電振動子、SAW デバイスなどの高周波デバイスへの応用が期待される。

表 3 斜方晶系における材料定数の対称性

斜方晶系 (Orthorhombic system)		
弾性定数	圧電定数	誘電率
全点群共通 (9 個)	点群 222 (3 個)	(3 個)
$\begin{bmatrix} c_{11} & c_{12} & c_{13} & 0 & 0 & 0 \\ & c_{22} & c_{23} & 0 & 0 & 0 \\ & & c_{33} & 0 & 0 & 0 \\ & & & c_{44} & 0 & 0 \\ & & & & c_{55} & 0 \\ & & & & & c_{66} \end{bmatrix}$	$\begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & e_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & e_{25} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & e_{36} \end{bmatrix}$	$\begin{bmatrix} \epsilon_{11} & 0 & 0 \\ & \epsilon_{22} & 0 \\ & & \epsilon_{33} \end{bmatrix}$
	$\begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & e_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & e_{24} & 0 & 0 \\ e_{31} & e_{32} & e_{33} & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$	

表 4 KN 結晶の諸定数<sup>3)</sup>

弾性定数 $c_{ij}^E$ [ $\times 10^{11}$ N/m <sup>2</sup> ]	誘電率 $\epsilon_{ij}^S/\epsilon_0$ [-]
$c_{11}^E$	2.26
$c_{12}^E$	0.96
$c_{13}^E$	0.68
$c_{22}^E$	2.70
$c_{23}^E$	1.01
$c_{33}^E$	1.86
$c_{44}^E$	0.743
$c_{55}^E$	0.25
$c_{66}^E$	0.955
	圧電定数 $e_{ij}$ [C/m <sup>2</sup> ]
	$e_{31}$
	$e_{32}$
	$e_{33}$
	$e_{15}$
	$e_{24}$

## 4 正方晶系 (Tetragonal system)

点群  $4mm$  に属する四ホウ酸リチウム( $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ : LBO)結晶について簡単に記述し、表 6 にその材料定数を示す。LBO 結晶は、点群  $4mm$ 、空間群  $I4_1cd$  で、常誘電体の有極性圧電体であり、また、融点まで相転移がなく強誘電体で不可欠な分極処理も必要としない。Whatmore らの報告以来<sup>4-6)</sup>、バルク波および弾性表面波の電気機械結合係数が比較的大きく、しかも室温付近に遅延時間零温度係数となる結晶方位を有する圧電基板材料として注目されている。

表 5 正方晶系における材料定数の対称性

正方晶系 (Tetragonal system)			
弾性定数	圧電定数	誘電率	
点群 $4, \bar{4}, 4/m$ (7 個)	点群 $4$ (4 個)	(2 個)	
$\begin{bmatrix} c_{11} & c_{12} & c_{13} & 0 & 0 & c_{16} \\ & c_{11} & c_{13} & 0 & 0 & -c_{16} \\ & & c_{33} & 0 & 0 & 0 \\ & & & c_{44} & 0 & 0 \\ & & & & c_{44} & 0 \\ & & & & & c_{66} \end{bmatrix}$	$\begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & e_{14} & e_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & e_{15} & -e_{14} & 0 \\ e_{31} & e_{31} & e_{33} & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$	$\begin{bmatrix} \varepsilon_{11} & 0 & 0 \\ & \varepsilon_{11} & 0 \\ & & \varepsilon_{33} \end{bmatrix}$	
	点群 $\bar{4}$ (4 個)		$\begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & e_{14} & e_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & e_{15} & -e_{14} & 0 \\ e_{31} & -e_{31} & 0 & 0 & 0 & e_{36} \end{bmatrix}$
点群 $422, 4mm, \bar{4}2m, 4/mmm$ (6 個)	点群 $422$ (1 個)	(2 個)	
$\begin{bmatrix} c_{11} & c_{12} & c_{13} & 0 & 0 & 0 \\ & c_{11} & c_{13} & 0 & 0 & 0 \\ & & c_{33} & 0 & 0 & 0 \\ & & & c_{44} & 0 & 0 \\ & & & & c_{44} & 0 \\ & & & & & c_{66} \end{bmatrix}$	$\begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & e_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -e_{14} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$	$\begin{bmatrix} \varepsilon_{11} & 0 & 0 \\ & \varepsilon_{11} & 0 \\ & & \varepsilon_{33} \end{bmatrix}$	
	点群 $4mm$ (3 個)		$\begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & e_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & e_{15} & 0 & 0 \\ e_{31} & e_{31} & e_{33} & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$
	点群 $\bar{4}2m$ (2 個)		$\begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & e_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & e_{14} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & e_{36} \end{bmatrix}$

表 6 LBO 結晶の諸定数

弾性定数 $c_{ij}^E [\times 10^{11} \text{ N/m}^2]$			誘電率 $\epsilon_{ij}^S/\epsilon_0 [-]$		
$c_{11}^E$	1.267	1.350	$\epsilon_{11}^S/\epsilon_0$	8.97	8.90
$c_{12}^E$	0.05	0.0357	$\epsilon_{33}^S/\epsilon_0$	8.15	8.07
$c_{13}^E$	0.3	0.335	圧電定数 $e_{ij} [\text{C/m}^2]$		
$c_{33}^E$	0.539	0.568	$e_{31}$	0.19	0.290
$c_{44}^E$	0.550	0.585	$e_{33}$	0.89	0.928
$c_{66}^E$	0.46	0.467	$e_{15}$	0.36	0.472
参考文献	5)	7)	参考文献	5)	7)

## 5 三方晶系 (Trigonal system)

三方晶系では代表的な圧電結晶が数多く存在する。点群  $32$  では水晶やランガサイト ( $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$ : LGS)、点群  $3m$  ではニオブ酸リチウム ( $\text{LiNbO}_3$ : LN) やタンタル酸リチウム ( $\text{LiTaO}_3$ : LT) などがあり、いずれも情報通信用の圧電単結晶材料である。

表 7 三方晶系における材料定数の対称性

三方晶系 (Trigonal system)		
弾性定数	圧電定数	誘電率
点群 $3, \bar{3}$ (7 個) $\begin{bmatrix} c_{11} & c_{12} & c_{13} & c_{14} & c_{15} & 0 \\ & c_{11} & c_{13} & -c_{14} & -c_{15} & 0 \\ & & c_{33} & 0 & 0 & 0 \\ & & & c_{44} & 0 & -c_{15} \\ & & & & c_{44} & c_{14} \\ & & & & & c_{66} \end{bmatrix}$ $c_{66} = (c_{11} - c_{12})/2$	点群 $3$ (6 個) $\begin{bmatrix} e_{11} & -e_{11} & 0 & e_{14} & e_{15} & -e_{22} \\ -e_{22} & e_{22} & 0 & e_{15} & -e_{14} & -e_{11} \\ e_{31} & e_{31} & e_{33} & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$	(2 個) $\begin{bmatrix} \epsilon_{11} & 0 & 0 \\ & \epsilon_{11} & 0 \\ & & \epsilon_{33} \end{bmatrix}$
点群 $32, 3m, \bar{3}m$ (6 個) $\begin{bmatrix} c_{11} & c_{12} & c_{13} & c_{14} & 0 & 0 \\ & c_{11} & c_{13} & -c_{14} & 0 & 0 \\ & & c_{33} & 0 & 0 & 0 \\ & & & c_{44} & 0 & 0 \\ & & & & c_{44} & c_{14} \\ & & & & & c_{66} \end{bmatrix}$ $c_{66} = (c_{11} - c_{12})/2$	点群 $32$ (2 個) $\begin{bmatrix} e_{11} & -e_{11} & 0 & e_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -e_{14} & -e_{11} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$ 点群 $3m$ (4 個) $\begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & e_{15} & -e_{22} \\ -e_{22} & e_{22} & 0 & e_{15} & 0 & 0 \\ e_{31} & e_{31} & e_{33} & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$	$\begin{bmatrix} \epsilon_{11} & 0 & 0 \\ & \epsilon_{11} & 0 \\ & & \epsilon_{33} \end{bmatrix}$

## 5.1 水晶 (点群 32)

水晶の人工育成は、最初の研究から 150 年が経過し、日本における工業規模での生産は 40 年の歴史を有している。また日本は人工水晶の量産化、高品質化、規格化で先駆的役割を果たしてきた。水晶は圧電材料として周波数制御と選択性に優れた特性を有しており、近年では光学用途の消費が圧電応用を凌駕するに至っている。

水晶の弾性定数、圧電定数、誘電率など材料定数は従来から多くの研究者によって報告されている<sup>8-12)</sup>。最近、櫛引らによってまとめられた数値<sup>12)</sup>と合わせて表 8 に示す。

表 8 水晶の材料定数

材料定数		Mason	Bechmann	Koga <i>et al.</i>	James	Kushibiki
弾性定数 [ $\times 10^9$ N/m <sup>2</sup> ]	$c_{11}^E$	86.06	86.73	86.820	86.798	86.7997
	$c_{12}^E$	5.08	6.93	7.036	6.8260	7.0362
	$c_{13}^E$	10.46	11.89	11.917	12.023	11.9376
	$c_{14}^E$	18.25	17.92	18.0695	18.112	18.0612
	$c_{33}^E$	107.1	107.1	105.88	105.827	105.7816
	$c_{44}^E$	58.67	57.91	58.2267	58.232	58.2231
	$c_{66}^E$	40.49	39.90	39.892	39.986	39.8817
圧電定数 [C/m <sup>2</sup> ]	$e_{11}$	0.167	0.171	0.175	0.1712	0.1719
	$e_{14}$	0.0324	0.0403	0.0407	0.0407	0.0390
誘電率 [-]	$\varepsilon_{11}^S/\varepsilon_0$	4.50	4.428	4.50	4.423	4.420
	$\varepsilon_{33}^S/\varepsilon_0$	4.70	4.634	4.50	4.635	4.628
密度 [ $\times 10^3$ kg/m <sup>3</sup> ]	$\rho$	2.654	2.65	2.6484	2.64857	2.64867
参考文献		8)	9)	10)	11)	12)

## 5.2 ランガサイト (点群 32)

携帯電話などの通信機器分野において、急激なデジタル技術の発展に伴い、周波数温度安定性に優れ、広い周波数帯域と低挿入損失を合わせもった高機能圧電材料が求められている。その中で、新しい弾性表面波用基板として、ランガサイト (La<sub>3</sub>Ga<sub>5</sub>SiO<sub>14</sub>: LGS)系化合物単結晶が注目されている。それらは、点群 32 に属し、水晶と同じ三方晶系であり、結合係数も約 3~5 倍ほど大きく、焦電効果も示さない。さらに、LT や LN の強誘電体とは違い、分極処理も必要としないなどの加工上の特徴がある。結晶は室温から融点まで相転移を示さないことから、高温用のセンサ材料としても優れていると考えられている。これまでに調べられた LGS(La<sub>3</sub>Ga<sub>5</sub>SiO<sub>14</sub>)単結晶の材料定数を表 9 に、LTG(La<sub>3</sub>Ta<sub>0.5</sub>Ga<sub>5.5</sub>O<sub>14</sub>)および LNG(La<sub>3</sub>Nb<sub>0.5</sub>Ga<sub>5.5</sub>O<sub>14</sub>)単結晶の材料定数を表 10 に示す。

表 9 LGS 単結晶の材料定数

材料定数		S. Sakharov <i>et al.</i>	K. Inoue <i>et al.</i>	A. Bungo <i>et al.</i>	M. Adachi <i>et al.</i>
弾性定数 [ $\times 10^{10}$ N/m <sup>2</sup> ]	$c_{11}^E$	18.93	18.95	18.9	18.8
	$c_{12}^E$	10.50	10.47	10.4	10.4
	$c_{13}^E$	9.528	9.786	10.2	8.94
	$c_{14}^E$	1.493	1.464	1.44	1.51
	$c_{33}^E$	26.24	25.99	26.8	24.5
	$c_{44}^E$	5.384	5.391	5.33	5.75
	$c_{66}^E$	4.216	4.24	4.24	4.21
圧電定数 [C/m <sup>2</sup> ]	$e_{11}$	-0.431	-0.428	-0.438	-0.405
	$e_{14}$	0.108	-0.114	0.104	0.115
誘電率 [-]	$\epsilon_{11}^S/\epsilon_0$	18.97	19.07	19.06	18.4
	$\epsilon_{33}^S/\epsilon_0$	52.00	50.30	51.60	51.2
参考文献		13, 14)	15)	16)	17)

表 10 LTG 単結晶と LNG 単結晶の材料定数

材料定数		LTG 結晶		LNG 結晶
		N. Onozato <i>et al.</i>	井上ら	Yu. V. Pisarevsky <i>et al.</i>
弾性定数 [ $\times 10^{10}$ N/m <sup>2</sup> ]	$c_{11}^E$	20.2	17.2	19.07
	$c_{12}^E$	12.0	8.8	10.93
	$c_{13}^E$	12.5	7.7	9.82
	$c_{14}^E$	1.33	1.4	1.35
	$c_{33}^E$	28.8	19.7	26.05
	$c_{44}^E$	4.97	5.1	5.04
	$c_{66}^E$	4.07	4.2	4.07
圧電定数 [C/m <sup>2</sup> ]	$e_{11}$	-0.468	-0.50	-0.44
	$e_{14}$	0.0632	0.012	-0.05
誘電率	$\epsilon_{11}^S/\epsilon_0$	19.3	18.7	20.2
	$\epsilon_{33}^S/\epsilon_0$	80.3	74.9	79.4
参考文献		18)	19)	13)

### 5.3 ニオブ酸リチウムとタンタル酸リチウム (点群 $3m$ )

ニオブ酸リチウム(LiNbO<sub>3</sub>: LN)とタンタル酸リチウム(LiTaO<sub>3</sub>: LT)単結晶は、三方晶系(菱面体晶系)に属し、相転移温度以上では、常誘電相で $3m$ の点群に属する。また、相転移温度以下の相は、点群  $3m$  に属する強誘電、圧電相であり、さらに焦電性を有する。表 11 に LN 結晶と LT 結晶の基本的定数を示す。LN 結晶の場合は、多くの研究者が測定している。しかし、これらの定数は、研究者によって多少異なる

る。単結晶の組成比によりこれらの定数が異なる可能性があるため、どの値が正確かということは一概には言えない。

表 11 LT 結晶と LN 結晶の基本的定数

物理定数		LiTaO <sub>3</sub>		LiNbO <sub>3</sub>		
		Warner	Smith	Warner	Smith	Nakagawa
密度 [ $\times 10^3 \text{ kg/m}^3$ ]	$\rho$	7.45	7.454	4.7	4.64	4.7
誘電率 [-]	$\epsilon_{11}^S/\epsilon_0$	41	42.6	44	44.3	46.5
	$\epsilon_{33}^S/\epsilon_0$	43	42.8	29	27.9	27.3
	$\epsilon_{11}^T/\epsilon_0$		53.6	84	85.2	84.1
	$\epsilon_{33}^T/\epsilon_0$		43.4	30	28.7	28.1
圧電定数 $e_{ij}$ [C/m <sup>2</sup> ]	$e_{15}$	2.6	2.72	3.7	3.76	3.8
	$e_{22}$	1.6	1.67	2.5	2.43	2.5
	$e_{31}$	0.0	-0.38	0.2	0.23	0.35
	$e_{33}$	1.9	1.09	1.3	1.33	1.42
圧電定数 $d_{ij}$ [ $\times 10^{-11} \text{ C/N}$ ]	$d_{15}$	2.6	2.64	6.8	6.92	
	$d_{22}$	0.7	0.75	2.1	2.08	
	$d_{31}$	-0.2	-0.30	-0.1	-0.085	
	$d_{33}$	0.8	0.57	0.6	0.60	
弾性定数 $c_{ij}^E$ [ $\times 10^{11} \text{ N/m}^2$ ]	$c_{11}^E$	2.33	2.298	2.03	2.030	2.0
	$c_{12}^E$	0.47	0.440	0.53	0.573	0.54
	$c_{13}^E$	0.80	0.812	0.75	0.752	0.6
	$c_{14}^E$	-0.11	-0.104	0.09	0.085	0.08
	$c_{33}^E$	2.75	2.798	2.45	2.424	2.43
	$c_{44}^E$	0.94	0.968	0.60	0.595	0.60
	$c_{66}^E$	0.93	0.929	0.75	0.728	0.73
弾性定数 $s_{ij}^E$ [ $\times 10^{-12} \text{ m}^2/\text{N}$ ]	$s_{11}^E$	4.87	4.930	5.78	5.831	
	$s_{12}^E$	-0.58	-0.519	-1.01	-1.150	
	$s_{13}^E$	-1.25	-1.280	-1.47	-1.452	
	$s_{14}^E$	0.64	0.588	-1.02	-1.000	
	$s_{33}^E$	4.36	4.317	5.02	5.026	
	$s_{44}^E$	10.8	10.46	17.0	17.10	
	$s_{66}^E$	10.9	10.90	13.6	13.96	
参考文献		20)	21)	20)	21)	22)



## 6 六方晶系 (Hexagonal system)

六方晶系に属する代表的な圧電結晶には、酸化亜鉛(ZnO)や窒化アルミニウム(AlN)がある。ともに六方晶系ウルツァイト型(点群  $6mm$ )に属した半導体であり、圧電膜として実用化されている。ここでは、両者について簡単に記述し、それらの材料定数を示す。

表 12 六方晶系における材料定数の対称性

六方晶系 (Hexagonal system)			
弾性定数	圧電定数	誘電率	
全点群共通 (5 個)	点群 $6$ (4 個)	(2 個)	
$\begin{bmatrix} c_{11} & c_{12} & c_{13} & 0 & 0 & 0 \\ & c_{11} & c_{13} & 0 & 0 & 0 \\ & & c_{33} & 0 & 0 & 0 \\ & & & c_{44} & 0 & 0 \\ & & & & c_{44} & 0 \\ & & & & & c_{66} \end{bmatrix}$ $c_{66} = (c_{11} - c_{12})/2$	$\begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & e_{14} & e_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & e_{15} & -e_{14} & 0 \\ e_{31} & e_{31} & e_{33} & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$	$\begin{bmatrix} \epsilon_{11} & 0 & 0 \\ & \epsilon_{11} & 0 \\ & & \epsilon_{33} \end{bmatrix}$	
	点群 $\bar{6}$ (2 個)		$\begin{bmatrix} e_{11} & -e_{11} & 0 & 0 & 0 & -e_{22} \\ -e_{22} & e_{22} & 0 & 0 & 0 & -e_{11} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$
	点群 $622$ (1 個)		$\begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & e_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -e_{14} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$
	点群 $6mm$ (3 個)		$\begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & e_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & e_{15} & 0 & 0 \\ e_{31} & e_{31} & e_{33} & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$
	点群 $\bar{6}m2$ (1 個)		$\begin{bmatrix} e_{11} & -e_{11} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -e_{11} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$

## 6.1 ZnO 圧電膜

ZnO は六方晶系ウルツァイト型 II-VI 族半導体である。ZnO 膜は、圧電薄膜の中で比較的大きな電気機械結合係数を持ち、使用する材料が安全で安価な上、容易に配向膜が得られるため、最もよく研究・実用化されている。ZnO 圧電膜の成膜方法としては、それらの制御が比較的容易なスパッタ法がよく用いられる。基板上に成膜された ZnO 膜から ZnO 膜の材料定数を求めるのは難しく、一般にその SAW 音速や電気機械結合係数が測定されている。ZnO 膜/基板における SAW の音速や電気機械結合係数は下地基板の種類により、またガラスの材質によっても異なるため、論文で発表されている測定値同士の比較は難しく、論文中では理論値と測定値との比較が多い。最近の多くの報告では、実測値と理論値とがほぼ同じ値を示している<sup>23-26)</sup>。これは成膜された ZnO 膜が計算に用いた単結晶に近い値を示していることになる。尚、ZnO の定数としては、表 13 に示す単結晶の値<sup>27)</sup> が用いられていることが多い。

## 6.2 AlN 圧電膜

AlN は六方晶系ウルツァイト型 III-V 族半導体である。AlN 膜は、圧電薄膜の中で ZnO よりやや小さな電気機械結合係数を有するが、CMOS プロセスと親和性のよい安価な材料であり、圧電軸である  $c$  軸に配向した高絶縁性の膜が容易に得られ、弾性波の伝搬速度が大きく、伝搬速度の温度依存性が比較的小さいという特徴をもつ。最近では、薄膜圧電共振子(EBAR および SMR)用の圧電薄膜として実用化される<sup>28, 29)</sup>とともに研究例が非常に増加してきた。AlN の材料定数については坪内らがサファイアのそれとあわせて報告している<sup>30)</sup>。

表 13 ZnO と AlN の材料定数

	弾性定数 $c_{ij}^E$ [ $\times 10^{11}$ N/m <sup>2</sup> ]		誘電率 $\epsilon_{ij}^S/\epsilon_0$ [-]		
	ZnO	AlN		ZnO	AlN
$c_{11}^E$	2.096	3.45	$\epsilon_{11}^S/\epsilon_0$	8.55	9.0
$c_{12}^E$	1.205	1.25	$\epsilon_{33}^S/\epsilon_0$	10.2	10.7
$c_{13}^E$	1.046	1.20	圧電定数 $e_{ij}$ [C/m <sup>2</sup> ]		
$c_{33}^E$	2.106	3.95	$e_{31}$	-0.573	-0.58
$c_{44}^E$	0.423	1.18	$e_{33}$	1.321	1.55
$c_{66}^E$	0.4455	1.10	$e_{15}$	-0.48	-0.48
参考文献	27)	30)	参考文献	27)	30)

## 7 立方晶系 (Cubic system)

立方晶系における代表的な圧電結晶としては、点群 23 に属する  $\text{Bi}_{12}\text{GeO}_{20}$ (BGO) や点群  $\bar{4}3m$  に属する GaAs がある。前者は SAW 伝搬速度が遅い材料として知られ、分散時間を大きくするための分散型遅延線に用いられている。後者は化合物半導体として有名であるが、圧電性を示す。両者の材料定数を表 15 にまとめる<sup>31)</sup>。

表 14 立方晶系における材料定数の対称性

立方晶系 (Cubic system)		
弾性定数	圧電定数	誘電率
全点群共通 (3 個)	点群 23, $\bar{4}3m$ (1 個)	(1 個)
$\begin{bmatrix} c_{11} & c_{12} & c_{12} & 0 & 0 & 0 \\ & c_{11} & c_{12} & 0 & 0 & 0 \\ & & c_{11} & 0 & 0 & 0 \\ & & & c_{44} & 0 & 0 \\ & & & & c_{44} & 0 \\ & & & & & c_{44} \end{bmatrix}$	$\begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & e_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & e_{14} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & e_{14} \end{bmatrix}$	$\begin{bmatrix} \epsilon_{11} & 0 & 0 \\ & \epsilon_{11} & 0 \\ & & \epsilon_{11} \end{bmatrix}$

表 15 BGO と GaAs の材料定数<sup>31)</sup>

	弾性定数 $c_{ij}^E [\times 10^{11} \text{ N/m}^2]$		誘電率 $\epsilon_{ij}^S/\epsilon_0 [-]$		
	BGO	GaAs		BGO	GaAs
$c_{11}^E$	1.2848	1.19	$\epsilon_{11}^S/\epsilon_0$	37.9	11
$c_{12}^E$	0.2942	0.583	圧電定数 $e_{ij} [\text{C/m}^2]$		
$c_{44}^E$	0.2552	0.595	$e_{14}$	0.983	-0.160

## 8 等方体 (Isotropic)

表 16 等方体における材料定数の対称性

等方体 (Isotropic)		
弾性定数	圧電定数	誘電率
全点群共通 (2 個)	(0 個)	(1 個)
$\begin{bmatrix} c_{11} & c_{12} & c_{12} & 0 & 0 & 0 \\ & c_{11} & c_{12} & 0 & 0 & 0 \\ & & c_{11} & 0 & 0 & 0 \\ & & & c_{66} & 0 & 0 \\ & & & & c_{66} & 0 \\ & & & & & c_{66} \end{bmatrix}$ $c_{66} = (c_{11} - c_{12})/2$		$\begin{bmatrix} \epsilon_{11} & 0 & 0 \\ & \epsilon_{11} & 0 \\ & & \epsilon_{11} \end{bmatrix}$

## A.2 32 晶族の記号とその諸性質<sup>32)</sup>

晶系	S.記号	H.M.記号	対称中心	ラウエ対称*	次数	旋光能	圧電気	焦電気
三斜	$C_1$	1	-	$C_i$	1	+	+	+
	$C_i(S_2)$	1	+	"	2	-	-	-
単斜	$C_2$	2	-	$C_{2h}$	2	+	+	+
	$C_S(C_h)$	$m$	-	"	2	+	+	+
	$C_{2h}$	$2/m$	+	"	4	-	-	-
斜方	$C_{2v}$	$mm2$	-	$D_{2h}$	4	+	+	+
	$D_2(V)$	222	-	"	4	+	+	-
	$D_{2h}(V_h)$	$mmm$	+	"	8	-	-	-
正方	$C_4$	4	-	$C_{4h}$	4	+	+	+
	$S_4$	$\bar{4}$	-	"	4	+	+	-
	$C_{4h}$	$4/m$	+	"	8	-	-	-
	$C_{4v}$	$4mm$	-	$D_{4h}$	8	-	+	+
	$D_{2d}(V_d)$	$\bar{4}2m$	-	"	8	+	+	-
	$D_4$	422	-	"	8	+	+	-
	$D_{4h}$	$4/mmm$	+	"	16	-	-	-
三方	$C_3$	3	-	$C_{3i}$	3	+	+	+
	$C_{3i}(S_6)$	$\bar{3}$	+	"	6	-	-	-
	$C_{3v}$	$3m$	-	$D_{3d}$	6	-	+	+
	$D_3$	32	-	"	6	+	+	-
	$D_{3d}$	$\bar{3}m$	+	"	12	-	-	-
六方	$C_6$	6	-	$C_{6h}$	6	+	+	+
	$C_{3h}(S_3)$	$\bar{6}$	-	"	6	-	+	-
	$C_{6h}$	$6/m$	+	"	12	-	-	-
	$C_{6v}$	$6mm$	-	$D_{6h}$	12	-	+	+
	$D_{3h}$	$\bar{6}m2$	-	"	12	-	+	-
	$D_6$	622	-	"	12	+	+	-
	$D_{6h}$	$6/mmm$	+	"	24	-	-	-
立方	$T$	23	-	$T_h$	12	+	+	-
	$T_h$	$m\bar{3}$	+	"	24	-	-	-
	$T_d$	$\bar{4}3m$	-	$O_h$	24	-	+	-
	$O$	432	-	"	24	+	-	-
	$O_h$	$m\bar{3}m$	+	"	48	-	-	-

ここで、添字\*は Laue 写真における対称性(11 種類の Laue 群)を示す。また、S.記号と H.M.記号はそれぞれ Schoenflies の記号と Hermann-Mauguin の記号を表す。

### A.3 歪みと応力の関係<sup>33)</sup>

物体中に変形(歪み)が生じると、弾性的な反発力により変形を元に戻そうとする作用が働き、それが波動となって物質中を伝わる弾性波が生じる。従って、物体中の歪みと応力の関係が弾性波を扱う基本となる。ここでは、その歪みと応力の関係について概説する。さらに、テンソル表示と行列表示について述べる。

#### 1 歪み $S$

物質に外部から力を加えると、その物質は形が変わる。力が加わっていないときと比べ、力を加えた結果どのように形が変わったか、即ち変形量を定量的に表現する物理的尺度として、歪み(Strain)を定義する。ある物体に力が加わった場合の様子を考える。物体全体が平行に移動したり回転したりする場合には、その物体の形の変化はないのでここでは除外する。物体に部分的な力が加わると、物体は弾性的な変形をする。図1のように、物体中の2点  $P(x_1, x_2, x_3)$  と  $Q(x_1 + dx_1, x_2 + dx_2, x_3 + dx_3)$  に注目し、力を加えることによりそれぞれ、 $P'$  と  $Q'$  に変位したとする。変位をベクトル  $u$  で表すものとし、

$$\overrightarrow{PP'} = u = \begin{pmatrix} u_1 \\ u_2 \\ u_3 \end{pmatrix} \quad (\text{A-1})$$

$$\overrightarrow{QQ'} = u + du \quad (\text{A-2})$$

とすると、 $du$  の各成分は次のように与えられる。

$$du_1 = \frac{\partial u_1}{\partial x_1} dx_1 + \frac{\partial u_1}{\partial x_2} dx_2 + \frac{\partial u_1}{\partial x_3} dx_3 + \left( \frac{1}{2} \frac{\partial^2 u_1}{\partial x_1^2} dx_1^2 + \dots \right) \quad (\text{A-3})$$

$$du_2 = \frac{\partial u_2}{\partial x_1} dx_1 + \frac{\partial u_2}{\partial x_2} dx_2 + \frac{\partial u_2}{\partial x_3} dx_3 + \left( \frac{1}{2} \frac{\partial^2 u_2}{\partial x_1^2} dx_1^2 + \dots \right) \quad (\text{A-4})$$

$$du_3 = \frac{\partial u_3}{\partial x_1} dx_1 + \frac{\partial u_3}{\partial x_2} dx_2 + \frac{\partial u_3}{\partial x_3} dx_3 + \left( \frac{1}{2} \frac{\partial^2 u_3}{\partial x_1^2} dx_1^2 + \dots \right) \quad (\text{A-5})$$

$du$  が 0 の場合は点 P、Q とも同じ変位をしているので変形、従って歪みは存在しない。 $du$  が 0 でない場合は歪みが存在する。 $dx_1$ 、 $dx_2$ 、 $dx_3$  を十分小さくとれば、式(A-3)から式(A-5)の右辺の括弧内の項は高次の微小量であるため無視できる。

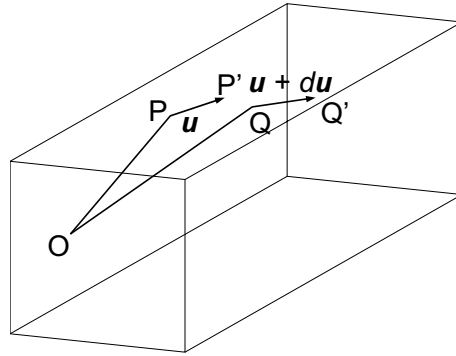


図1 変形を伴う変位

以上から、点 P と点 Q の間の変位量の差は、

$$\begin{aligned}
 \begin{bmatrix} du_1 \\ du_2 \\ du_3 \end{bmatrix} &= \begin{bmatrix} \frac{\partial u_1}{\partial x_1} & \frac{1}{2} \left( \frac{\partial u_1}{\partial x_2} + \frac{\partial u_2}{\partial x_1} \right) & \frac{1}{2} \left( \frac{\partial u_1}{\partial x_3} + \frac{\partial u_3}{\partial x_1} \right) \\ \frac{1}{2} \left( \frac{\partial u_2}{\partial x_1} + \frac{\partial u_1}{\partial x_2} \right) & \frac{\partial u_2}{\partial x_2} & \frac{1}{2} \left( \frac{\partial u_2}{\partial x_3} + \frac{\partial u_3}{\partial x_2} \right) \\ \frac{1}{2} \left( \frac{\partial u_3}{\partial x_1} + \frac{\partial u_1}{\partial x_3} \right) & \frac{1}{2} \left( \frac{\partial u_3}{\partial x_2} + \frac{\partial u_2}{\partial x_3} \right) & \frac{\partial u_3}{\partial x_3} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} dx_1 \\ dx_2 \\ dx_3 \end{bmatrix} \\
 &+ \begin{bmatrix} 0 & \frac{1}{2} \left( \frac{\partial u_1}{\partial x_2} - \frac{\partial u_2}{\partial x_1} \right) & \frac{1}{2} \left( \frac{\partial u_1}{\partial x_3} - \frac{\partial u_3}{\partial x_1} \right) \\ \frac{1}{2} \left( \frac{\partial u_2}{\partial x_1} - \frac{\partial u_1}{\partial x_2} \right) & 0 & \frac{1}{2} \left( \frac{\partial u_2}{\partial x_3} - \frac{\partial u_3}{\partial x_2} \right) \\ \frac{1}{2} \left( \frac{\partial u_3}{\partial x_1} - \frac{\partial u_1}{\partial x_3} \right) & \frac{1}{2} \left( \frac{\partial u_3}{\partial x_2} - \frac{\partial u_2}{\partial x_3} \right) & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} dx_1 \\ dx_2 \\ dx_3 \end{bmatrix} \quad (A-6)
 \end{aligned}$$

と表せる。以下、式(A-6)の意味について記述する。

[1] 右辺第1項の対角成分 (縦歪み)

$\partial u_1/\partial x_1$  について見ると、これは座標軸  $x_1$  に沿った方向への変位の  $x_1$  に対する微係数である。即ち、 $x_1$  方向への伸びあるいは縮みの割合を表す。同様に他の対角成分  $\partial u_2/\partial x_2$ 、 $\partial u_3/\partial x_3$  はそれぞれ  $x_2$ 、 $x_3$  方向への伸び縮みの割合に対応し、これを「縦歪み」という。縦歪みは次のように表す。

$$S_{11} \equiv \frac{\partial u_1}{\partial x_1}, \quad S_{22} \equiv \frac{\partial u_2}{\partial x_2}, \quad S_{33} \equiv \frac{\partial u_3}{\partial x_3} \quad (\text{A-7})$$

[2] 右辺第1項の非対角成分 (せん断歪み)

これらの項は、断面形状の変化に対応した歪みを表す。この歪みを「せん断歪み」といい、次のように表す。

$$S_{ij} \equiv \frac{1}{2} \left( \frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) \quad (i, j = 1, 2, 3, i \neq j) \quad (\text{A-8})$$

[3] 右辺第2項 (歪みなし)

この項は、形状の変化はなく単に回転している状態(物体内に歪みは生じていない)を表し、弾性波には関与しない。

式(A-7)で表される「縦歪み」と式(A-8)で表される「せん断歪み」は一括して、

$$S_{ij} \equiv \frac{1}{2} \left( \frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) \quad (i, j = 1, 2, 3) \quad (\text{A-9})$$

と表すことができる。これを「歪みテンソル」という。方位を示す添字として2つ指定する必要があるため、2階テンソルである。式(A-9)は  $i$  と  $j$  に対応して9つの成分を持つから、固体には一般に9つの歪みテンソル成分が存在する。しかし、添字  $i$  と  $j$  を入れ替えても同じであるから、独立な成分は6つであり、行列で表すと対称行列となり、極性テンソルである。また、 $i = j$  の対角成分が「縦歪み」、 $i \neq j$  の非対角成分が「せん断歪み」に対応する。

## 2 応力 $T$

単位面積あたりに加わる力のことを応力(Stress)という。物体に加えられる力について考える。図2のように、物体中に小さな直方体を考えその各面に働く応力にはどのようなものがあるかについて考える。応力は単位面積あたりの力であるから、どの面にどのような力が作用するかを考えればよい。

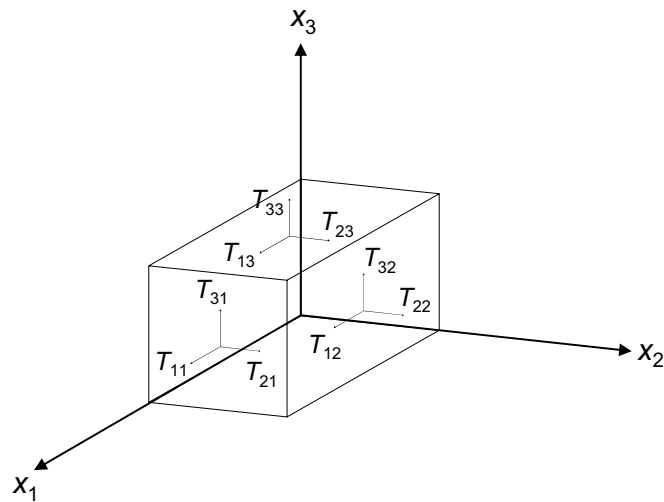


図2 応力テンソル

作用する面としては、 $x_1, x_2, x_3$ の3方向の成分に分けることができる。例えば、 $x_1$ 軸に垂直な面( $x_1$ 面)に作用する力を3成分に分ければ、

$$x_1 \text{ 成分 : } T_{11}$$

$$x_2 \text{ 成分 : } T_{21}$$

$$x_3 \text{ 成分 : } T_{31}$$

と表すことができる。同様にして一般に、 $x_j$ 面に働く  $i$ 方向の応力は

$$T_{ij} \quad (i, j = 1, 2, 3) \quad (\text{A-10})$$

と表す。

従って、応力は9つの成分をもつ2階テンソルであることがわかる。歪みと同様に応力においても、 $i=j$ の成分は「縦応力」、 $i \neq j$ の成分は「せん断応力」である。応力テンソルを行列表示すれば、歪みテンソルと同様に6行6列の対称行列(2階の極性テンソル)となり、独立な成分は6つである。



### 3 歪みと応力の関係

歪みと応力はともに2階の極性テンソルであることが、これまでの記述でわかる。ここでは、応力と歪みの関係を表す関係式を示す。歪みの原因は応力であるが、線形近似においては応力に比例した歪みが生じる(フックの法則が成り立つ)ものとして扱う。この場合重要なのは、縦応力が必ずしも縦歪みだけを生じるわけではなく、また逆にせん断応力がせん断歪みだけを生じるわけでもない。こうして、応力と歪みの関係は一般に、

$$S_{ij} = s_{ijkl} T_{kl} \quad (i, j, k, l = 1, 2, 3) \quad (\text{A-11})$$

の弾性方程式で表される。式(A-11)の右辺において、添字が繰り返し現れる場合、その添字(同式では  $k$  と  $l$ )の取り得る値のすべてについて和をとるものと約束する。即ち、

$$s_{ijkl} T_{kl} \equiv \sum_{k=1}^3 \sum_{l=1}^3 s_{ijkl} T_{kl} \quad (\text{A-12})$$

である。以下、 $\Sigma$ を省略した表記法を用いる。

また、この場合の係数  $s_{ijkl}$  は弾性定数の一種であるが、 $s$  が大きいほど同じ応力でも歪みが大きいこと、即ち柔らかさに対応するものであり、これを「弾性コンプライアンス(elastic compliance)」という。

逆に、歪みに対してそれに対応する応力の形で表せば、

$$T_{ij} = c_{ijkl} S_{kl} \quad (i, j, k, l = 1, 2, 3) \quad (\text{A-13})$$

と表される。係数  $c_{ijkl}$  はその物質の硬さに対応するものと考えられるから、これを「弾性スティフネス(elastic stiffness)」という。これら2つの係数を合わせて「弾性定数」とも呼ぶ。弾性コンプライアンス、弾性スティフネスとも、2階のテンソル同士を結びつける係数であり、方位を表す添字は4つあるから、4階テンソルである。尚、弾性コンプライアンスおよび弾性スティフネスの添字  $ijkl$  において、 $ij$  と  $kl$  を入れ替えても同じ値であり、また、 $i$  と  $j$  および  $k$  と  $l$  を入れ替えても値は変わらない。即ち、 $s_{ijkl} = s_{klij} = s_{jikl} = s_{ijlk}$  であり、 $c$  についても同様である。

#### 4 テンソル表示と行列表示

式(A-11)、式(A-13)の弾性方程式はテンソル表示の式であるが、歪み、応力とも対称テンソルであることを利用すると、以下のように簡略化し、行列を用いて表示できる。

即ち、歪み、応力とも独立な成分はそれぞれ6つずつ考えればよく、添字  $ij$  と  $ji$  を分けて扱う必要はないため、これをまとめて1つの大文字として表1に従って表す。

表1 添字のまとめ方

$j \backslash i$	1	2	3
1	1	6	5
2	6	2	4
3	5	4	3

$i$  と  $j$  の交点を  $I$  とする。

例えば、 $i=1, j=3$  の場合  $I=5$

さらに、歪み  $S_I$  と  $S_{ij}$  とは、次のように対応させる。即ち、

縦歪み：

$$S_1 = S_{11} = \frac{\partial u_1}{\partial x_1}, \quad S_2 = S_{22} = \frac{\partial u_2}{\partial x_2}, \quad S_3 = S_{33} = \frac{\partial u_3}{\partial x_3} \quad (\text{A-14})$$

せん断歪み：

$$\begin{aligned} S_4 &= 2S_{23} = 2S_{32} = \frac{\partial u_2}{\partial x_3} + \frac{\partial u_3}{\partial x_2} \\ S_5 &= 2S_{31} = 2S_{13} = \frac{\partial u_3}{\partial x_1} + \frac{\partial u_1}{\partial x_3} \\ S_6 &= 2S_{12} = 2S_{21} = \frac{\partial u_1}{\partial x_2} + \frac{\partial u_2}{\partial x_1} \end{aligned} \quad (\text{A-15})$$

一方、応力についての簡略表記とテンソル表記との対応関係は次のとおりである。

$$T_1 = T_{11}, \quad T_2 = T_{22}, \quad T_3 = T_{33} \quad (\text{A-16})$$

$$T_4 = T_{23} = T_{32}, \quad T_5 = T_{31} = T_{13}, \quad T_6 = T_{12} = T_{21} \quad (\text{A-17})$$

弾性定数コンプライアンス  $s_{ijkl}$  および弾性ステイフネス  $c_{ijkl}$  も、表 1 の規則に従って  $ij$  をまとめて  $I$  とし、 $kl$  をまとめて  $J$  とすれば、4 階の弾性定数テンソルを 6 行 6 列の弾性定数マトリックスで表すことができる。また、式(A-11)および式(A-13)も簡略表記により

$$S_I = s_{IJ} T_J \quad (I, J = 1, 2, \dots, 6) \quad (\text{A-18})$$

$$T_I = c_{IJ} S_J \quad (I, J = 1, 2, \dots, 6) \quad (\text{A-19})$$

と改められる。この場合も、同一項において繰り返し現れる添字についてはその添字のとり得る値についての和をとるものとし、 $\Sigma$  の記号を省略した。尚、弾性コンプライアンス行列と弾性ステイフネス行列の間には、

$$[s_{IJ}] = [c_{IJ}]^{-1} \quad (\text{A-20})$$

の関係がある。

行列表示の弾性定数は 6 行 6 列、即ち 36 の要素があるが、これも対称行列となることが容易に示され、独立な要素は最大 21 個となる。要素の間には、結晶の対称性により相互に関係があり、非晶質などの等方体では独立な弾性定数は 2 個、立方晶系の結晶では 3 個、圧電性セラミックスや酸化亜鉛(六方晶系)では 5 個、水晶や  $\text{LiNbO}_3$ 、 $\text{LiTaO}_3$ (三方晶系)では 6 個である。これらのことは付録 A.1 からわかる。

ここで、テンソル表示と行列表示の関係について具体例を基にもう少し詳しく見ておく。応力  $T_{11}(= T_1)$  をテンソル表示と行列表示により表すと、

$$\begin{aligned} T_{11} &= c_{1111}S_{11} + 2c_{1112}S_{12} + 2c_{1113}S_{13} + c_{1122}S_{22} + 2c_{1123}S_{23} + c_{1133}S_{33} \\ T_1 &= c_{11}S_1 + c_{12}S_2 + c_{13}S_3 + c_{14}S_4 + c_{15}S_5 + c_{16}S_6 \end{aligned} \quad (\text{A-21})$$

となる。式(A-14)~式(A-17)より、次の対応関係が成り立つ。

$$\begin{aligned}
c_{11} &= c_{1111}, & c_{12} &= c_{1122}, & c_{13} &= c_{1133} \\
c_{14} &= c_{1123}, & c_{15} &= c_{1113}, & c_{16} &= c_{1112}
\end{aligned}
\tag{A-22}$$

同様にして、一般に次の対応関係が成り立つ。

$$c_{IJ} = c_{ijkl} \quad (I, J = 1, \dots, 6, i, j, k, l = 1, 2, 3)$$

但し、 $I$ と $ij$ 、 $J$ と $kl$ の対応関係は表1に従う。これに対して、弾性コンプライアンスの対応関係は少し複雑で、

$$\begin{aligned}
I, J \text{ ともに } 1, 2, 3 \text{ の場合} & \quad s_{IJ} = s_{ijkl} \\
I \text{ か } J \text{ のいずれか一方が } 4, 5, 6 \text{ の場合} & \quad s_{IJ} = 2s_{ijkl} \\
I, J \text{ ともに } 4, 5, 6 \text{ の場合} & \quad s_{IJ} = 4s_{ijkl}
\end{aligned}$$

となる。

## A.4 本論文中で使われている機械的・電氣的諸定数の意味

ここでは、本論文中で使われている機械的・電氣的諸定数の意味を記す。[]の中は単位を表す。

$B$	サセプタンス [S]	$Q_m$	機械的品質係数 [-]
$C$	静電容量 [F]	$R$	レジスタンス [ $\Omega$ ]
$C^T$	自由静電容量 [F]	$S$	歪み ( $u/l$ )
$C^S$	拘束静電容量 [F]	$s$	弾性コンプライアンス [ $m^2/N$ ]
$C_T$	楕型電極全体の容量 [F]	$T$	応力 [ $N/m^2$ ]
$C_S$	楕型電極 1 対の容量 [F]	$t$	厚さ [m]
$c$	弾性スティフネス [ $N/m^2$ ]	$T$	温度 [ $^{\circ}C$ ]
$c_{eff}$	実効弾性スティフネス [ $N/m^2$ ]	$u$	変位 [m]
$D$	電気変位(電束密度) [ $C/m^2$ ]	$v$	音速 [m/s]
$d$	圧電歪み定数 [m/V or C/N]	$v_f$	電氣的開放状態の伝搬速度 [m/s]
$d_{eff}$	非線形光学定数 [pm/V]	$v_m$	電氣的短絡状態の伝搬速度 [m/s]
$E$	電界 [V/m]	$V_B$	バルク波の伝搬速度 [m/s]
$e$	圧電応力定数 [ $C/m^2$ ]	$V_L$	漏洩弾性表面波の伝搬速度 [m/s]
$f$	周波数 [Hz]	$V_R$	レイリー波の伝搬速度 [m/s]
$f_s$	機械的直列共振周波数 [Hz]	$w$	幅 [m]
$f_p$	機械的並列共振周波数 [Hz]	$X$	リアクタンス [ $\Omega$ ]
$f_r$	共振周波数 [Hz]	$Y$	アドミッタンス [S]
$f_a$	反共振周波数 [Hz]	$Y_d$	制動アドミッタンス [S]
$f_m$	アドミッタンス極大周波数 [Hz]	$Y_m$	動アドミッタンス [S]
$f_n$	アドミッタンス極小周波数 [Hz]	$Z$	インピーダンス [ $\Omega$ ]
$f_1$	サセプタンス極大周波数 [Hz]	$\beta$	逆誘電率 [m/F]
$f_2$	サセプタンス極小周波数 [Hz]	$\varepsilon$	誘電率 [F/m]
$f_0$	SAW フィルタの中心周波数 [Hz]	$\varepsilon_0$	真空の誘電率( $8.854 \times 10^{-12}$ )[F/m]
$G$	ギブス自由エネルギー [J/mol]	$\varepsilon^T$	自由誘電率 [F/m]
$G$	コンダクタンス [S]	$\varepsilon^S$	拘束誘電率 [F/m]
$g$	電圧出力係数 [ $V \cdot m/N$ ]	$\theta$	絶対温度 [K]
$h$	圧電応力定数 [N/C]	$\theta$	位相 [degree]
$k$	電気機械結合係数 [- or %]	$\rho$	密度 [ $kg/m^3$ ]
$K$	SAW 電気機械結合係数 [- or %]	$\lambda_0$	楕型電極の電極間ピッチ [ $\mu m$ ]
$K$	エントロピー [J/K/mol]	$\omega$	角周波数 [rad/s]
$l$	長さ [m]	$\omega_0$	中心角周波数 [rad/s]
$N$	周波数定数 [kHz $\cdot$ mm]	$\omega_R$	半波長周波数(共振) [rad/s]
$N$	楕型電極の対数	$\omega_A$	半波長周波数(反共振) [rad/s]

## A.5 圧電基本式の諸形式と定数相互の関係<sup>34)</sup>

機械的パラメータ	$S$ : 歪み	$T$ : 応力	
電氣的パラメータ	$D$ : 電気変位	$E$ : 電界	
圧電基本式	$d$ 形式	$\begin{cases} S = s^E T + d_t E \\ D = d T + \varepsilon^T E \end{cases}$	$T, E$ (intensive) type
	$e$ 形式	$\begin{cases} T = c^E S - e_t E \\ D = e S + \varepsilon^S E \end{cases}$	$S, E$ (mixed) type
	$g$ 形式	$\begin{cases} S = s^D T + g_t D \\ E = -g T + \beta^T D \end{cases}$	$T, D$ (mixed) type
	$h$ 形式	$\begin{cases} T = c^D S - h_t D \\ E = -h S + \beta^S D \end{cases}$	$S, D$ (extensive) type
諸定数間の関係	弾性スティフネス	$c^E = 1/s^E = (T/S)_{E=0}$	
	"	$c^D = 1/s^D = (T/S)_{D=0}$	
	逆誘電率	$\beta^T = 1/\varepsilon^T = (E/D)_{T=0}$	
	"	$\beta^S = 1/\varepsilon^S = (E/D)_{S=0}$	
	圧電歪み定数	$d = (S/E)_{T=0} = (D/T)_{E=0} = e s^E = \varepsilon^T g$	
	圧電応力定数	$e = -(T/E)_{T=0} = (D/S)_{E=0} = d c^E = \varepsilon^S h$	
	電圧出力係数	$g = (S/D)_{T=0} = -(E/T)_{D=0} = h s^D = \beta^T d$	
	圧電応力定数	$h = -(T/D)_{S=0} = -(E/S)_{D=0} = g c^D = \beta^S e$	
$\begin{aligned} \varepsilon^T - \varepsilon^S &= d c^E d_t = e s^E e_t = d e_t \\ \beta^S - \beta^T &= h s^D h_t = g c^D g_t = h g_t \\ c^D - c^E &= e_t \beta^S e = h_t \varepsilon^S h = h_t e \\ s^E - s^D &= g_t \varepsilon^T g = d_t \beta^T d = d_t g \end{aligned}$			

ここで、表中の注釈を示す。

注1：単位系は MKS 単位系を使用。

注2：定数右肩の添字の意味は次のとおりである。

$$\begin{aligned}
 c^E, s^E &: E=0 \text{ で } E \text{ は一定 (電極間が短絡)} \\
 c^D, s^D &: D=0 \text{ で } D \text{ は一定 (電極間が開放)} \\
 \varepsilon^T, \beta^T &: T=0 \text{ で自由状態} \\
 \varepsilon^S, \beta^S &: S=0 \text{ で束縛状態}
 \end{aligned}$$

注3： $d_t, e_t, g_t, h_t$  の下付添字  $t$  は転置行列を表す。

注4：符号は伸び歪みを正、縮み歪みを負とする。

注5：諸定数のテンソル記号の意味は次のとおりである。

$$\begin{array}{l}
 S_{11} \\
 \left\{ \begin{array}{l} \longrightarrow \text{応力(または歪み)が1軸方向} \\ \longrightarrow \text{歪み(または応力)が1軸方向} \end{array} \right.
 \end{array}$$

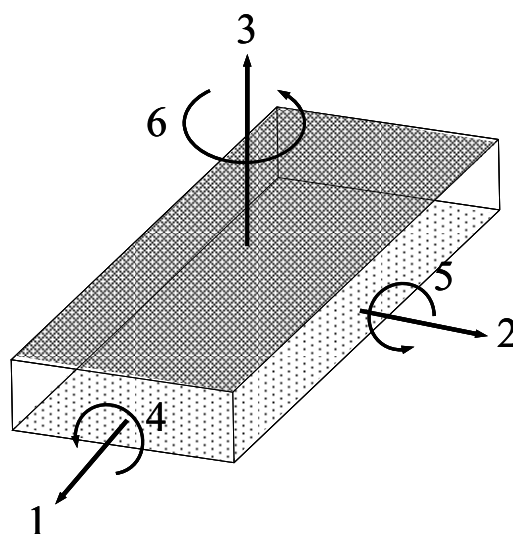
$$\begin{array}{l}
 C_{55} \\
 \left\{ \begin{array}{l} \longrightarrow \text{せん断応力が2軸の回転方向} \\ \longrightarrow \text{せん断歪みが2軸の回転方向} \end{array} \right.
 \end{array}$$

$$\begin{array}{l}
 d_{31} \\
 \left\{ \begin{array}{l} \longrightarrow \text{歪み(または応力)が1軸方向} \\ \longrightarrow \text{電界方向が3軸方向} \end{array} \right.
 \end{array}$$

$$\begin{array}{l}
 g_{33} \\
 \left\{ \begin{array}{l} \longrightarrow \text{応力(または歪み)が3軸方向} \\ \longrightarrow \text{電界方向が3軸方向} \end{array} \right.
 \end{array}$$

$$\begin{array}{l}
 d_{15} \\
 \left\{ \begin{array}{l} \longrightarrow \text{せん断歪みが2軸の回転方向} \\ \longrightarrow \text{電界方向が1軸方向} \end{array} \right.
 \end{array}$$

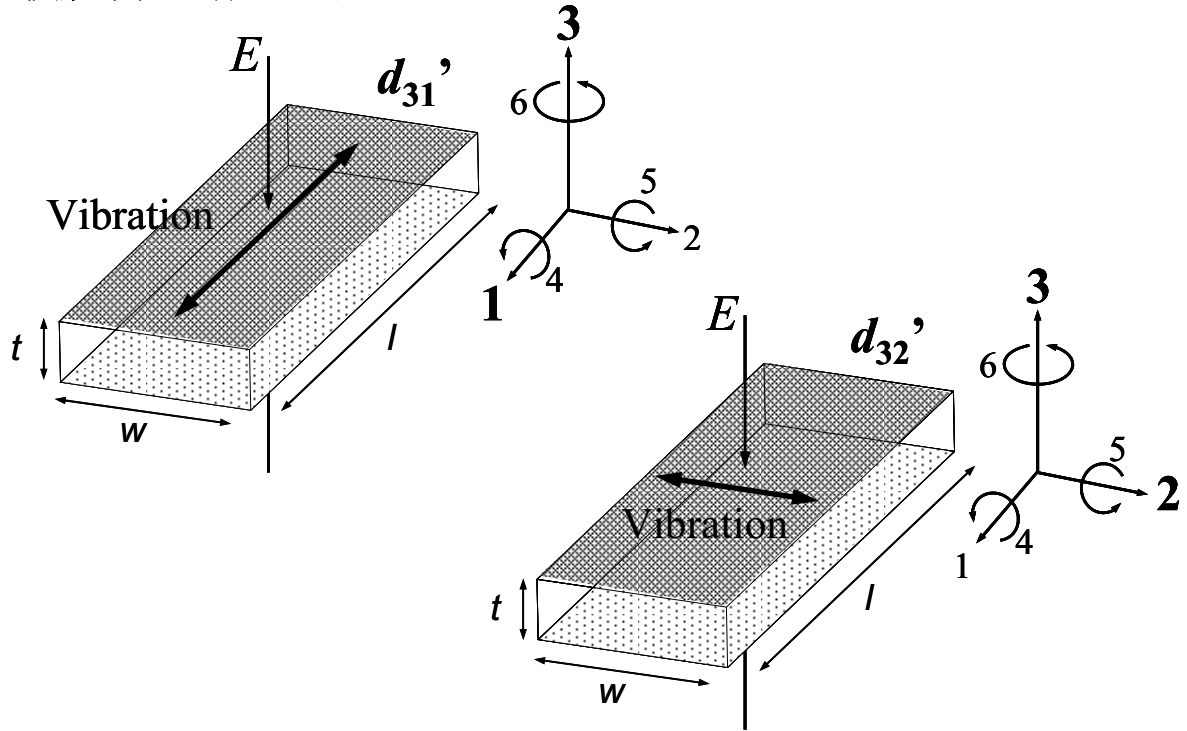
$$\begin{array}{l}
 \varepsilon_{33} \\
 \left\{ \begin{array}{l} \longrightarrow \text{電気変位が3軸方向} \\ \longrightarrow \text{電界方向が3軸方向} \end{array} \right.
 \end{array}$$



## A.6 各種振動モードと軸の関係ならびに算出式

各種振動モードと軸の関係ならびに算出式(その振動モードでの共振周波数と諸定数の関係式)を示す。但し、基本的な軸のとり方は付録 A.5 に従うものとする。

### 1 横効果長さ伸び振動



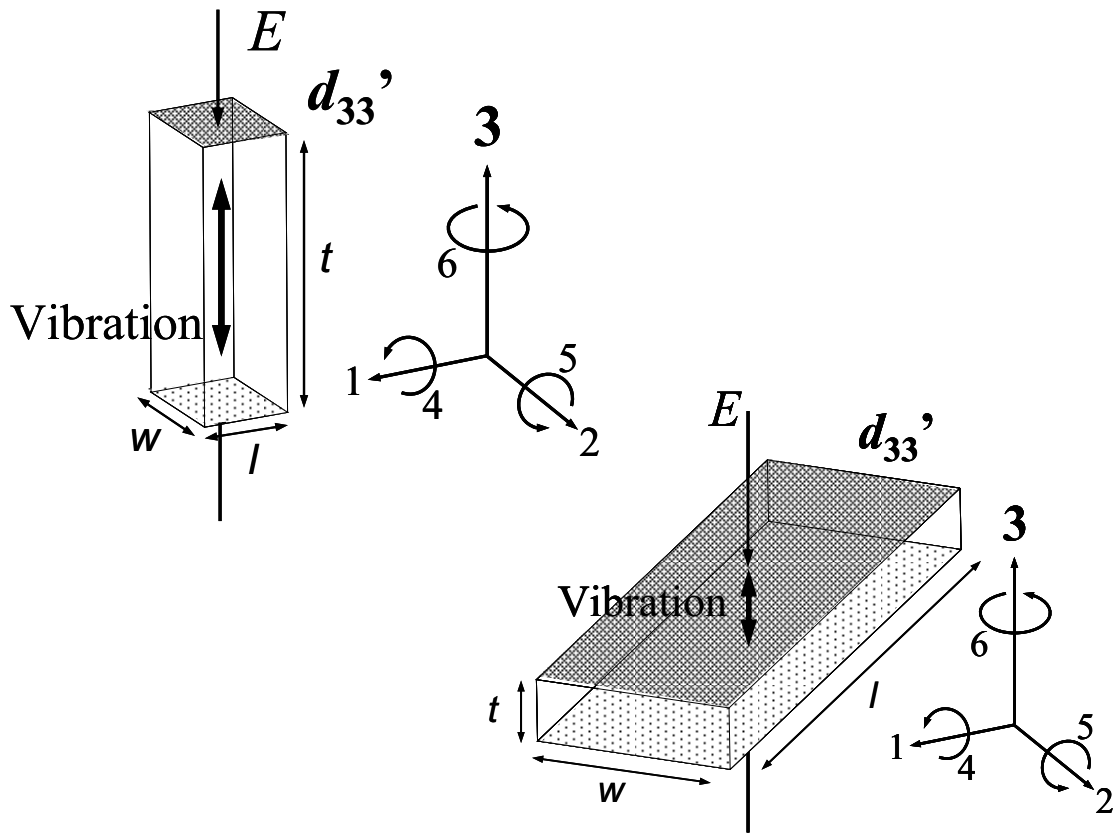
長さ方向の横効果長さ伸び振動の場合の算出式

$$\begin{aligned}
 s_{11}^{E'} &= \frac{1}{4l^2 f_s^2 \rho} \\
 \frac{k_{31}'^2}{1 - k_{31}'^2} &= \frac{\pi f_p}{2 f_s} \tan \left[ \frac{\pi f_p - f_s}{2 f_s} \right] \\
 d_{31}'^2 &= k_{31}'^2 \cdot \epsilon_{33}^{T'} \cdot s_{11}^{E'}
 \end{aligned} \tag{A-23}$$

ここで、 $f_s$ と $f_p$ は、それぞれ機械的直列共振周波数(アドミッタンス  $Y$  の実部であるコンダクタンス  $G$  が最大になる周波数)と機械的並列共振周波数(インピーダンス  $Z$  の実部である抵抗  $R$  が最大になる周波数)を表す。横効果であるため、電気機械結合係数の厳密解は共振周波数および反共振周波数を用いて上記の式で表すことができる。また、横効果であるためアドミッタンス  $Y$  の共振が音速に対する半波長である<sup>35)</sup>。



## 2 棒の縦効果厚み伸び振動と板の縦効果厚み振動

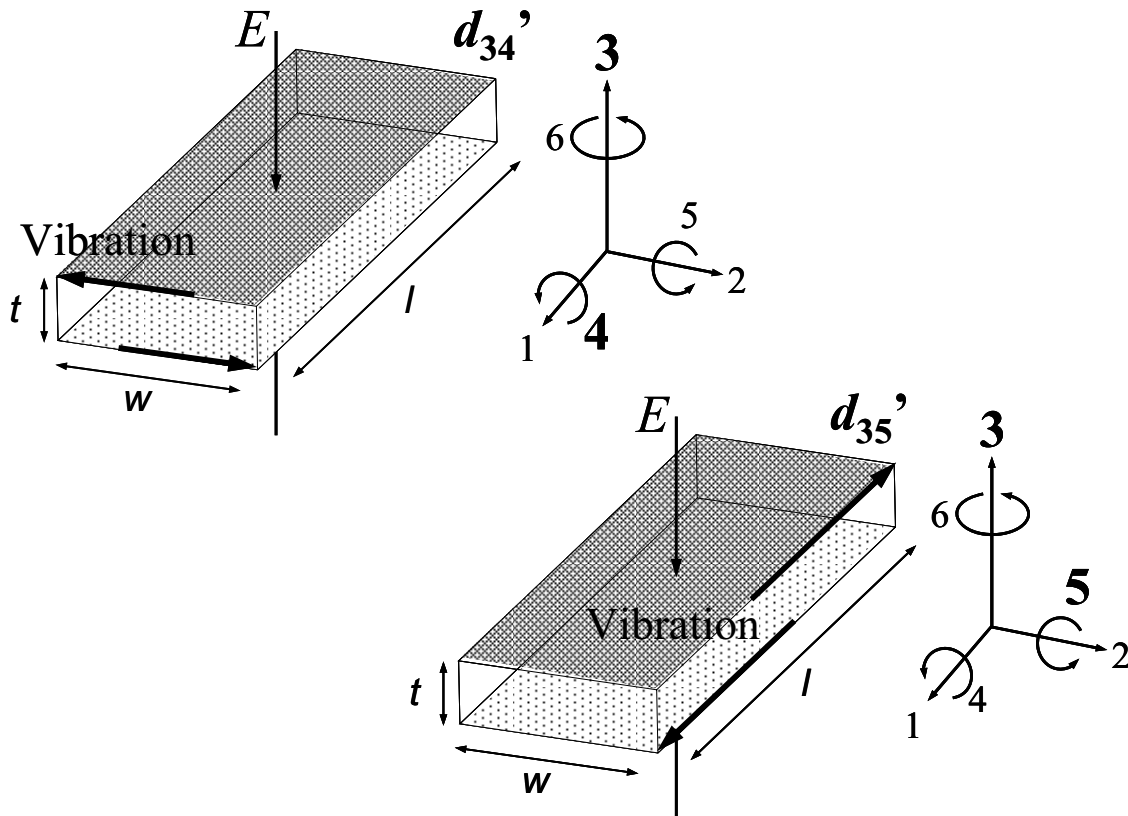


棒の縦効果厚み伸び振動の場合の算出式

$$\begin{aligned}
 s_{33}^{E'} &= \frac{1}{4t^2 f_p^2 \rho (1 - k_{33}'^2)} \\
 k_{33}'^2 &= \frac{\pi f_s}{2 f_p} \tan \left[ \frac{\pi f_p - f_s}{2 f_p} \right] \\
 d_{33}'^2 &= k_{33}'^2 \cdot \epsilon_{33}^{T'} \cdot s_{33}^{E'}
 \end{aligned}
 \tag{A-24}$$

ここで、 $f_s$ と $f_p$ は、それぞれ機械的直列共振周波数(アドミッタンス  $Y$  の実部であるコンダクタンス  $G$  が最大になる周波数)と機械的並列共振周波数(インピーダンス  $Z$  の実部である抵抗  $R$  が最大になる周波数)を表す。縦効果であるため、電気機械結合係数の厳密解は共振周波数および反共振周波数を用いて上記の式で表すことができる。また、縦効果であるためアドミッタンス  $Y$  の反共振が音速に対する半波長である<sup>35)</sup>。

### 3 縦効果厚みすべり振動

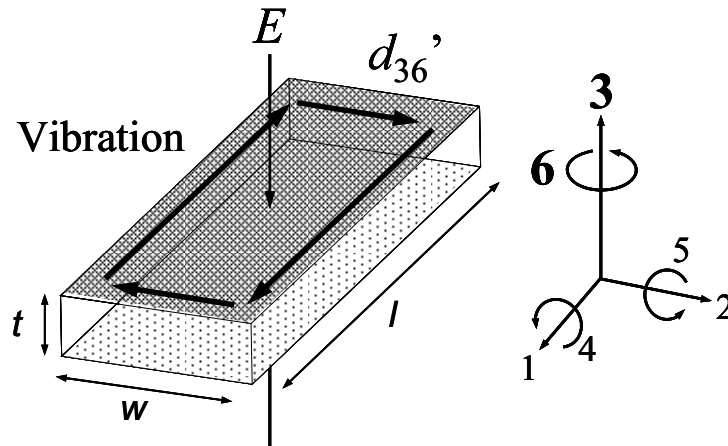


縦効果厚みすべり振動の場合の算出式

$$\begin{aligned}
 c_{55}^{D'} &= 4t^2 f_p^2 \rho \\
 k_{35}'^2 &= \frac{\pi}{2} \frac{f_s}{f_p} \tan \left[ \frac{\pi}{2} \frac{f_p - f_s}{f_p} \right] \\
 e_{35}'^2 &= k_{35}'^2 \cdot \epsilon_{33}^{S'} \cdot c_{55}^{D'}
 \end{aligned}
 \tag{A-25}$$

ここで、 $f_s$ と $f_p$ は、それぞれ機械的直列共振周波数(アドミッタンス  $Y$  の実部であるコンダクタンス  $G$  が最大になる周波数)と機械的並列共振周波数(インピーダンス  $Z$  の実部である抵抗  $R$  が最大になる周波数)を表す。縦効果であるため、電気機械結合係数の厳密解は共振周波数および反共振周波数を用いて上記の式で表すことができる。また、縦効果であるためアドミッタンス  $Y$  の反共振が音速に対する半波長である<sup>35)</sup>。

#### 4 横効果面内すべり振動

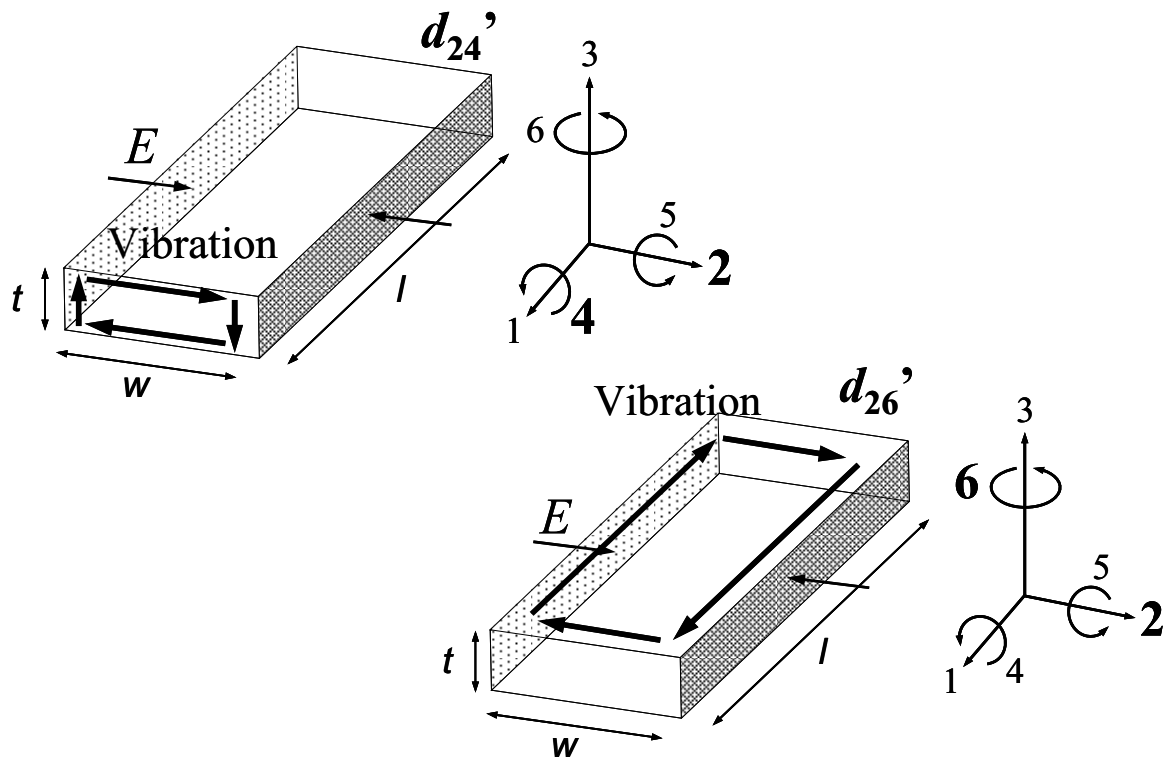


横効果面内すべり振動幅共振の場合の算出式

$$\begin{aligned}
 s_{66}^{E'} &= \frac{1}{4w^2 f_s^2 \rho} \\
 \frac{k_{36}'^2}{1 - k_{36}'^2} &= \frac{\pi f_p}{2 f_s} \tan \left[ \frac{\pi f_p - f_s}{2 f_s} \right] \\
 d_{36}'^2 &= k_{36}'^2 \cdot \epsilon_{33}^{T'} \cdot s_{66}^{E'}
 \end{aligned}
 \tag{A-26}$$

ここで、 $f_s$ と $f_p$ は、それぞれ機械的直列共振周波数(アドミッタンス  $Y$  の実部であるコンダクタンス  $G$  が最大になる周波数)と機械的並列共振周波数(インピーダンス  $Z$  の実部である抵抗  $R$  が最大になる周波数)を表す。横効果であるため、電気機械結合係数の厳密解は共振周波数および反共振周波数を用いて上記の式で表すことができる。また、横効果であるためアドミッタンス  $Y$  の共振が音速に対する半波長である<sup>35)</sup>。

## 5 縦効果面内すべり振動



縦効果面内すべり振動の場合の算出式

$$\begin{aligned}
 s_{66}^{E'} &= \frac{1}{4w^2 f_p^2 \rho (1 - k_{26}'^2)} \\
 k_{26}'^2 &= \frac{\pi f_s}{2 f_p} \tan \left[ \frac{\pi f_p - f_s}{2 f_p} \right] \\
 d_{26}'^2 &= k_{26}'^2 \cdot \varepsilon_{22}^T \cdot s_{66}^{E'}
 \end{aligned}
 \tag{A-27}$$

ここで、 $f_s$ と $f_p$ は、それぞれ機械的直列共振周波数(アドミッタンス  $Y$  の実部であるコンダクタンス  $G$  が最大になる周波数)と機械的並列共振周波数(インピーダンス  $Z$  の実部である抵抗  $R$  が最大になる周波数)を表す。縦効果であるため、電気機械結合係数の厳密解は共振周波数および反共振周波数を用いて上記の式で表すことができる。また、縦効果であるためアドミッタンス  $Y$  の反共振が音速に対する半波長である<sup>35)</sup>。

## A.7 点群 $m$ における物理的変数とオイラー角との関係

点群  $m$  における物理的変数(電気系では電界  $E$  や電束密度  $D$ 、機械系では応力  $T$  や歪み  $S$ )とオイラー角との関係を示す。ここで用いた  $l_i, m_i, n_i$  ( $i = 1\sim 3$ )については付録 A.3 を参照されたい。

### 1 電界 $E$ (電束密度 $D$ )

$$E'_1 = l_1 E_1 + m_1 E_2 + n_1 E_3$$

$$E'_2 = l_2 E_1 + m_2 E_2 + n_2 E_3$$

$$E'_3 = l_3 E_1 + m_3 E_2 + n_3 E_3$$

### 2 応力 $T$

$$T'_1 = l_1 l_1 T_1 + m_1 m_1 T_2 + n_1 n_1 T_3 + 2 m_1 n_1 T_4 + 2 l_1 n_1 T_5 + 2 l_1 m_1 T_6$$

$$T'_2 = l_2 l_2 T_1 + m_2 m_2 T_2 + n_2 n_2 T_3 + 2 m_2 n_2 T_4 + 2 l_2 n_2 T_5 + 2 l_2 m_2 T_6$$

$$T'_3 = l_3 l_3 T_1 + m_3 m_3 T_2 + n_3 n_3 T_3 + 2 m_3 n_3 T_4 + 2 l_3 n_3 T_5 + 2 l_3 m_3 T_6$$

$$T'_4 = l_2 l_3 T_1 + m_2 m_3 T_2 + n_2 n_3 T_3 + (m_2 n_3 + n_2 m_3) T_4 + (l_2 n_3 + n_2 l_3) T_5 + (l_2 m_3 + m_2 l_3) T_6$$

$$T'_5 = l_1 l_3 T_1 + m_1 m_3 T_2 + n_1 n_3 T_3 + (m_1 n_3 + n_1 m_3) T_4 + (l_1 n_3 + n_1 l_3) T_5 + (l_1 m_3 + m_1 l_3) T_6$$

$$T'_6 = l_1 l_2 T_1 + m_1 m_2 T_2 + n_1 n_2 T_3 + (m_1 n_2 + n_1 m_2) T_4 + (l_1 n_2 + n_1 l_2) T_5 + (l_1 m_2 + m_1 l_2) T_6$$

### 3 歪み $S$

$$S'_1 = l_1 l_1 S_1 + m_1 m_1 S_2 + n_1 n_1 S_3 + m_1 n_1 S_4 + l_1 n_1 S_5 + l_1 m_1 S_6$$

$$S'_2 = l_2 l_2 S_1 + m_2 m_2 S_2 + n_2 n_2 S_3 + m_2 n_2 S_4 + l_2 n_2 S_5 + l_2 m_2 S_6$$

$$S'_3 = l_3 l_3 S_1 + m_3 m_3 S_2 + n_3 n_3 S_3 + m_3 n_3 S_4 + l_3 n_3 S_5 + l_3 m_3 S_6$$

$$S'_4 = 2 l_2 l_3 S_1 + 2 m_2 m_3 S_2 + 2 n_2 n_3 S_3 + (m_2 n_3 + n_2 m_3) S_4 + (l_2 n_3 + n_2 l_3) S_5 + (l_2 m_3 + m_2 l_3) S_6$$

$$S'_5 = 2 l_1 l_3 S_1 + 2 m_1 m_3 S_2 + 2 n_1 n_3 S_3 + (m_1 n_3 + n_1 m_3) S_4 + (l_1 n_3 + n_1 l_3) S_5 + (l_1 m_3 + m_1 l_3) S_6$$

$$S'_6 = 2 l_1 l_2 S_1 + 2 m_1 m_2 S_2 + 2 n_1 n_2 S_3 + (m_1 n_2 + n_1 m_2) S_4 + (l_1 n_2 + n_1 l_2) S_5 + (l_1 m_2 + m_1 l_2) S_6$$

### 4 誘電率 $\epsilon$

$$\epsilon'_{11} = l_1 l_1 \epsilon_{11} + 2 l_1 n_1 \epsilon_{13} + m_1 m_1 \epsilon_{22} + n_1 n_1 \epsilon_{33}$$

$$\epsilon'_{12} = l_1 l_2 \epsilon_{11} + (l_1 n_2 + n_1 l_2) \epsilon_{13} + m_1 m_2 \epsilon_{22} + n_1 n_2 \epsilon_{33}$$

$$\epsilon'_{13} = l_1 l_3 \epsilon_{11} + (l_1 n_3 + n_1 l_3) \epsilon_{13} + m_1 m_3 \epsilon_{22} + n_1 n_3 \epsilon_{33}$$

$$\epsilon'_{22} = l_2 l_2 \epsilon_{11} + 2 l_2 n_2 \epsilon_{13} + m_2 m_2 \epsilon_{22} + n_2 n_2 \epsilon_{33}$$

$$\epsilon'_{23} = l_2 l_3 \epsilon_{11} + (l_2 n_3 + n_2 l_3) \epsilon_{13} + m_2 m_3 \epsilon_{22} + n_2 n_3 \epsilon_{33}$$

$$\epsilon'_{33} = l_3 l_3 \epsilon_{11} + 2 l_3 n_3 \epsilon_{13} + m_3 m_3 \epsilon_{22} + n_3 n_3 \epsilon_{33}$$

## 5 圧電定数 $e$

$$e'_{11} = l_1 l_1 l_1 e_{11} + l_1 m_1 m_1 e_{12} + l_1 n_1 n_1 e_{13} + 2 l_1 l_1 n_1 e_{15} + 2 m_1 m_1 n_1 e_{24} + 2 l_1 m_1 m_1 e_{26} + l_1 l_1 n_1 e_{31} \\ + m_1 m_1 n_1 e_{32} + n_1 n_1 n_1 e_{33} + 2 l_1 n_1 n_1 e_{35}$$

$$e'_{12} = l_1 l_2 l_2 e_{11} + l_1 m_2 m_2 e_{12} + l_1 n_2 n_2 e_{13} + 2 l_1 l_2 n_2 e_{15} + 2 m_1 m_2 n_2 e_{24} + 2 m_1 l_2 m_2 e_{26} + n_1 l_2 l_2 e_{31} \\ + n_1 m_2 m_2 e_{32} + n_1 n_2 n_2 e_{33} + 2 n_1 l_2 n_2 e_{35}$$

$$e'_{13} = l_1 l_3 l_3 e_{11} + l_1 m_3 m_3 e_{12} + l_1 n_3 n_3 e_{13} + 2 l_1 l_3 n_3 e_{15} + 2 m_1 m_3 n_3 e_{24} + 2 m_1 l_3 m_3 e_{26} + n_1 l_3 l_3 e_{31} \\ + n_1 m_3 m_3 e_{32} + n_1 n_3 n_3 e_{33} + 2 n_1 l_3 n_3 e_{35}$$

$$e'_{14} = l_1 l_2 l_3 e_{11} + l_1 m_2 m_3 e_{12} + l_1 n_2 n_3 e_{13} + (l_1 l_2 n_3 + l_1 n_2 l_3) e_{15} + (m_1 m_2 n_3 + m_1 n_2 m_3) e_{24} \\ + (m_1 l_2 m_3 + m_1 m_2 l_3) e_{26} + n_1 l_2 l_3 e_{31} + n_1 m_2 m_3 e_{32} + n_1 n_2 n_3 e_{33} + (n_1 l_2 n_3 + n_1 n_2 l_3) e_{35}$$

$$e'_{15} = l_1 l_1 l_3 e_{11} + l_1 m_1 m_3 e_{12} + l_1 n_1 n_3 e_{13} + (l_1 l_1 n_3 + l_1 n_1 l_3) e_{15} + (m_1 m_1 n_3 + m_1 n_1 m_3) e_{24} \\ + (l_1 m_1 m_3 + m_1 m_1 l_3) e_{26} + l_1 n_1 l_3 e_{31} + m_1 n_1 m_3 e_{32} + n_1 n_1 n_3 e_{33} + (l_1 n_1 n_3 + n_1 n_1 l_3) e_{35}$$

$$e'_{16} = l_1 l_1 l_2 e_{11} + l_1 m_1 m_2 e_{12} + l_1 n_1 n_2 e_{13} + (l_1 l_1 n_2 + l_1 n_1 l_2) e_{15} + (m_1 m_1 n_2 + m_1 n_1 m_2) e_{24} \\ + (l_1 m_1 m_2 + m_1 m_1 l_2) e_{26} + l_1 n_1 l_2 e_{31} + m_1 n_1 m_2 e_{32} + n_1 n_1 n_2 e_{33} + (l_1 n_1 n_2 + n_1 n_1 l_2) e_{35}$$

$$e'_{21} = l_1 l_1 l_2 e_{11} + m_1 m_1 l_2 e_{12} + n_1 n_1 l_2 e_{13} + 2 l_1 n_1 l_2 e_{15} + 2 m_1 n_1 m_2 e_{24} + 2 l_1 m_1 m_2 e_{26} + l_1 l_1 n_2 e_{31} \\ + m_1 m_1 n_2 e_{32} + n_1 n_1 n_2 e_{33} + 2 l_1 n_1 n_2 e_{35}$$

$$e'_{22} = l_2 l_2 l_2 e_{11} + l_2 m_2 m_2 e_{12} + l_2 n_2 n_2 e_{13} + 2 l_2 l_2 n_2 e_{15} + 2 m_2 m_2 n_2 e_{24} + 2 l_2 m_2 m_2 e_{26} + l_2 l_2 n_2 e_{31} \\ + m_2 m_2 n_2 e_{32} + n_2 n_2 n_2 e_{33} + 2 l_2 n_2 n_2 e_{35}$$

$$e'_{23} = l_2 l_3 l_3 e_{11} + l_2 m_3 m_3 e_{12} + l_2 n_3 n_3 e_{13} + 2 l_2 l_3 n_3 e_{15} + 2 m_2 m_3 n_3 e_{24} + 2 m_2 l_3 m_3 e_{26} + n_2 l_3 l_3 e_{31} \\ + n_2 m_3 m_3 e_{32} + n_2 n_3 n_3 e_{33} + 2 n_2 l_3 n_3 e_{35}$$

$$e'_{24} = l_2 l_2 l_3 e_{11} + l_2 m_2 m_3 e_{12} + l_2 n_2 n_3 e_{13} + (l_2 l_2 n_3 + l_2 n_2 l_3) e_{15} + (m_2 m_2 n_3 + m_2 n_2 m_3) e_{24} \\ + (l_2 m_2 m_3 + m_2 m_2 l_3) e_{26} + l_2 n_2 l_3 e_{31} + m_2 n_2 m_3 e_{32} + n_2 n_2 n_3 e_{33} + (l_2 n_2 n_3 + n_2 n_2 l_3) e_{35}$$

$$e'_{25} = l_1 l_2 l_3 e_{11} + m_1 l_2 m_3 e_{12} + n_1 l_2 n_3 e_{13} + (l_1 l_2 n_3 + n_1 l_2 l_3) e_{15} + (m_1 m_2 n_3 + n_1 m_2 m_3) e_{24} \\ + (l_1 m_2 m_3 + m_1 m_2 l_3) e_{26} + l_1 n_2 l_3 e_{31} + m_1 n_2 m_3 e_{32} + n_1 n_2 n_3 e_{33} + (l_1 n_2 n_3 + n_1 n_2 l_3) e_{35}$$

$$e'_{26} = l_1 l_2 l_2 e_{11} + m_1 l_2 m_2 e_{12} + n_1 l_2 n_2 e_{13} + (l_1 l_2 n_2 + n_1 l_2 l_2) e_{15} + (m_1 m_2 n_2 + n_1 m_2 m_2) e_{24} \\ + (l_1 m_2 m_2 + m_1 l_2 m_2) e_{26} + l_1 l_2 n_2 e_{31} + m_1 m_2 n_2 e_{32} + n_1 n_2 n_2 e_{33} + (l_1 n_2 n_2 + n_1 l_2 n_2) e_{35}$$

$$e'_{31} = l_1 l_1 l_3 e_{11} + m_1 m_1 l_3 e_{12} + n_1 n_1 l_3 e_{13} + 2 l_1 n_1 l_3 e_{15} + 2 m_1 n_1 m_3 e_{24} + 2 l_1 m_1 m_3 e_{26} + l_1 l_1 n_3 e_{31} \\ + m_1 m_1 n_3 e_{32} + n_1 n_1 n_3 e_{33} + 2 l_1 n_1 n_3 e_{35}$$

$$e'_{32} = l_2 l_2 l_3 e_{11} + m_2 m_2 l_3 e_{12} + n_2 n_2 l_3 e_{13} + 2 l_2 n_2 l_3 e_{15} + 2 m_2 n_2 m_3 e_{24} + 2 l_2 m_2 m_3 e_{26} + l_2 l_2 n_3 e_{31} \\ + m_2 m_2 n_3 e_{32} + n_2 n_2 n_3 e_{33} + 2 l_2 n_2 n_3 e_{35}$$

$$e'_{33} = l_3 l_3 l_3 e_{11} + l_3 m_3 m_3 e_{12} + l_3 n_3 n_3 e_{13} + 2 l_3 l_3 n_3 e_{15} + 2 m_3 m_3 n_3 e_{24} + 2 l_3 m_3 m_3 e_{26} + l_3 l_3 n_3 e_{31} \\ + m_3 m_3 n_3 e_{32} + n_3 n_3 n_3 e_{33} + 2 l_3 n_3 n_3 e_{35}$$

$$e'_{34} = l_2 l_3 l_3 e_{11} + m_2 l_3 m_3 e_{12} + n_2 l_3 n_3 e_{13} + (l_2 l_3 n_3 + n_2 l_3 l_3) e_{15} + (m_2 m_3 n_3 + n_2 m_3 m_3) e_{24} \\ + (l_2 m_3 m_3 + m_2 l_3 m_3) e_{26} + l_2 l_3 n_3 e_{31} + m_2 m_3 n_3 e_{32} + n_2 n_3 n_3 e_{33} + (l_2 n_3 n_3 + n_2 l_3 n_3) e_{35}$$

$$e'_{35} = l_1 l_3 l_3 e_{11} + m_1 l_3 m_3 e_{12} + n_1 l_3 n_3 e_{13} + (l_1 l_3 n_3 + n_1 l_3 l_3) e_{15} + (m_1 m_3 n_3 + n_1 m_3 m_3) e_{24} \\ + (l_1 m_3 m_3 + m_1 l_3 m_3) e_{26} + l_1 l_3 n_3 e_{31} + m_1 m_3 n_3 e_{32} + n_1 n_3 n_3 e_{33} + (l_1 n_3 n_3 + n_1 l_3 n_3) e_{35}$$

$$e'_{36} = l_1 l_2 l_3 e_{11} + m_1 m_2 l_3 e_{12} + n_1 n_2 l_3 e_{13} + (l_1 n_2 l_3 + n_1 l_2 l_3) e_{15} + (m_1 n_2 m_3 + n_1 m_2 m_3) e_{24} \\ + (l_1 m_2 m_3 + m_1 l_2 m_3) e_{26} + l_1 l_2 n_3 e_{31} + m_1 m_2 n_3 e_{32} + n_1 n_2 n_3 e_{33} + (l_1 n_2 n_3 + n_1 l_2 n_3) e_{35}$$

## 6 圧電定数 $d$

$$\begin{aligned}
 d'_{11} &= l_1 l_1 l_1 d_{11} + l_1 m_1 m_1 d_{12} + l_1 n_1 n_1 d_{13} + l_1 l_1 n_1 d_{15} + m_1 m_1 n_1 d_{24} + l_1 m_1 m_1 d_{26} + l_1 l_1 n_1 d_{31} \\
 &\quad + m_1 m_1 n_1 d_{32} + n_1 n_1 n_1 d_{33} + l_1 n_1 n_1 d_{35} \\
 d'_{12} &= l_1 l_2 l_2 d_{11} + l_1 m_2 m_2 d_{12} + l_1 n_2 n_2 d_{13} + l_1 l_2 n_2 d_{15} + m_1 m_2 n_2 d_{24} + m_1 l_2 m_2 d_{26} + n_1 l_2 l_2 d_{31} \\
 &\quad + n_1 m_2 m_2 d_{32} + n_1 n_2 n_2 d_{33} + n_1 l_2 n_2 d_{35} \\
 d'_{13} &= l_1 l_3 l_3 d_{11} + l_1 m_3 m_3 d_{12} + l_1 n_3 n_3 d_{13} + l_1 l_3 n_3 d_{15} + m_1 m_3 n_3 d_{24} + m_1 l_3 m_3 d_{26} + n_1 l_3 l_3 d_{31} \\
 &\quad + n_1 m_3 m_3 d_{32} + n_1 n_3 n_3 d_{33} + n_1 l_3 n_3 d_{35} \\
 d'_{14} &= 2 l_1 l_2 l_3 d_{11} + 2 l_1 m_2 m_3 d_{12} + 2 l_1 n_2 n_3 d_{13} + (l_1 l_2 n_3 + l_1 n_2 l_3) d_{15} + (m_1 m_2 n_3 + m_1 n_2 m_3) d_{24} \\
 &\quad + (m_1 l_2 m_3 + m_1 m_2 l_3) d_{26} + 2 n_1 l_2 l_3 d_{31} + 2 n_1 m_2 m_3 d_{32} + 2 n_1 n_2 n_3 d_{33} + (n_1 l_2 n_3 + n_1 n_2 l_3) d_{35} \\
 d'_{15} &= 2 l_1 l_1 l_3 d_{11} + 2 l_1 m_1 m_3 d_{12} + 2 l_1 n_1 n_3 d_{13} + (l_1 l_1 n_3 + l_1 n_1 l_3) d_{15} + (m_1 m_1 n_3 + m_1 n_1 m_3) d_{24} \\
 &\quad + (l_1 m_1 m_3 + m_1 m_1 l_3) d_{26} + 2 l_1 n_1 l_3 d_{31} + 2 m_1 n_1 m_3 d_{32} + 2 n_1 n_1 n_3 d_{33} + (l_1 n_1 n_3 + n_1 n_1 l_3) d_{35} \\
 d'_{16} &= 2 l_1 l_1 l_2 d_{11} + 2 l_1 m_1 m_2 d_{12} + 2 l_1 n_1 n_2 d_{13} + (l_1 l_1 n_2 + l_1 n_1 l_2) d_{15} + (m_1 m_1 n_2 + m_1 n_1 m_2) d_{24} \\
 &\quad + (l_1 m_1 m_2 + m_1 m_1 l_2) d_{26} + 2 l_1 n_1 l_2 d_{31} + 2 m_1 n_1 m_2 d_{32} + 2 n_1 n_1 n_2 d_{33} + (l_1 n_1 n_2 + n_1 n_1 l_2) d_{35} \\
 d'_{21} &= l_1 l_1 l_2 d_{11} + m_1 m_1 l_2 d_{12} + n_1 n_1 l_2 d_{13} + l_1 n_1 l_2 d_{15} + m_1 n_1 m_2 d_{24} + l_1 m_1 m_2 d_{26} + l_1 l_1 n_2 d_{31} \\
 &\quad + m_1 m_1 n_2 d_{32} + n_1 n_1 n_2 d_{33} + l_1 n_1 n_2 d_{35} \\
 d'_{22} &= l_2 l_2 l_2 d_{11} + l_2 m_2 m_2 d_{12} + l_2 n_2 n_2 d_{13} + l_2 l_2 n_2 d_{15} + m_2 m_2 n_2 d_{24} + l_2 m_2 m_2 d_{26} + l_2 l_2 n_2 d_{31} \\
 &\quad + m_2 m_2 n_2 d_{32} + n_2 n_2 n_2 d_{33} + l_2 n_2 n_2 d_{35} \\
 d'_{23} &= l_2 l_3 l_3 d_{11} + l_2 m_3 m_3 d_{12} + l_2 n_3 n_3 d_{13} + l_2 l_3 n_3 d_{15} + m_2 m_3 n_3 d_{24} + m_2 l_3 m_3 d_{26} + n_2 l_3 l_3 d_{31} \\
 &\quad + n_2 m_3 m_3 d_{32} + n_2 n_3 n_3 d_{33} + n_2 l_3 n_3 d_{35} \\
 d'_{24} &= 2 l_2 l_2 l_3 d_{11} + 2 l_2 m_2 m_3 d_{12} + 2 l_2 n_2 n_3 d_{13} + (l_2 l_2 n_3 + l_2 n_2 l_3) d_{15} + (m_2 m_2 n_3 + m_2 n_2 m_3) d_{24} \\
 &\quad + (l_2 m_2 m_3 + m_2 m_2 l_3) d_{26} + 2 l_2 n_2 l_3 d_{31} + 2 m_2 n_2 m_3 d_{32} + 2 n_2 n_2 n_3 d_{33} + (l_2 n_2 n_3 + n_2 n_2 l_3) d_{35} \\
 d'_{25} &= 2 l_1 l_2 l_3 d_{11} + 2 m_1 l_2 m_3 d_{12} + 2 n_1 l_2 n_3 d_{13} + (l_1 l_2 n_3 + n_1 l_2 l_3) d_{15} + (m_1 m_2 n_3 + n_1 m_2 m_3) d_{24} \\
 &\quad + (l_1 m_2 m_3 + m_1 m_2 l_3) d_{26} + 2 l_1 n_2 l_3 d_{31} + 2 m_1 n_2 m_3 d_{32} + 2 n_1 n_2 n_3 d_{33} + (l_1 n_2 n_3 + n_1 n_2 l_3) d_{35} \\
 d'_{26} &= 2 l_1 l_2 l_2 d_{11} + 2 m_1 l_2 m_2 d_{12} + 2 n_1 l_2 n_2 d_{13} + (l_1 l_2 n_2 + n_1 l_2 l_2) d_{15} + (m_1 m_2 n_2 + n_1 m_2 m_2) d_{24} \\
 &\quad + (l_1 m_2 m_2 + m_1 l_2 m_2) d_{26} + 2 l_1 l_2 n_2 d_{31} + 2 m_1 m_2 n_2 d_{32} + 2 n_1 n_2 n_2 d_{33} + (l_1 n_2 n_2 + n_1 l_2 n_2) d_{35} \\
 d'_{31} &= l_1 l_1 l_3 d_{11} + m_1 m_1 l_3 d_{12} + n_1 n_1 l_3 d_{13} + l_1 n_1 l_3 d_{15} + m_1 n_1 m_3 d_{24} + l_1 m_1 m_3 d_{26} + l_1 l_1 n_3 d_{31} \\
 &\quad + m_1 m_1 n_3 d_{32} + n_1 n_1 n_3 d_{33} + l_1 n_1 n_3 d_{35} \\
 d'_{32} &= l_2 l_2 l_3 d_{11} + m_2 m_2 l_3 d_{12} + n_2 n_2 l_3 d_{13} + l_2 n_2 l_3 d_{15} + m_2 n_2 m_3 d_{24} + l_2 m_2 m_3 d_{26} + l_2 l_2 n_3 d_{31} \\
 &\quad + m_2 m_2 n_3 d_{32} + n_2 n_2 n_3 d_{33} + l_2 n_2 n_3 d_{35} \\
 d'_{33} &= l_3 l_3 l_3 d_{11} + l_3 m_3 m_3 d_{12} + l_3 n_3 n_3 d_{13} + l_3 l_3 n_3 d_{15} + m_3 m_3 n_3 d_{24} + l_3 m_3 m_3 d_{26} + l_3 l_3 n_3 d_{31} \\
 &\quad + m_3 m_3 n_3 d_{32} + n_3 n_3 n_3 d_{33} + l_3 n_3 n_3 d_{35} \\
 d'_{34} &= 2 l_2 l_3 l_3 d_{11} + 2 m_2 l_3 m_3 d_{12} + 2 n_2 l_3 n_3 d_{13} + (l_2 l_3 n_3 + n_2 l_3 l_3) d_{15} + (m_2 m_3 n_3 + n_2 m_3 m_3) d_{24} \\
 &\quad + (l_2 m_3 m_3 + m_2 l_3 m_3) d_{26} + 2 l_2 l_3 n_3 d_{31} + 2 m_2 m_3 n_3 d_{32} + 2 n_2 n_3 n_3 d_{33} + (l_2 n_3 n_3 + n_2 l_3 n_3) d_{35} \\
 d'_{35} &= 2 l_1 l_3 l_3 d_{11} + 2 m_1 l_3 m_3 d_{12} + 2 n_1 l_3 n_3 d_{13} + (l_1 l_3 n_3 + n_1 l_3 l_3) d_{15} + (m_1 m_3 n_3 + n_1 m_3 m_3) d_{24} \\
 &\quad + (l_1 m_3 m_3 + m_1 l_3 m_3) d_{26} + 2 l_1 l_3 n_3 d_{31} + 2 m_1 m_3 n_3 d_{32} + 2 n_1 n_3 n_3 d_{33} + (l_1 n_3 n_3 + n_1 l_3 n_3) d_{35} \\
 d'_{36} &= 2 l_1 l_2 l_3 d_{11} + 2 m_1 m_2 l_3 d_{12} + 2 n_1 n_2 l_3 d_{13} + (l_1 n_2 l_3 + n_1 l_2 l_3) d_{15} + (m_1 n_2 m_3 + n_1 m_2 m_3) d_{24} \\
 &\quad + (l_1 m_2 m_3 + m_1 l_2 m_3) d_{26} + 2 l_1 l_2 n_3 d_{31} + 2 m_1 m_2 n_3 d_{32} + 2 n_1 n_2 n_3 d_{33} + (l_1 n_2 n_3 + n_1 l_2 n_3) d_{35}
 \end{aligned}$$

## 7 弾性ステイフネス $c$

$$\begin{aligned}
c'_{11} &= l_1 l_1 l_1 c_{11} + 2 l_1 l_1 m_1 m_1 c_{12} + 2 l_1 l_1 n_1 n_1 c_{13} + 4 l_1 l_1 l_1 n_1 c_{15} + m_1 m_1 m_1 m_1 c_{22} \\
&\quad + 2 m_1 m_1 n_1 n_1 c_{23} + 4 l_1 m_1 m_1 n_1 c_{25} + n_1 n_1 n_1 n_1 c_{33} + 4 l_1 n_1 n_1 n_1 c_{35} + 4 m_1 m_1 n_1 n_1 c_{44} \\
&\quad + 8 l_1 m_1 m_1 n_1 c_{46} + 4 l_1 l_1 n_1 n_1 c_{55} + 4 l_1 l_1 m_1 m_1 c_{66} \\
c'_{12} &= l_1 l_1 l_2 c_{11} + (l_1 l_1 m_2 m_2 + m_1 m_1 l_2 l_2) c_{12} + (l_1 l_1 n_2 n_2 + n_1 n_1 l_2 l_2) c_{13} \\
&\quad + (2 l_1 l_1 l_2 n_2 + 2 l_1 n_1 l_2 l_2) c_{15} + m_1 m_1 m_2 m_2 c_{22} + (m_1 m_1 n_2 n_2 + n_1 n_1 m_2 m_2) c_{23} \\
&\quad + (2 l_1 n_1 m_2 m_2 + 2 m_1 m_1 l_2 n_2) c_{25} + n_1 n_1 n_2 n_2 c_{33} + (2 l_1 n_1 n_2 n_2 + 2 n_1 n_1 l_2 n_2) c_{35} \\
&\quad + 4 m_1 n_1 m_2 n_2 c_{44} + (4 l_1 m_1 m_2 n_2 + 4 m_1 n_1 l_2 m_2) c_{46} + 4 l_1 n_1 l_2 n_2 c_{55} + 4 l_1 m_1 l_2 m_2 c_{66} \\
c'_{13} &= l_1 l_1 l_3 c_{11} + (l_1 l_1 m_3 m_3 + m_1 m_1 l_3 l_3) c_{12} + (l_1 l_1 n_3 n_3 + n_1 n_1 l_3 l_3) c_{13} \\
&\quad + (2 l_1 l_1 l_3 n_3 + 2 l_1 n_1 l_3 l_3) c_{15} + m_1 m_1 m_3 m_3 c_{22} + (m_1 m_1 n_3 n_3 + n_1 n_1 m_3 m_3) c_{23} \\
&\quad + (2 l_1 n_1 m_3 m_3 + 2 m_1 m_1 l_3 n_3) c_{25} + n_1 n_1 n_3 n_3 c_{33} + (2 l_1 n_1 n_3 n_3 + 2 n_1 n_1 l_3 n_3) c_{35} \\
&\quad + 4 m_1 n_1 m_3 n_3 c_{44} + (4 l_1 m_1 m_3 n_3 + 4 m_1 n_1 l_3 m_3) c_{46} + 4 l_1 n_1 l_3 n_3 c_{55} + 4 l_1 m_1 l_3 m_3 c_{66} \\
c'_{14} &= l_1 l_1 l_2 l_3 c_{11} + (l_1 l_1 m_2 m_3 + m_1 m_1 l_2 l_3) c_{12} + (l_1 l_1 n_2 n_3 + n_1 n_1 l_2 l_3) c_{13} \\
&\quad + (l_1 l_1 l_2 n_3 + l_1 l_1 n_2 l_3 + 2 l_1 n_1 l_2 l_3) c_{15} + m_1 m_1 m_2 m_3 c_{22} + (m_1 m_1 n_2 n_3 + n_1 n_1 m_2 m_3) c_{23} \\
&\quad + (2 l_1 n_1 m_2 m_3 + m_1 m_1 l_2 n_3 + m_1 m_1 n_2 l_3) c_{25} + n_1 n_1 n_2 n_3 c_{33} \\
&\quad + (2 l_1 n_1 n_2 n_3 + n_1 n_1 l_2 n_3 + n_1 n_1 n_2 l_3) c_{35} + (2 m_1 n_1 m_2 n_3 + 2 m_1 n_1 n_2 m_3) c_{44} \\
&\quad + (2 l_1 m_1 m_2 n_3 + 2 l_1 m_1 n_2 m_3 + 2 m_1 n_1 l_2 m_3 + 2 m_1 n_1 m_2 l_3) c_{46} + (2 l_1 n_1 l_2 n_3 + 2 l_1 n_1 n_2 l_3) c_{55} \\
&\quad + (2 l_1 m_1 l_2 m_3 + 2 l_1 m_1 m_2 l_3) c_{66} \\
c'_{15} &= l_1 l_1 l_1 l_3 c_{11} + (l_1 l_1 m_1 m_3 + l_1 m_1 m_1 l_3) c_{12} + (l_1 l_1 n_1 n_3 + l_1 n_1 n_1 l_3) c_{13} \\
&\quad + (l_1 l_1 l_1 n_3 + 3 l_1 l_1 n_1 l_3) c_{15} + m_1 m_1 m_1 m_3 c_{22} + (m_1 m_1 n_1 n_3 + m_1 n_1 n_1 m_3) c_{23} \\
&\quad + (l_1 m_1 m_1 n_3 + 2 l_1 m_1 n_1 m_3 + m_1 m_1 n_1 l_3) c_{25} + n_1 n_1 n_1 n_3 c_{33} + (3 l_1 n_1 n_1 n_3 + n_1 n_1 n_1 l_3) c_{35} \\
&\quad + (2 m_1 m_1 n_1 n_3 + 2 m_1 n_1 n_1 m_3) c_{44} + (2 l_1 m_1 m_1 n_3 + 4 l_1 m_1 n_1 m_3 + 2 m_1 m_1 n_1 l_3) c_{46} \\
&\quad + (2 l_1 l_1 n_1 n_3 + 2 l_1 n_1 n_1 l_3) c_{55} + (2 l_1 l_1 m_1 m_3 + 2 l_1 m_1 m_1 l_3) c_{66} \\
c'_{16} &= l_1 l_1 l_1 l_2 c_{11} + (l_1 l_1 m_1 m_2 + l_1 m_1 m_1 l_2) c_{12} + (l_1 l_1 n_1 n_2 + l_1 n_1 n_1 l_2) c_{13} \\
&\quad + (l_1 l_1 l_1 n_2 + 3 l_1 l_1 n_1 l_2) c_{15} + m_1 m_1 m_1 m_2 c_{22} + (m_1 m_1 n_1 n_2 + m_1 n_1 n_1 m_2) c_{23} \\
&\quad + (l_1 m_1 m_1 n_2 + 2 l_1 m_1 n_1 m_2 + m_1 m_1 n_1 l_2) c_{25} + n_1 n_1 n_1 n_2 c_{33} + (3 l_1 n_1 n_1 n_2 + n_1 n_1 n_1 l_2) c_{35} \\
&\quad + (2 m_1 m_1 n_1 n_2 + 2 m_1 n_1 n_1 m_2) c_{44} + (2 l_1 m_1 m_1 n_2 + 4 l_1 m_1 n_1 m_2 + 2 m_1 m_1 n_1 l_2) c_{46} \\
&\quad + (2 l_1 l_1 n_1 n_2 + 2 l_1 n_1 n_1 l_2) c_{55} + (2 l_1 l_1 m_1 m_2 + 2 l_1 m_1 m_1 l_2) c_{66} \\
c'_{22} &= l_2 l_2 l_2 c_{11} + 2 l_2 l_2 m_2 m_2 c_{12} + 2 l_2 l_2 n_2 n_2 c_{13} + 4 l_2 l_2 l_2 n_2 c_{15} + m_2 m_2 m_2 m_2 c_{22} \\
&\quad + 2 m_2 m_2 n_2 n_2 c_{23} + 4 l_2 m_2 m_2 n_2 c_{25} + n_2 n_2 n_2 n_2 c_{33} + 4 l_2 n_2 n_2 n_2 c_{35} + 4 m_2 m_2 n_2 n_2 c_{44} \\
&\quad + 8 l_2 m_2 m_2 n_2 c_{46} + 4 l_2 l_2 n_2 n_2 c_{55} + 4 l_2 l_2 m_2 m_2 c_{66} \\
c'_{23} &= l_2 l_2 l_3 c_{11} + (l_2 l_2 m_3 m_3 + m_2 m_2 l_3 l_3) c_{12} + (l_2 l_2 n_3 n_3 + n_2 n_2 l_3 l_3) c_{13} \\
&\quad + (2 l_2 l_2 l_3 n_3 + 2 l_2 n_2 l_3 l_3) c_{15} + m_2 m_2 m_3 m_3 c_{22} + (m_2 m_2 n_3 n_3 + n_2 n_2 m_3 m_3) c_{23} \\
&\quad + (2 l_2 n_2 m_3 m_3 + 2 m_2 m_2 l_3 n_3) c_{25} + n_2 n_2 n_3 n_3 c_{33} + (2 l_2 n_2 n_3 n_3 + 2 n_2 n_2 l_3 n_3) c_{35} \\
&\quad + 4 m_2 n_2 m_3 n_3 c_{44} + (4 l_2 m_2 m_3 n_3 + 4 m_2 n_2 l_3 m_3) c_{46} + 4 l_2 n_2 l_3 n_3 c_{55} + 4 l_2 m_2 l_3 m_3 c_{66} \\
c'_{24} &= l_2 l_2 l_2 l_3 c_{11} + (l_2 l_2 m_2 m_3 + l_2 m_2 m_2 l_3) c_{12} + (l_2 l_2 n_2 n_3 + l_2 n_2 n_2 l_3) c_{13} \\
&\quad + (l_2 l_2 l_2 n_3 + 3 l_2 l_2 n_2 l_3) c_{15} + m_2 m_2 m_2 m_3 c_{22} + (m_2 m_2 n_2 n_3 + m_2 n_2 n_2 m_3) c_{23} \\
&\quad + (l_2 m_2 m_2 n_3 + 2 l_2 m_2 n_2 m_3 + m_2 m_2 n_2 l_3) c_{25} + n_2 n_2 n_2 n_3 c_{33} + (3 l_2 n_2 n_2 n_3 + n_2 n_2 n_2 l_3) c_{35} \\
&\quad + (2 m_2 m_2 n_2 n_3 + 2 m_2 n_2 n_2 m_3) c_{44} + (2 l_2 m_2 m_2 n_3 + 4 l_2 m_2 n_2 m_3 + 2 m_2 m_2 n_2 l_3) c_{46}
\end{aligned}$$



$$\begin{aligned}
& + (2 l_2 l_2 n_2 n_3 + 2 l_2 n_2 n_2 l_3) c_{55} + (2 l_2 l_2 m_2 m_3 + 2 l_2 m_2 m_2 l_3) c_{66} \\
c'_{25} = & l_1 l_2 l_2 l_3 c_{11} + (l_1 m_2 m_2 l_3 + m_1 l_2 l_2 m_3) c_{12} + (l_1 n_2 n_2 l_3 + n_1 l_2 l_2 n_3) c_{13} + (l_1 l_2 l_2 n_3 + 2 l_1 l_2 n_2 l_3 \\
& + n_1 l_2 l_2 l_3) c_{15} + m_1 m_2 m_2 m_3 c_{22} + (m_1 n_2 n_2 m_3 + n_1 m_2 m_2 n_3) c_{23} \\
& + (l_1 m_2 m_2 n_3 + 2 m_1 l_2 n_2 m_3 + n_1 m_2 m_2 l_3) c_{25} + n_1 n_2 n_2 n_3 c_{33} \\
& + (l_1 n_2 n_2 n_3 + 2 n_1 l_2 n_2 n_3 + n_1 n_2 n_2 l_3) c_{35} + (2 m_1 m_2 n_2 n_3 + 2 n_1 m_2 n_2 m_3) c_{44} \\
& + (2 l_1 m_2 n_2 m_3 + 2 m_1 l_2 m_2 n_3 + 2 m_1 m_2 n_2 l_3 + 2 n_1 l_2 m_2 m_3) c_{46} \\
& + (2 l_1 l_2 n_2 n_3 + 2 n_1 l_2 n_2 l_3) c_{55} + (2 l_1 l_2 m_2 m_3 + 2 m_1 l_2 m_2 l_3) c_{66} \\
c'_{26} = & l_1 l_2 l_2 l_2 c_{11} + (l_1 l_2 m_2 m_2 + m_1 l_2 l_2 m_2) c_{12} + (l_1 l_2 n_2 n_2 + n_1 l_2 l_2 n_2) c_{13} + (3 l_1 l_2 l_2 n_2 + n_1 l_2 l_2 l_2) c_{15} \\
& + m_1 m_2 m_2 m_2 c_{22} + (m_1 m_2 n_2 n_2 + n_1 m_2 m_2 n_2) c_{23} + (l_1 m_2 m_2 n_2 + 2 m_1 l_2 m_2 n_2 + n_1 l_2 m_2 m_2) c_{25} \\
& + n_1 n_2 n_2 n_2 c_{33} + (l_1 n_2 n_2 n_2 + 3 n_1 l_2 n_2 n_2) c_{35} + (2 m_1 m_2 n_2 n_2 + 2 n_1 m_2 m_2 n_2) c_{44} \\
& + (2 l_1 m_2 m_2 n_2 + 4 m_1 l_2 m_2 n_2 + 2 n_1 l_2 m_2 m_2) c_{46} + (2 l_1 l_2 n_2 n_2 + 2 n_1 l_2 l_2 n_2) c_{55} \\
& + (2 l_1 l_2 m_2 m_2 + 2 m_1 l_2 l_2 m_2) c_{66} \\
c'_{33} = & l_3 l_3 l_3 l_3 c_{11} + 2 l_3 l_3 m_3 m_3 c_{12} + 2 l_3 l_3 n_3 n_3 c_{13} + 4 l_3 l_3 l_3 n_3 c_{15} + m_3 m_3 m_3 m_3 c_{22} \\
& + 2 m_3 m_3 n_3 n_3 c_{23} + 4 l_3 m_3 m_3 n_3 c_{25} + n_3 n_3 n_3 n_3 c_{33} + 4 l_3 n_3 n_3 n_3 c_{35} + 4 m_3 m_3 n_3 n_3 c_{44} \\
& + 8 l_3 m_3 m_3 n_3 c_{46} + 4 l_3 l_3 n_3 n_3 c_{55} + 4 l_3 l_3 m_3 m_3 c_{66} \\
c'_{34} = & l_2 l_3 l_3 l_3 c_{11} + (l_2 l_3 m_3 m_3 + m_2 l_3 l_3 m_3) c_{12} + (l_2 l_3 n_3 n_3 + n_2 l_3 l_3 n_3) c_{13} \\
& + (3 l_2 l_3 l_3 n_3 + n_2 l_3 l_3 l_3) c_{15} + m_2 m_3 m_3 m_3 c_{22} + (m_2 m_3 n_3 n_3 + n_2 m_3 m_3 n_3) c_{23} \\
& + (l_2 m_3 m_3 n_3 + 2 m_2 l_3 m_3 n_3 + n_2 l_3 m_3 m_3) c_{25} + n_2 n_3 n_3 n_3 c_{33} + (l_2 n_3 n_3 n_3 + 3 n_2 l_3 n_3 n_3) c_{35} \\
& + (2 m_2 m_3 n_3 n_3 + 2 n_2 m_3 m_3 n_3) c_{44} + (2 l_2 m_3 m_3 n_3 + 4 m_2 l_3 m_3 n_3 + 2 n_2 l_3 m_3 m_3) c_{46} \\
& + (2 l_2 l_3 n_3 n_3 + 2 n_2 l_3 l_3 n_3) c_{55} + (2 l_2 l_3 m_3 m_3 + 2 m_2 l_3 l_3 m_3) c_{66} \\
c'_{35} = & l_1 l_3 l_3 l_3 c_{11} + (l_1 l_3 m_3 m_3 + m_1 l_3 l_3 m_3) c_{12} + (l_1 l_3 n_3 n_3 + n_1 l_3 l_3 n_3) c_{13} \\
& + (3 l_1 l_3 l_3 n_3 + n_1 l_3 l_3 l_3) c_{15} + m_1 m_3 m_3 m_3 c_{22} + (m_1 m_3 n_3 n_3 + n_1 m_3 m_3 n_3) c_{23} \\
& + (l_1 m_3 m_3 n_3 + 2 m_1 l_3 m_3 n_3 + n_1 l_3 m_3 m_3) c_{25} + n_1 n_3 n_3 n_3 c_{33} + (l_1 n_3 n_3 n_3 + 3 n_1 l_3 n_3 n_3) c_{35} \\
& + (2 m_1 m_3 n_3 n_3 + 2 n_1 m_3 m_3 n_3) c_{44} + (2 l_1 m_3 m_3 n_3 + 4 m_1 l_3 m_3 n_3 + 2 n_1 l_3 m_3 m_3) c_{46} \\
& + (2 l_1 l_3 n_3 n_3 + 2 n_1 l_3 l_3 n_3) c_{55} + (2 l_1 l_3 m_3 m_3 + 2 m_1 l_3 l_3 m_3) c_{66} \\
c'_{36} = & l_1 l_2 l_3 l_3 c_{11} + (l_1 l_2 m_3 m_3 + m_1 m_2 l_3 l_3) c_{12} + (l_1 l_2 n_3 n_3 + n_1 n_2 l_3 l_3) c_{13} \\
& + (2 l_1 l_2 l_3 n_3 + l_1 n_2 l_3 l_3 + n_1 l_2 l_3 l_3) c_{15} + m_1 m_2 m_3 m_3 c_{22} + (m_1 m_2 n_3 n_3 + n_1 n_2 m_3 m_3) c_{23} \\
& + (l_1 n_2 m_3 m_3 + 2 m_1 m_2 l_3 n_3 + n_1 l_2 m_3 m_3) c_{25} + n_1 n_2 n_3 n_3 c_{33} + (l_1 n_2 n_3 n_3 + n_1 l_2 n_3 n_3 \\
& + 2 n_1 n_2 l_3 n_3) c_{35} + (2 m_1 n_2 m_3 n_3 + 2 n_1 m_2 m_3 n_3) c_{44} + (2 l_1 m_2 m_3 n_3 + 2 m_1 l_2 m_3 n_3 \\
& + 2 m_1 n_2 l_3 m_3 + 2 n_1 m_2 l_3 m_3) c_{46} + (2 l_1 n_2 l_3 n_3 + 2 n_1 l_2 l_3 n_3) c_{55} + (2 l_1 m_2 l_3 m_3 + 2 m_1 l_2 l_3 m_3) c_{66} \\
c'_{44} = & l_2 l_2 l_3 l_3 c_{11} + 2 l_2 m_2 l_3 m_3 c_{12} + 2 l_2 n_2 l_3 n_3 c_{13} + (2 l_2 l_2 l_3 n_3 + 2 l_2 n_2 l_3 l_3) c_{15} \\
& + m_2 m_2 m_3 m_3 c_{22} + 2 m_2 n_2 m_3 n_3 c_{23} + (2 l_2 m_2 m_3 n_3 + 2 m_2 n_2 l_3 m_3) c_{25} + n_2 n_2 n_3 n_3 c_{33} \\
& + (2 l_2 n_2 n_3 n_3 + 2 n_2 n_2 l_3 n_3) c_{35} + (m_2 m_2 n_3 n_3 + 2 m_2 n_2 m_3 n_3 + n_2 n_2 m_3 m_3) c_{44} \\
& + (2 l_2 m_2 m_3 n_3 + 2 l_2 n_2 m_3 m_3 + 2 m_2 m_2 l_3 n_3 + 2 m_2 n_2 l_3 m_3) c_{46} \\
& + (l_2 l_2 n_3 n_3 + 2 l_2 n_2 l_3 n_3 + n_2 n_2 l_3 l_3) c_{55} + (l_2 l_2 m_3 m_3 + 2 l_2 m_2 l_3 m_3 + m_2 m_2 l_3 l_3) c_{66} \\
c'_{45} = & l_1 l_2 l_3 l_3 c_{11} + (l_1 m_2 l_3 m_3 + m_1 l_2 l_3 m_3) c_{12} + (l_1 n_2 l_3 n_3 + n_1 l_2 l_3 n_3) c_{13} \\
& + (2 l_1 l_2 l_3 n_3 + l_1 n_2 l_3 l_3 + n_1 l_2 l_3 l_3) c_{15} + m_1 m_2 m_3 m_3 c_{22} + (m_1 n_2 m_3 n_3 + n_1 m_2 m_3 n_3) c_{23} \\
& + (l_1 m_2 m_3 n_3 + m_1 l_2 m_3 n_3 + m_1 n_2 l_3 m_3 + n_1 m_2 l_3 m_3) c_{25} + n_1 n_2 n_3 n_3 c_{33} \\
& + (l_1 n_2 n_3 n_3 + n_1 l_2 n_3 n_3 + 2 n_1 n_2 l_3 n_3) c_{35} + (m_1 m_2 n_3 n_3 + m_1 n_2 m_3 n_3 + n_1 m_2 m_3 n_3)
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& + n_1 n_2 m_3 m_3) c_{44} + (l_1 m_2 m_3 n_3 + l_1 n_2 m_3 m_3 + m_1 l_2 m_3 n_3 + 2 m_1 m_2 l_3 n_3 + m_1 n_2 l_3 m_3 \\
& + n_1 l_2 m_3 m_3 + n_1 m_2 l_3 m_3) c_{46} + (l_1 l_2 n_3 n_3 + l_1 n_2 l_3 n_3 + n_1 l_2 l_3 n_3 + n_1 n_2 l_3 l_3) c_{55} \\
& + (l_1 l_2 m_3 m_3 + l_1 m_2 l_3 m_3 + m_1 l_2 l_3 m_3 + m_1 m_2 l_3 l_3) c_{66} \\
c'_{46} = & l_1 l_2 l_2 l_3 c_{11} + (l_1 l_2 m_2 m_3 + m_1 l_2 m_2 l_3) c_{12} + (l_1 l_2 n_2 n_3 + n_1 l_2 n_2 l_3) c_{13} \\
& + (l_1 l_2 l_2 n_3 + 2 l_1 l_2 n_2 l_3 + n_1 l_2 l_2 l_3) c_{15} + m_1 m_2 m_2 m_3 c_{22} + (m_1 m_2 n_2 n_3 + n_1 m_2 n_2 m_3) c_{23} \\
& + (l_1 m_2 n_2 m_3 + m_1 l_2 m_2 n_3 + m_1 m_2 n_2 l_3 + n_1 l_2 m_2 m_3) c_{25} + n_1 n_2 n_2 n_3 c_{33} \\
& + (l_1 n_2 n_2 n_3 + 2 n_1 l_2 n_2 n_3 + n_1 n_2 n_2 l_3) c_{35} + (m_1 m_2 n_2 n_3 + m_1 n_2 n_2 m_3 + n_1 m_2 n_2 n_3 \\
& + n_1 m_2 n_2 m_3) c_{44} + (l_1 m_2 m_2 n_3 + l_1 m_2 n_2 m_3 + m_1 l_2 m_2 n_3 + 2 m_1 l_2 n_2 m_3 + m_1 m_2 n_2 l_3 \\
& + n_1 l_2 m_2 m_3 + n_1 m_2 m_2 l_3) c_{46} + (l_1 l_2 n_2 n_3 + l_1 n_2 n_2 l_3 + n_1 l_2 l_2 n_3 + n_1 l_2 n_2 l_3) c_{55} \\
& + (l_1 l_2 m_2 m_3 + l_1 m_2 m_2 l_3 + m_1 l_2 l_2 m_3 + m_1 l_2 m_2 l_3) c_{66} \\
c'_{55} = & l_1 l_1 l_3 l_3 c_{11} + 2 l_1 m_1 l_3 m_3 c_{12} + 2 l_1 n_1 l_3 n_3 c_{13} + (2 l_1 l_1 l_3 n_3 + 2 l_1 n_1 l_3 l_3) c_{15} \\
& + m_1 m_1 m_3 m_3 c_{22} + 2 m_1 n_1 m_3 n_3 c_{23} + (2 l_1 m_1 m_3 n_3 + 2 m_1 n_1 l_3 m_3) c_{25} + n_1 n_1 n_3 n_3 c_{33} \\
& + (2 l_1 n_1 n_3 n_3 + 2 n_1 n_1 l_3 n_3) c_{35} + (m_1 m_1 n_3 n_3 + 2 m_1 n_1 m_3 n_3 + n_1 n_1 m_3 m_3) c_{44} \\
& + (2 l_1 m_1 m_3 n_3 + 2 l_1 n_1 m_3 m_3 + 2 m_1 m_1 l_3 n_3 + 2 m_1 n_1 l_3 m_3) c_{46} \\
& + (l_1 l_1 n_3 n_3 + 2 l_1 n_1 l_3 n_3 + n_1 n_1 l_3 l_3) c_{55} + (l_1 l_1 m_3 m_3 + 2 l_1 m_1 l_3 m_3 + m_1 m_1 l_3 l_3) c_{66} \\
c'_{56} = & l_1 l_1 l_2 l_3 c_{11} + (l_1 m_1 l_2 m_3 + l_1 m_1 m_2 l_3) c_{12} + (l_1 n_1 l_2 n_3 + l_1 n_1 n_2 l_3) c_{13} \\
& + (l_1 l_1 l_2 n_3 + l_1 l_1 n_2 l_3 + 2 l_1 n_1 l_2 l_3) c_{15} + m_1 m_1 m_2 m_3 c_{22} + (m_1 n_1 m_2 n_3 + m_1 n_1 n_2 m_3) c_{23} \\
& + (l_1 m_1 m_2 n_3 + l_1 m_1 n_2 m_3 + m_1 n_1 l_2 m_3 + m_1 n_1 m_2 l_3) c_{25} + n_1 n_1 n_2 n_3 c_{33} \\
& + (2 l_1 n_1 n_2 n_3 + n_1 n_1 l_2 n_3 + n_1 n_1 n_2 l_3) c_{35} + (m_1 m_1 n_2 n_3 + m_1 n_1 m_2 n_3 + m_1 n_1 n_2 m_3 \\
& + n_1 n_1 m_2 m_3) c_{44} + (l_1 m_1 m_2 n_3 + l_1 m_1 n_2 m_3 + 2 l_1 n_1 m_2 m_3 + m_1 m_1 l_2 n_3 + m_1 m_1 n_2 l_3 \\
& + m_1 n_1 l_2 m_3 + m_1 n_1 m_2 l_3) c_{46} + (l_1 l_1 n_2 n_3 + l_1 n_1 l_2 n_3 + l_1 n_1 n_2 l_3 + n_1 n_1 l_2 l_3) c_{55} \\
& + (l_1 l_1 m_2 m_3 + l_1 m_1 l_2 m_3 + l_1 m_1 m_2 l_3 + m_1 m_1 l_2 l_3) c_{66} \\
c'_{66} = & l_1 l_1 l_2 l_2 c_{11} + 2 l_1 m_1 l_2 m_2 c_{12} + 2 l_1 n_1 l_2 n_2 c_{13} + (2 l_1 l_1 l_2 n_2 + 2 l_1 n_1 l_2 l_2) c_{15} \\
& + m_1 m_1 m_2 m_2 c_{22} + 2 m_1 n_1 m_2 n_2 c_{23} + (2 l_1 m_1 m_2 n_2 + 2 m_1 n_1 l_2 m_2) c_{25} + n_1 n_1 n_2 n_2 c_{33} \\
& + (2 l_1 n_1 n_2 n_2 + 2 n_1 n_1 l_2 n_2) c_{35} + (m_1 m_1 n_2 n_2 + 2 m_1 n_1 m_2 n_2 + n_1 n_1 m_2 m_2) c_{44} \\
& + (2 l_1 m_1 m_2 n_2 + 2 l_1 n_1 m_2 m_2 + 2 m_1 m_1 l_2 n_2 + 2 m_1 n_1 l_2 m_2) c_{46} \\
& + (l_1 l_1 n_2 n_2 + 2 l_1 n_1 l_2 n_2 + n_1 n_1 l_2 l_2) c_{55} + (l_1 l_1 m_2 m_2 + 2 l_1 m_1 l_2 m_2 + m_1 m_1 l_2 l_2) c_{66}
\end{aligned}$$

## 8 弾性コンプライアンス $s$

$$\begin{aligned}
s'_{11} = & l_1 l_1 l_1 l_1 s_{11} + 2 l_1 l_1 m_1 m_1 s_{12} + 2 l_1 l_1 n_1 n_1 s_{13} + 2 l_1 l_1 l_1 n_1 s_{15} + m_1 m_1 m_1 m_1 s_{22} \\
& + 2 m_1 m_1 n_1 n_1 s_{23} + 2 l_1 m_1 m_1 n_1 s_{25} + n_1 n_1 n_1 n_1 s_{33} + 2 l_1 n_1 n_1 n_1 s_{35} + m_1 m_1 n_1 n_1 s_{44} \\
& + 2 l_1 m_1 m_1 n_1 s_{46} + l_1 l_1 n_1 n_1 s_{55} + l_1 l_1 m_1 m_1 s_{66} \\
s'_{12} = & l_1 l_1 l_2 l_2 s_{11} + (l_1 l_1 m_2 m_2 + m_1 m_1 l_2 l_2) s_{12} + (l_1 l_1 n_2 n_2 + n_1 n_1 l_2 l_2) s_{13} + (l_1 l_1 l_2 n_2 + l_1 n_1 l_2 l_2) s_{15} \\
& + m_1 m_1 m_2 m_2 s_{22} + (m_1 m_1 n_2 n_2 + n_1 n_1 m_2 m_2) s_{23} + (l_1 n_1 m_2 m_2 + m_1 m_1 l_2 n_2) s_{25} + n_1 n_1 n_2 n_2 s_{33} \\
& + (l_1 n_1 n_2 n_2 + n_1 n_1 l_2 n_2) s_{35} + m_1 n_1 m_2 n_2 s_{44} + (l_1 m_1 m_2 n_2 + m_1 n_1 l_2 m_2) s_{46} \\
& + l_1 n_1 l_2 n_2 s_{55} + l_1 m_1 l_2 m_2 s_{66} \\
s'_{13} = & l_1 l_1 l_3 l_3 s_{11} + (l_1 l_1 m_3 m_3 + m_1 m_1 l_3 l_3) s_{12} + (l_1 l_1 n_3 n_3 + n_1 n_1 l_3 l_3) s_{13} + (l_1 l_1 l_3 n_3 + l_1 n_1 l_3 l_3) s_{15} \\
& + m_1 m_1 m_3 m_3 s_{22} + (m_1 m_1 n_3 n_3 + n_1 n_1 m_3 m_3) s_{23} + (l_1 n_1 m_3 m_3 + m_1 m_1 l_3 n_3) s_{25} + n_1 n_1 n_3 n_3 s_{33} \\
& + (l_1 n_1 n_3 n_3 + n_1 n_1 l_3 n_3) s_{35} + m_1 n_1 m_3 n_3 s_{44} + (l_1 m_1 m_3 n_3 + m_1 n_1 l_3 m_3) s_{46} + l_1 n_1 l_3 n_3 s_{55}
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& + l_1 m_1 l_3 m_3 s_{66} \\
s'_{14} = & 2 l_1 l_1 l_2 l_3 s_{11} + (2 l_1 l_1 m_2 m_3 + 2 m_1 m_1 l_2 l_3) s_{12} + (2 l_1 l_1 n_2 n_3 + 2 n_1 n_1 l_2 l_3) s_{13} \\
& + (l_1 l_1 l_2 n_3 + l_1 l_1 n_2 l_3 + 2 l_1 n_1 l_2 l_3) s_{15} + 2 m_1 m_1 m_2 m_3 s_{22} + (2 m_1 m_1 n_2 n_3 + 2 n_1 n_1 m_2 m_3) s_{23} \\
& + (2 l_1 n_1 m_2 m_3 + m_1 m_1 l_2 n_3 + m_1 m_1 n_2 l_3) s_{25} + 2 n_1 n_1 n_2 n_3 s_{33} \\
& + (2 l_1 n_1 n_2 n_3 + n_1 n_1 l_2 n_3 + n_1 n_1 n_2 l_3) s_{35} + (m_1 n_1 m_2 n_3 + m_1 n_1 n_2 m_3) s_{44} \\
& + (l_1 m_1 m_2 n_3 + l_1 m_1 n_2 m_3 + m_1 n_1 l_2 m_3 + m_1 n_1 m_2 l_3) s_{46} + (l_1 n_1 l_2 n_3 + l_1 n_1 n_2 l_3) s_{55} \\
& + (l_1 m_1 l_2 m_3 + l_1 m_1 m_2 l_3) s_{66} \\
s'_{15} = & 2 l_1 l_1 l_1 l_3 s_{11} + (2 l_1 l_1 m_1 m_3 + 2 l_1 m_1 m_1 l_3) s_{12} + (2 l_1 l_1 n_1 n_3 + 2 l_1 n_1 n_1 l_3) s_{13} \\
& + (l_1 l_1 l_1 n_3 + 3 l_1 l_1 n_1 l_3) s_{15} + 2 m_1 m_1 m_1 m_3 s_{22} + (2 m_1 m_1 n_1 n_3 + 2 m_1 n_1 n_1 m_3) s_{23} \\
& + (l_1 m_1 m_1 n_3 + 2 l_1 m_1 n_1 m_3 + m_1 m_1 n_1 l_3) s_{25} + 2 n_1 n_1 n_1 n_3 s_{33} + (3 l_1 n_1 n_1 n_3 + n_1 n_1 n_1 l_3) s_{35} \\
& + (m_1 m_1 n_1 n_3 + m_1 n_1 n_1 m_3) s_{44} + (l_1 m_1 m_1 n_3 + 2 l_1 m_1 n_1 m_3 + m_1 m_1 n_1 l_3) s_{46} \\
& + (l_1 l_1 n_1 n_3 + l_1 n_1 n_1 l_3) s_{55} + (l_1 l_1 m_1 m_3 + l_1 m_1 m_1 l_3) s_{66} \\
s'_{16} = & 2 l_1 l_1 l_1 l_2 s_{11} + (2 l_1 l_1 m_1 m_2 + 2 l_1 m_1 m_1 l_2) s_{12} + (2 l_1 l_1 n_1 n_2 + 2 l_1 n_1 n_1 l_2) s_{13} \\
& + (l_1 l_1 l_1 n_2 + 3 l_1 l_1 n_1 l_2) s_{15} + 2 m_1 m_1 m_1 m_2 s_{22} + (2 m_1 m_1 n_1 n_2 + 2 m_1 n_1 n_1 m_2) s_{23} \\
& + (l_1 m_1 m_1 n_2 + 2 l_1 m_1 n_1 m_2 + m_1 m_1 n_1 l_2) s_{25} + 2 n_1 n_1 n_1 n_2 s_{33} + (3 l_1 n_1 n_1 n_2 + n_1 n_1 n_1 l_2) s_{35} \\
& + (m_1 m_1 n_1 n_2 + m_1 n_1 n_1 m_2) s_{44} + (l_1 m_1 m_1 n_2 + 2 l_1 m_1 n_1 m_2 + m_1 m_1 n_1 l_2) s_{46} \\
& + (l_1 l_1 n_1 n_2 + l_1 n_1 n_1 l_2) s_{55} + (l_1 l_1 m_1 m_2 + l_1 m_1 m_1 l_2) s_{66} \\
s'_{22} = & l_2 l_2 l_2 l_2 s_{11} + 2 l_2 l_2 m_2 m_2 s_{12} + 2 l_2 l_2 n_2 n_2 s_{13} + 2 l_2 l_2 l_2 n_2 s_{15} + m_2 m_2 m_2 m_2 s_{22} \\
& + 2 m_2 m_2 n_2 n_2 s_{23} + 2 l_2 m_2 m_2 n_2 s_{25} + n_2 n_2 n_2 n_2 s_{33} + 2 l_2 n_2 n_2 n_2 s_{35} + m_2 m_2 n_2 n_2 s_{44} \\
& + 2 l_2 m_2 m_2 n_2 s_{46} + l_2 l_2 n_2 n_2 s_{55} + l_2 l_2 m_2 m_2 s_{66} \\
s'_{23} = & l_2 l_2 l_3 l_3 s_{11} + (l_2 l_2 m_3 m_3 + m_2 m_2 l_3 l_3) s_{12} + (l_2 l_2 n_3 n_3 + n_2 n_2 l_3 l_3) s_{13} + (l_2 l_2 l_3 n_3 + l_2 n_2 l_3 l_3) s_{15} \\
& + m_2 m_2 m_3 m_3 s_{22} + (m_2 m_2 n_3 n_3 + n_2 n_2 m_3 m_3) s_{23} + (l_2 n_2 m_3 m_3 + m_2 m_2 l_3 n_3) s_{25} + n_2 n_2 n_3 n_3 s_{33} \\
& + (l_2 n_2 n_3 n_3 + n_2 n_2 l_3 n_3) s_{35} + m_2 n_2 m_3 n_3 s_{44} + (l_2 m_2 m_3 n_3 + m_2 n_2 l_3 m_3) s_{46} + l_2 n_2 l_3 n_3 s_{55} \\
& + l_2 m_2 l_3 m_3 s_{66} \\
s'_{24} = & 2 l_2 l_2 l_2 l_3 s_{11} + (2 l_2 l_2 m_2 m_3 + 2 l_2 m_2 m_2 l_3) s_{12} + (2 l_2 l_2 n_2 n_3 + 2 l_2 n_2 n_2 l_3) s_{13} \\
& + (l_2 l_2 l_2 n_3 + 3 l_2 l_2 n_2 l_3) s_{15} + 2 m_2 m_2 m_2 m_3 s_{22} + (2 m_2 m_2 n_2 n_3 + 2 m_2 n_2 n_2 m_3) s_{23} \\
& + (l_2 m_2 m_2 n_3 + 2 l_2 m_2 n_2 m_3 + m_2 m_2 n_2 l_3) s_{25} + 2 n_2 n_2 n_2 n_3 s_{33} + (3 l_2 n_2 n_2 n_3 + n_2 n_2 n_2 l_3) s_{35} \\
& + (m_2 m_2 n_2 n_3 + m_2 n_2 n_2 m_3) s_{44} + (l_2 m_2 m_2 n_3 + 2 l_2 m_2 n_2 m_3 + m_2 m_2 n_2 l_3) s_{46} \\
& + (l_2 l_2 n_2 n_3 + l_2 n_2 n_2 l_3) s_{55} + (l_2 l_2 m_2 m_3 + l_2 m_2 m_2 l_3) s_{66} \\
s'_{25} = & 2 l_1 l_2 l_2 l_3 s_{11} + (2 l_1 m_2 m_2 l_3 + 2 m_1 l_2 l_2 m_3) s_{12} + (2 l_1 n_2 n_2 l_3 + 2 n_1 l_2 l_2 n_3) s_{13} \\
& + (l_1 l_2 l_2 n_3 + 2 l_1 l_2 n_2 l_3 + n_1 l_2 l_2 l_3) s_{15} + 2 m_1 m_2 m_2 m_3 s_{22} + (2 m_1 n_2 n_2 m_3 + 2 n_1 m_2 m_2 n_3) s_{23} \\
& + (l_1 m_2 m_2 n_3 + 2 m_1 l_2 n_2 m_3 + n_1 m_2 m_2 l_3) s_{25} + 2 n_1 n_2 n_2 n_3 s_{33} \\
& + (l_1 n_2 n_2 n_3 + 2 n_1 l_2 n_2 n_3 + n_1 n_2 n_2 l_3) s_{35} + (m_1 m_2 n_2 n_3 + n_1 m_2 n_2 m_3) s_{44} \\
& + (l_1 m_2 n_2 m_3 + m_1 l_2 m_2 n_3 + m_1 m_2 n_2 l_3 + n_1 l_2 m_2 m_3) s_{46} + (l_1 l_2 n_2 n_3 + n_1 l_2 n_2 l_3) s_{55} \\
& + (l_1 l_2 m_2 m_3 + m_1 l_2 m_2 l_3) s_{66} \\
s'_{26} = & 2 l_1 l_2 l_2 l_2 s_{11} + (2 l_1 l_2 m_2 m_2 + 2 m_1 l_2 l_2 m_2) s_{12} + (2 l_1 l_2 n_2 n_2 + 2 n_1 l_2 l_2 n_2) s_{13} \\
& + (3 l_1 l_2 l_2 n_2 + n_1 l_2 l_2 l_2) s_{15} + 2 m_1 m_2 m_2 m_2 s_{22} + (2 m_1 m_2 n_2 n_2 + 2 n_1 m_2 m_2 n_2) s_{23} \\
& + (l_1 m_2 m_2 n_2 + 2 m_1 l_2 m_2 n_2 + n_1 l_2 m_2 m_2) s_{25} + 2 n_1 n_2 n_2 n_2 s_{33} + (l_1 n_2 n_2 n_2 + 3 n_1 l_2 n_2 n_2) s_{35} \\
& + (m_1 m_2 n_2 n_2 + n_1 m_2 m_2 n_2) s_{44} + (l_1 m_2 m_2 n_2 + 2 m_1 l_2 m_2 n_2 + n_1 l_2 m_2 m_2) s_{46}
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& + (l_1 l_2 n_2 n_2 + n_1 l_2 l_2 n_2) s_{55} + (l_1 l_2 m_2 m_2 + m_1 l_2 l_2 m_2) s_{66} \\
s'_{33} = & l_3 l_3 l_3 s_{11} + 2 l_3 l_3 m_3 m_3 s_{12} + 2 l_3 l_3 n_3 n_3 s_{13} + 2 l_3 l_3 l_3 n_3 s_{15} + m_3 m_3 m_3 m_3 s_{22} \\
& + 2 m_3 m_3 n_3 n_3 s_{23} + 2 l_3 m_3 m_3 n_3 s_{25} + n_3 n_3 n_3 n_3 s_{33} + 2 l_3 n_3 n_3 n_3 s_{35} + m_3 m_3 n_3 n_3 s_{44} \\
& + 2 l_3 m_3 m_3 n_3 s_{46} + l_3 l_3 n_3 n_3 s_{55} + l_3 l_3 m_3 m_3 s_{66} \\
s'_{34} = & 2 l_2 l_3 l_3 s_{11} + (2 l_2 l_3 m_3 m_3 + 2 m_2 l_3 l_3 m_3) s_{12} + (2 l_2 l_3 n_3 n_3 + 2 n_2 l_3 l_3 n_3) s_{13} \\
& + (3 l_2 l_3 l_3 n_3 + n_2 l_3 l_3 l_3) s_{15} + 2 m_2 m_3 m_3 m_3 s_{22} + (2 m_2 m_3 n_3 n_3 + 2 n_2 m_3 m_3 n_3) s_{23} \\
& + (l_2 m_3 m_3 n_3 + 2 m_2 l_3 m_3 n_3 + n_2 l_3 m_3 m_3) s_{25} + 2 n_2 n_3 n_3 n_3 s_{33} + (l_2 n_3 n_3 n_3 + 3 n_2 l_3 n_3 n_3) s_{35} \\
& + (m_2 m_3 n_3 n_3 + n_2 m_3 m_3 n_3) s_{44} + (l_2 m_3 m_3 n_3 + 2 m_2 l_3 m_3 n_3 + n_2 l_3 m_3 m_3) s_{46} \\
& + (l_2 l_3 n_3 n_3 + n_2 l_3 l_3 n_3) s_{55} + (l_2 l_3 m_3 m_3 + m_2 l_3 l_3 m_3) s_{66} \\
s'_{35} = & 2 l_1 l_3 l_3 s_{11} + (2 l_1 l_3 m_3 m_3 + 2 m_1 l_3 l_3 m_3) s_{12} + (2 l_1 l_3 n_3 n_3 + 2 n_1 l_3 l_3 n_3) s_{13} \\
& + (3 l_1 l_3 l_3 n_3 + n_1 l_3 l_3 l_3) s_{15} + 2 m_1 m_3 m_3 m_3 s_{22} + (2 m_1 m_3 n_3 n_3 + 2 n_1 m_3 m_3 n_3) s_{23} \\
& + (l_1 m_3 m_3 n_3 + 2 m_1 l_3 m_3 n_3 + n_1 l_3 m_3 m_3) s_{25} + 2 n_1 n_3 n_3 n_3 s_{33} + (l_1 n_3 n_3 n_3 + 3 n_1 l_3 n_3 n_3) s_{35} \\
& + (m_1 m_3 n_3 n_3 + n_1 m_3 m_3 n_3) s_{44} + (l_1 m_3 m_3 n_3 + 2 m_1 l_3 m_3 n_3 + n_1 l_3 m_3 m_3) s_{46} \\
& + (l_1 l_3 n_3 n_3 + n_1 l_3 l_3 n_3) s_{55} + (l_1 l_3 m_3 m_3 + m_1 l_3 l_3 m_3) s_{66} \\
s'_{36} = & 2 l_1 l_2 l_3 s_{11} + (2 l_1 l_2 m_3 m_3 + 2 m_1 m_2 l_3 l_3) s_{12} + (2 l_1 l_2 n_3 n_3 + 2 n_1 n_2 l_3 l_3) s_{13} \\
& + (2 l_1 l_2 l_3 n_3 + l_1 n_2 l_3 l_3 + n_1 l_2 l_3 l_3) s_{15} + 2 m_1 m_2 m_3 m_3 s_{22} + (2 m_1 m_2 n_3 n_3 + 2 n_1 n_2 m_3 m_3) s_{23} \\
& + (l_1 n_2 m_3 m_3 + 2 m_1 m_2 l_3 n_3 + n_1 l_2 m_3 m_3) s_{25} + 2 n_1 n_2 n_3 n_3 s_{33} \\
& + (l_1 n_2 n_3 n_3 + n_1 l_2 n_3 n_3 + 2 n_1 n_2 l_3 n_3) s_{35} + (m_1 n_2 m_3 n_3 + n_1 m_2 m_3 n_3) s_{44} \\
& + (l_1 m_2 m_3 n_3 + m_1 l_2 m_3 n_3 + m_1 n_2 l_3 m_3 + n_1 m_2 l_3 m_3) s_{46} + (l_1 n_2 l_3 n_3 + n_1 l_2 l_3 n_3) s_{55} \\
& + (l_1 m_2 l_3 m_3 + m_1 l_2 l_3 m_3) s_{66} \\
s'_{44} = & 4 l_2 l_2 l_3 s_{11} + 8 l_2 m_2 l_3 m_3 s_{12} + 8 l_2 n_2 l_3 n_3 s_{13} + (4 l_2 l_2 l_3 n_3 + 4 l_2 n_2 l_3 l_3) s_{15} \\
& + 4 m_2 m_2 m_3 m_3 s_{22} + 8 m_2 n_2 m_3 n_3 s_{23} + (4 l_2 m_2 m_3 n_3 + 4 m_2 n_2 l_3 m_3) s_{25} \\
& + 4 n_2 n_2 n_3 n_3 s_{33} + (4 l_2 n_2 n_3 n_3 + 4 n_2 n_2 l_3 n_3) s_{35} + (m_2 m_2 n_3 n_3 + 2 m_2 n_2 m_3 n_3 \\
& + n_2 n_2 m_3 m_3) s_{44} + (2 l_2 m_2 m_3 n_3 + 2 l_2 n_2 m_3 m_3 + 2 m_2 m_2 l_3 n_3 + 2 m_2 n_2 l_3 m_3) s_{46} \\
& + (l_2 l_2 n_3 n_3 + 2 l_2 n_2 l_3 n_3 + n_2 n_2 l_3 l_3) s_{55} + (l_2 l_2 m_3 m_3 + 2 l_2 m_2 l_3 m_3 + m_2 m_2 l_3 l_3) s_{66} \\
s'_{45} = & 4 l_1 l_2 l_3 s_{11} + (4 l_1 m_2 l_3 m_3 + 4 m_1 l_2 l_3 m_3) s_{12} + (4 l_1 n_2 l_3 n_3 + 4 n_1 l_2 l_3 n_3) s_{13} \\
& + (4 l_1 l_2 l_3 n_3 + 2 l_1 n_2 l_3 l_3 + 2 n_1 l_2 l_3 l_3) s_{15} + 4 m_1 m_2 m_3 m_3 s_{22} \\
& + (4 m_1 n_2 m_3 n_3 + 4 n_1 m_2 m_3 n_3) s_{23} + (2 l_1 m_2 m_3 n_3 + 2 m_1 l_2 m_3 n_3 + 2 m_1 n_2 l_3 m_3 \\
& + 2 n_1 m_2 l_3 m_3) s_{25} + 4 n_1 n_2 n_3 n_3 s_{33} + (2 l_1 n_2 n_3 n_3 + 2 n_1 l_2 n_3 n_3 + 4 n_1 n_2 l_3 n_3) s_{35} \\
& + (m_1 m_2 n_3 n_3 + m_1 n_2 m_3 n_3 + n_1 m_2 m_3 n_3 + n_1 n_2 m_3 m_3) s_{44} + (l_1 m_2 m_3 n_3 + l_1 n_2 m_3 m_3 \\
& + m_1 l_2 m_3 n_3 + 2 m_1 m_2 l_3 n_3 + m_1 n_2 l_3 m_3 + n_1 l_2 m_3 m_3 + n_1 m_2 l_3 m_3) s_{46} \\
& + (l_1 l_2 n_3 n_3 + l_1 n_2 l_3 n_3 + n_1 l_2 l_3 n_3 + n_1 n_2 l_3 l_3) s_{55} + (l_1 l_2 m_3 m_3 + l_1 m_2 l_3 m_3 \\
& + m_1 l_2 l_3 m_3 + m_1 m_2 l_3 l_3) s_{66} \\
s'_{46} = & 4 l_1 l_2 l_3 s_{11} + (4 l_1 l_2 m_2 m_3 + 4 m_1 l_2 m_2 l_3) s_{12} + (4 l_1 l_2 n_2 n_3 + 4 n_1 l_2 n_2 l_3) s_{13} \\
& + (2 l_1 l_2 l_2 n_3 + 4 l_1 l_2 n_2 l_3 + 2 n_1 l_2 l_2 l_3) s_{15} + 4 m_1 m_2 m_2 m_3 s_{22} + (4 m_1 m_2 n_2 n_3 + 4 n_1 m_2 n_2 m_3) s_{23} \\
& + (2 l_1 m_2 n_2 m_3 + 2 m_1 l_2 m_2 n_3 + 2 m_1 m_2 n_2 l_3 + 2 n_1 l_2 m_2 m_3) s_{25} + 4 n_1 n_2 n_2 n_3 s_{33} \\
& + (2 l_1 n_2 n_2 n_3 + 4 n_1 l_2 n_2 n_3 + 2 n_1 n_2 n_2 l_3) s_{35} + (m_1 m_2 n_2 n_3 + m_1 n_2 n_2 m_3 + n_1 m_2 m_2 n_3 \\
& + n_1 m_2 n_2 m_3) s_{44} + (l_1 m_2 m_2 n_3 + l_1 m_2 n_2 m_3 + m_1 l_2 m_2 n_3 + 2 m_1 l_2 n_2 m_3 + m_1 m_2 n_2 l_3 \\
& + n_1 l_2 m_2 m_3 + n_1 m_2 m_2 l_3) s_{46} + (l_1 l_2 n_2 n_3 + l_1 n_2 n_2 l_3 + n_1 l_2 l_2 n_3 + n_1 l_2 n_2 l_3) s_{55}
\end{aligned}$$

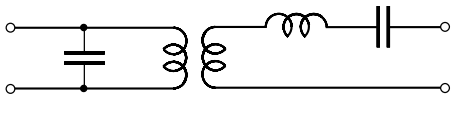
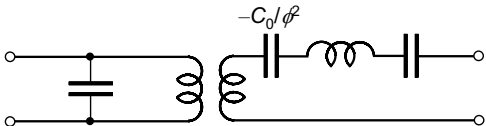
$$\begin{aligned}
& + (l_1 l_2 m_2 m_3 + l_1 m_2 m_2 l_3 + m_1 l_2 l_2 m_3 + m_1 l_2 m_2 l_3) s_{66} \\
s'_{55} = & 4 l_1 l_1 l_3 l_3 s_{11} + 8 l_1 m_1 l_3 m_3 s_{12} + 8 l_1 n_1 l_3 n_3 s_{13} + (4 l_1 l_1 l_3 n_3 + 4 l_1 n_1 l_3 l_3) s_{15} + 4 m_1 m_1 m_3 m_3 s_{22} \\
& + 8 m_1 n_1 m_3 n_3 s_{23} + (4 l_1 m_1 m_3 n_3 + 4 m_1 n_1 l_3 m_3) s_{25} + 4 n_1 n_1 n_3 n_3 s_{33} \\
& + (4 l_1 n_1 n_3 n_3 + 4 n_1 n_1 l_3 n_3) s_{35} + (m_1 m_1 n_3 n_3 + 2 m_1 n_1 m_3 n_3 + n_1 n_1 m_3 m_3) s_{44} \\
& + (2 l_1 m_1 m_3 n_3 + 2 l_1 n_1 m_3 m_3 + 2 m_1 m_1 l_3 n_3 + 2 m_1 n_1 l_3 m_3) s_{46} + (l_1 l_1 n_3 n_3 + 2 l_1 n_1 l_3 n_3 \\
& + n_1 n_1 l_3 l_3) s_{55} + (l_1 l_1 m_3 m_3 + 2 l_1 m_1 l_3 m_3 + m_1 m_1 l_3 l_3) s_{66} \\
s'_{56} = & 4 l_1 l_1 l_2 l_3 s_{11} + (4 l_1 m_1 l_2 m_3 + 4 l_1 m_1 m_2 l_3) s_{12} + (4 l_1 n_1 l_2 n_3 + 4 l_1 n_1 n_2 l_3) s_{13} \\
& + (2 l_1 l_1 l_2 n_3 + 2 l_1 l_1 n_2 l_3 + 4 l_1 n_1 l_2 l_3) s_{15} + 4 m_1 m_1 m_2 m_3 s_{22} \\
& + (4 m_1 n_1 m_2 n_3 + 4 m_1 n_1 n_2 m_3) s_{23} + (2 l_1 m_1 m_2 n_3 + 2 l_1 m_1 n_2 m_3 + 2 m_1 n_1 l_2 m_3 \\
& + 2 m_1 n_1 m_2 l_3) s_{25} + 4 n_1 n_1 n_2 n_3 s_{33} + (4 l_1 n_1 n_2 n_3 + 2 n_1 n_1 l_2 n_3 + 2 n_1 n_1 n_2 l_3) s_{35} \\
& + (m_1 m_1 n_2 n_3 + m_1 n_1 m_2 n_3 + m_1 n_1 n_2 m_3 + n_1 n_1 m_2 m_3) s_{44} \\
& + (l_1 m_1 m_2 n_3 + l_1 m_1 n_2 m_3 + 2 l_1 n_1 m_2 m_3 + m_1 m_1 l_2 n_3 + m_1 m_1 n_2 l_3 + m_1 n_1 l_2 m_3 \\
& + m_1 n_1 m_2 l_3) s_{46} + (l_1 l_1 n_2 n_3 + l_1 n_1 l_2 n_3 + l_1 n_1 n_2 l_3 + n_1 n_1 l_2 l_3) s_{55} \\
& + (l_1 l_1 m_2 m_3 + l_1 m_1 l_2 m_3 + l_1 m_1 m_2 l_3 + m_1 m_1 l_2 l_3) s_{66} \\
s'_{66} = & 4 l_1 l_1 l_2 l_2 s_{11} + 8 l_1 m_1 l_2 m_2 s_{12} + 8 l_1 n_1 l_2 n_2 s_{13} + (4 l_1 l_1 l_2 n_2 + 4 l_1 n_1 l_2 l_2) s_{15} \\
& + 4 m_1 m_1 m_2 m_2 s_{22} + 8 m_1 n_1 m_2 n_2 s_{23} + (4 l_1 m_1 m_2 n_2 + 4 m_1 n_1 l_2 m_2) s_{25} \\
& + 4 n_1 n_1 n_2 n_2 s_{33} + (4 l_1 n_1 n_2 n_2 + 4 n_1 n_1 l_2 n_2) s_{35} + (m_1 m_1 n_2 n_2 + 2 m_1 n_1 m_2 n_2 \\
& + n_1 n_1 m_2 m_2) s_{44} + (2 l_1 m_1 m_2 n_2 + 2 l_1 n_1 m_2 m_2 + 2 m_1 m_1 l_2 n_2 + 2 m_1 n_1 l_2 m_2) s_{46} \\
& + (l_1 l_1 n_2 n_2 + 2 l_1 n_1 l_2 n_2 + n_1 n_1 l_2 l_2) s_{55} + (l_1 l_1 m_2 m_2 + 2 l_1 m_1 l_2 m_2 + m_1 m_1 l_2 l_2) s_{66}
\end{aligned}$$

## A.8 圧電振動子の横効果と縦効果<sup>35)</sup>

ここでは、圧電振動子(共振子)における横効果と縦効果の特徴を下の表にまとめる。

横効果(電界の方向と機械的振動の方向が異なる)は  $E = 0$ 、縦効果(電界の方向と機械的振動方向が同じ)は  $D = 0$  の条件に対応し、圧電媒体中を伝わる音波の実効弾性定数  $c_{eff}$  はそれぞれ  $c^E$ 、 $c^D$  である。振動子で言えば、横効果では電極短絡が、縦効果では電氣的開放が、いわば本来の力学的な姿を具視する。このことが両者の対照的な特徴を形成している。

尚、ここに挙げたのは、電界の漏れを考えない場合のことである。

	横効果	縦効果
電氣的条件	$\frac{\partial E}{\partial x} = 0$ *1)	$\frac{\partial D}{\partial x} = 0$
実効弾性定数 ( $c_{eff}$ )	$c^E, \frac{1}{s^E}$ *2)	$c^D, \frac{1}{s^D}$ *3)
アドミッタンス	$Y = j\omega C_0 \left[ 1 + \frac{k^2}{1-k^2} \frac{\tan X}{X} \right]$	$Y = \frac{j\omega C_0}{1 - k^2 \frac{\tan X}{X}}$
定電圧共振	$\tan X = \infty$	$1 - k^2 \frac{\tan X}{X} = 0$
半波長周波数 ( $\omega_{\lambda/2}$ )	$\omega_R$ (共振)	$\omega_A$ (反共振)
等価回路		
力学励振の共振		
電極短絡	$\omega_R (= \omega_{\lambda/2})$	$\omega_R$
電極開放	$\omega_A$	$\omega_A (= \omega_{\lambda/2})$

\*1)  $\partial D / \partial x = 0$  (bare bar)

\*2)  $1/s^D$  (bare bar)

\*3) 電束漏れ無視

## A.9 板状共振子を用いた圧電定数 $d_{11}$ と $d_{33}$ の評価方法

第2章の2.3節で、棒柱試料の縦効果厚み伸び振動により、直接的かつ独立に  $d_{33}'$  を評価することで、点群  $m$  に属する圧電結晶の圧電定数  $d_{11}$  と  $d_{33}$  を評価することについて述べた。この評価方法は単純で良いが、誘電率の小さな材料では棒柱試料を用いるため電束漏れが無視できず、縦効果の電氣的条件が破綻してしまうという欠点がある。ここでは、そのような電束漏れの懸念されない共振 - 反共振法による評価方法について示す。

板状共振子である  $(YXw)45^\circ$  と  $(ZYw)45^\circ$  の横効果長さ伸び  $(TE-LE)$  振動を用いる方法である。棒柱試料を用いることなく板状共振子のみを用いることで、上記の電束漏れの問題は解消され、電氣的条件が破綻することなく共振 - 反共振法による評価が可能である。 $(YXw)45^\circ$  と  $(ZYw)45^\circ$  の  $TE-LE$  振動から直接得られる材料定数  $s_{11}^E$  ならびに  $d_{31}'$  に関して、それぞれ次のような関係式が成り立つ。

$$\begin{aligned} (YXw)45^\circ \text{ カット} \quad & \text{弾性定数 } s_{11}^E = 1/4(s_{11}^E + 2s_{12}^E + s_{22}^E + s_{66}^E) \\ & \text{圧電定数 } d_{31}' = -0.354(d_{11} + d_{12} - d_{26}) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} (ZYw)45^\circ \text{ カット} \quad & \text{弾性定数 } s_{11}^E = 1/4(s_{22}^E + 2s_{23}^E + s_{33}^E + s_{44}^E) \\ & \text{圧電定数 } d_{31}' = d_{31}' = 0.354(d_{33} + d_{32} - d_{24}) \end{aligned}$$

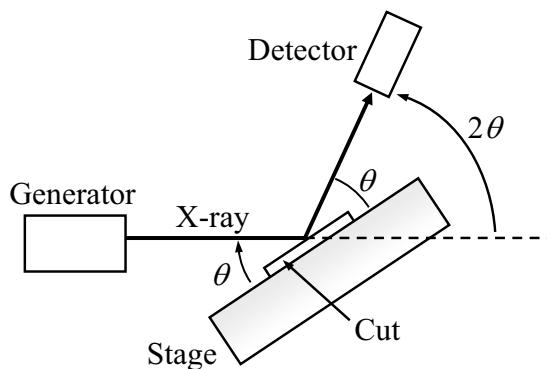
このように、 $(YXw)45^\circ$  の  $TE-LE$  振動から得られる圧電定数  $d_{31}'$  は  $d_{11}$ 、 $d_{12}$ 、 $d_{26}$  と関係し、 $(ZYw)45^\circ$  の  $TE-LE$  振動から得られる圧電定数  $d_{31}'$  は  $d_{33}$ 、 $d_{32}$ 、 $d_{24}$  と関係することがわかる。ここにある圧電定数  $d_{11}$  と  $d_{33}$  以外の圧電定数  $d_{12}$ 、 $d_{26}$ 、 $d_{32}$ 、 $d_{24}$  については、その評価方法を第2章の2.3節に示した。

以上、板状共振子を用いた圧電定数  $d_{11}$  と  $d_{33}$  の評価をまとめると、 $(YXw)45^\circ$  の  $TE-LE$  振動から得られる  $d_{31}'$ 、 $(XYt)0^\circ$  の  $TE-LE$  振動から得られる  $d_{12}$ 、さらに  $Y$  面電極  $(ZXw)0^\circ$  の縦効果面内すべり  $(LE-FS)$  振動から得られる  $d_{26}$  を用いて、圧電定数  $d_{11}$  を求めることができる。また、 $(ZYw)45^\circ$  の  $TE-LE$  振動から得られる  $d_{31}'$ 、 $(ZYw)0^\circ$  の  $TE-LE$  振動から得られる  $d_{32}$ 、さらに  $Y$  面電極  $(XZw)0^\circ$  の  $LE-FS$  振動から得られる  $d_{24}$  を用いて、圧電定数  $d_{33}$  を求めることができる。

## A.10 X線回折実験の光学系

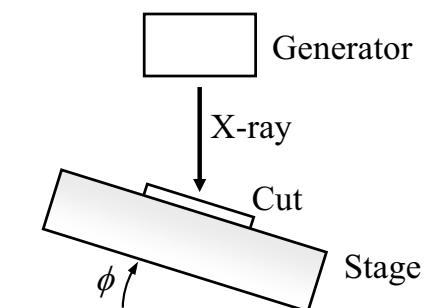
### ● $\theta$ スキャンと $2\theta$ スキャン

$\theta$  は X 線入射方向に対する試料・ステージの煽り角であり、 $2\theta$  は X 線カウンタの煽り角である。



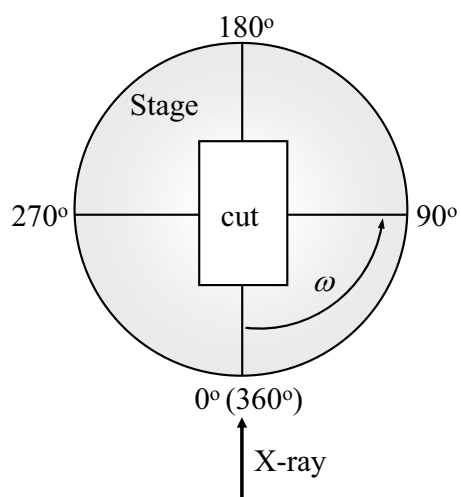
### ● $\phi$ スキャン

$\phi$  は X 線入射方向に対して横方向の煽り角である。



### ● $\omega$ スキャン

$\omega$  は試料・ステージの面内回転角である。





## A.11 弾性表面波特性の計算機解析の原理<sup>36)</sup>

ここでは、弾性表面波特性の計算機解析の原理として、James J. Campbell and William R. Jones による計算手法を簡単にまとめる。

圧電体における表面波伝搬の基本式は第4章の4.2.2項にもあるように、次の式で表すことができる。

$$(圧電基本式) \quad T_{ij} = c_{ijkl} s_{kl} - e_{kij} E_k \quad (A-28)$$

$$D_i = e_{ikl} s_{kl} + \varepsilon_{ik} E_k \quad (A-29)$$

$$(静電基本式) \quad \frac{\partial D_j}{\partial x_j} = 0 \quad (A-30)$$

$$E_i = -\frac{\partial \phi}{\partial x_i} \quad (A-31)$$

$$(運動方程式) \quad \rho \frac{\partial^2 u_i}{\partial t^2} = \frac{\partial T_{ij}}{\partial x_j} \quad (A-32)$$

$$(歪みの関係式) \quad s_{kl} = \frac{1}{2} \left( \frac{\partial u_k}{\partial x_l} + \frac{\partial u_l}{\partial x_k} \right) \quad (A-33)$$

ここで、 $\phi$ は電位、 $c$ は弾性スティフネス、 $e$ は圧電定数、 $u$ は変位を表している。他の文字は、以前に定めたものと同様である。これらの式をまとめた式(A-34)のような微分方程式が得られる。

$$\begin{aligned} c_{ijkl} \frac{\partial^2 u_j}{\partial x_i \partial x_l} - e_{kij} \frac{\partial^2 \phi}{\partial x_k \partial x_j} &= \rho \frac{\partial^2 u_i}{\partial t^2} \\ e_{ikl} \frac{\partial^2 u_k}{\partial x_i \partial x_l} - \varepsilon_{ik} \frac{\partial^2 \phi}{\partial x_i \partial x_l} &= 0 \end{aligned} \quad (A-34)$$

これを解くため、図1に示すような座標系を設定し、 $x_1$ 方向に伝搬し、深さ( $x_3$ )方向に減衰する波を考え、波の変位  $u$  ならびに電気変位  $\phi$  を式(A-35)のように仮定する。

$$\begin{aligned} u_j &= \alpha_j e^{ikbx_3} e^{ik(x_1-vt)} \\ \phi &= \alpha_4 e^{ikbx_3} e^{ik(x_1-vt)} \end{aligned} \quad (\text{A-35})$$

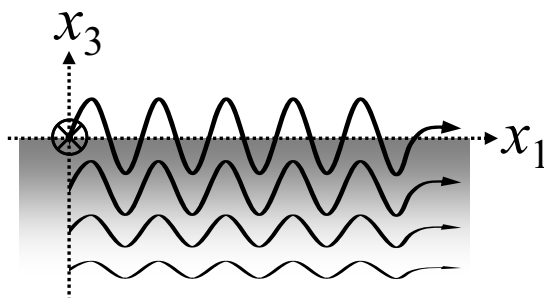


図1 半無限基板上的波の伝搬

ここで、 $k$  は波数、 $b$  は深さ方向の減衰係数、 $v$  は伝搬速度、 $\alpha_j$  は振幅である。尚、伝搬速度  $v$  を複素数とすることで、 $x_1$  方向に伝搬する波とともに減衰する波(漏洩波)も扱うことができる。式(A-35)を微分方程式である式(A-34)に代入すると、

$$\begin{pmatrix} \Gamma_{11} - \rho v^2 & \Gamma_{12} & \Gamma_{13} & \Gamma_{14} \\ \Gamma_{12} & \Gamma_{22} - \rho v^2 & \Gamma_{23} & \Gamma_{24} \\ \Gamma_{13} & \Gamma_{23} & \Gamma_{33} - \rho v^2 & \Gamma_{34} \\ \Gamma_{14} & \Gamma_{24} & \Gamma_{34} & \Gamma_{44} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \alpha_1 \\ \alpha_2 \\ \alpha_3 \\ \alpha_4 \end{pmatrix} = \mathbf{A}\boldsymbol{\alpha} = 0 \quad (\text{A-36})$$

となる。ここで  $\Gamma$  に関して、

$$\begin{aligned} \Gamma_{11} &= c_{55}b^2 + 2c_{15}b + c_{11} & \Gamma_{13} &= c_{35}b^2 + (c_{13} + c_{55})b + c_{15} \\ \Gamma_{22} &= c_{44}b^2 + 2c_{46}b + c_{66} & \Gamma_{23} &= c_{34}b^2 + (c_{36} + c_{45})b + c_{56} \\ \Gamma_{33} &= c_{33}b^2 + 2c_{35}b + c_{55} & \Gamma_{14} &= e_{35}b^2 + (e_{15} + e_{31})b + e_{11} \\ \Gamma_{44} &= -(e_{33}b^2 + 2e_{13}b + e_{11}) & \Gamma_{24} &= e_{34}b^2 + (e_{14} + e_{36})b + e_{16} \\ \Gamma_{12} &= c_{45}b^2 + (c_{14} + c_{56})b + c_{16} & \Gamma_{34} &= e_{33}b^2 + (e_{13} + e_{35})b + e_{15} \end{aligned} \quad (\text{A-37})$$

とする。この式で  $\boldsymbol{\alpha}$  が非自明解( $\boldsymbol{\alpha} = 0$  以外)を持つためには、

$$|\mathbf{A}| = 0 \quad (\text{A-38})$$

でなければならず、このとき伝搬速度  $v$  をパラメータとする  $b$  の 8 次方程式が得られる。この 8 次方程式を解くことで、8 個の  $b$  の解  $b^{(m)}$  が得られることになるが、ある速度(カットオフ速度)までは  $b$  はすべて複素共役となる。カットオフ以下の速度では、弾性表面波の条件である  $x_3 \rightarrow \infty$  (半無限基板) で変位  $u_j \rightarrow 0$ ,  $\phi \rightarrow 0$  を満たす 4 組の  $b$  を選び、それぞれの  $b$  に対して適当な解ベクトル  $\alpha$  を計算し、伝搬速度  $u$  と電位  $\phi$  を係数  $C_m$  で線形結合させた波を一般解とすると、下記のようなになる。

$$\begin{aligned} u_j &= \sum_{m=1}^4 C_m \alpha_j^{(m)} e^{iKb^{(m)}x_3} e^{iK(x_1-vt)} \\ \phi &= \sum_{m=1}^4 C_m \alpha_4^{(m)} e^{iKb^{(m)}x_3} e^{iK(x_1-vt)} \end{aligned} \quad (\text{A-39})$$

ここで、 $C_m$  は任意の係数である。これを下記の 4 つの境界条件に代入する。 $x_3 = 0$  のとき、

- |    |               |                              |
|----|---------------|------------------------------|
| 1. | 電氣的開放 (free)  | $D_3 = K \varepsilon_0 \phi$ |
| 1. | 電氣的短絡 (Short) | $\phi = 0$                   |
| 2. |               | $T_{13} = 0$                 |
| 3. |               | $T_{23} = 0$                 |
| 4. |               | $T_{33} = 0$                 |

これら境界条件に式(A-39)を代入し、再び  $C_m$  に関する行列

$$\mathbf{B} \begin{pmatrix} C_1 \\ C_2 \\ C_3 \\ C_4 \end{pmatrix} = 0 \quad (\text{A-40})$$

を得る。 $\mathbf{B}$  は 4x4 の行列で、 $C_m$  が非自明解を持つには

$$|\mathbf{B}| = 0 \quad (\text{A-41})$$

である。これを満たす伝搬速度  $v$  を探すことで、SAW 伝搬速度が求まる。

## 参考文献

- 1) 山之内和彦: “ニオブ酸カリウム結晶の SAW デバイスへの応用”, 超音波テクノ, pp. 78-82 (1999).
- 2) 中村僖良: “新しい圧電結晶  $\text{KNbO}_3$  の魅力”, 日本音響学会誌, Vol. 58, No. 8, pp. 524-529 (2002).
- 3) M. Zgonik, R. Schlessler, I. Biaggio, E. Voit, J. Tsherry and P. Guter: “Materials constants of  $\text{KNbO}_3$  relevant for electro- and acousto-optics”, J. Appl. Phys., Vol. 74, pp. 1287-1297 (1993).
- 4) R. W. Whatmore, N. M. Shorrocks, C. O’Hara, F. W. Ainger and I. M. Young: “Lithium Tetraborate: A New Temperature-Compensated SAW Substrate Material”, Electron. Letters, Vol. 17, No. 1, pp. 11-12 (1981).
- 5) N. M. Shorrocks, R. W. Whatmore, F. W. Ainger and I. M. Young: “Lithium Tetraborate-A New Temperature Compensated Piezoelectric Substrate Materials for Surface Acoustic Wave Devices”, IEEE 1981 Ultrason. Symp., pp. 337-340 (1981).
- 6) B. Lewis, N. W. Shorrocks and R. W. Whatmore: “An Assessment of Lithium Tetraborate for SAW Applications”, IEEE 1982 Ultrason. Symp., pp. 389-393 (1982).
- 7) M. Adachi, T. Shiosaki, H. Kobayashi, O. Ohnishi and A. Kawabata: “Temperature Compensated Piezoelectric Lithium Tetraborate Crystal for High Frequency Surface Acoustic Wave and Bulk Wave Device Applications”, IEEE 1985 Ultrason. Symp., pp. 228-232 (1985).
- 8) Warren P. Mason: “Piezoelectric Crystals and Their Application to Ultrasonics”, D. Van Nostrand Company, Inc., Princeton, New Jersey, New York (1950).
- 9) R. Bechmann, A. D. Ballato and T. J. Lukaszek: “Higher-Order Temperature Coefficients of the Elastic Stiffness and Compliances of Alpha-Quartz”, Proc. IRE, Vol. 50, pp. 1812-1822 (1962).
- 10) I. Koga and M. Aruga: “Theory of Plane Elastic Waves in a Piezoelectric Crystalline Medium and Determination of Elastic and Piezoelectric Constants of Quartz”, Phys. Rev., Vol. 109, No. 5, pp. 1467-1473 (1958).
- 11) B. J. James: “A New Measurement of the Basic Elastic and Dielectric Constants of Quartz”, Proc. 42nd Annual Freq. Contr. Symp., pp. 146-154 (1988).
- 12) J. Kushibiki, I. Takanaga and S. Nishiyama: “Accurate Measurements of the Acoustical Physical Constants of Synthetic  $\alpha$ -quartz for SAW Devices”, IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control, Vol. 49, No. 1, pp. 125-135 (2002).

- 13) Yu. V. Pisarevsky, P. A. Senushencov, P. A. Popov and B. V. Mill: “New Strong Piezoelectric  $\text{La}_3\text{Ga}_{5.5}\text{Nb}_{0.5}\text{O}_{14}$  with Temperature Compensation Cuts”, 1995 Proc. IEEE Int. Freq. Contr. Symp., pp. 653-656 (1995).
- 14) S. Sakharov, P. Senushencov, A. Medvedev and Yu. Pisarevsky: “New Data on Temperature Stability Acoustical Losses of Langasite Crystals”, Proc. IEEE Freq. Contr. Symp., pp. 647-652 (1995).
- 15) K. Inoue and K. Sato: “Propagation Characteristics of Surface Acoustic Waves on Langasite”, Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 37, No. 5, pp. 2909-2913 (1998).
- 16) A. Bungo, C-Y. Jian, K. Yamaguchi, Y. Sawada, S. Uda and Yuri. P. Pisarevsky: “Analysis of Surface Acoustic Wave Properties of the Rotated Y-cut Langasite Substrate”, Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 38, No. 5, pp. 3239-3243 (1999).
- 17) M. Adachi, T. Karaki and W. Miyamoto: “Surface Acoustic Wave Properties of  $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$  (Langasite) and Single Crystal”, Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 38, No. 5, pp. 3283-3287 (1999).
- 18) N. Onozato, M. Adachi and T. Karaki: “Surface Acoustic Wave Properties of  $\text{La}_3\text{Ta}_{0.5}\text{Ga}_{5.5}\text{O}_{14}$  Single Crystals”, Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 39, No. 5, pp. 3028-3031 (2000).
- 19) 井上憲司, 佐藤勝男, 守越広樹: “ $\text{La}_3\text{Ga}_{5.5}\text{Ta}_{0.5}\text{O}_{14}$  基板の弾性表面波伝搬特性”, 第 29 回 EM シンポジウム, pp. 201-205 (2000).
- 20) A. W. Warner, M. Onoe and G. A. Coquin: “Determination of elastic and piezoelectric constants for crystals in class (3m)”, J. Acoust. Soc. Amer., Vol. 42, No. 6, pp. 1223-1231 (1967).
- 21) R. T. Smith and F. S. Welsh: “Temperature Dependence of the Elastic, Piezoelectric, and Dielectric Constants of Lithium Tantalate and Lithium Niobate”, J. Appl. Phys., Vol. 42, No. 6, pp. 2219-2230 (1971).
- 22) Yasuhiko Nakagawa, Kazuhiko Yamanouchi, and Kimio Shibayama: “Third-order elastic constants of lithium niobate”, J. Appl. Phys., Vol. 44, No. 9, pp. 3969-3974 (1973).
- 23) 門田道雄, 笠次徹, 皆方誠: “ECR スパッタ装置を用いて成膜した ZnO 膜の圧電的特性”, 信学会論文誌 A, Vol. J176-A, No. 2, pp. 138-144 (1993).
- 24) M. Kadota, T. Kasanami and M. Minakata: “Characteristics of Zinc Oxide Films on Glass Substrate Deposited by RF-Mode Electron Cyclotron resonance Sputtering System”, Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 32, Part 1, No. 5B, pp. 2341-2345 (1993).
- 25) 門田道雄, 皆方誠: “RF マグネトロン形 ECR スパッタ装置による ZnO 膜の特性”, 信学会論文誌 C-I, Vol. J78-C-I, No. 11, pp. 580-586 (1995).
- 26) 橋本研也, 小川正太郎, 野々口晃典, 大森達也, 山口正恆: “対向ターゲットスパッタ法による圧電性酸化亜鉛薄膜の作製”, 信学会論文誌 C-I, Vol. J82, No. 12, pp. 777-783 (1999).

- 27) 日本電子工業振興会・編: “表面弾性波素子材料データブック”, 53-M-131, 社団法人 日本電子工業振興協会, p. 96 (1978).
- 28) K. M. Lakin: “Thin film resonators and filters”, Proc. 1999 IEEE Ultrason. Symp., pp. 895-908 (1999).
- 29) J. D. Larson III, R. R. Ruby, P. Bradley and Y. Oshmyansky: “A BAW antenna duplexer for the 1900 MHz PCS band”, Proc. 1999 IEEE Ultrason. Symp., pp. 887-890 (1999).
- 30) K. Tsubouchi and N. Mikoshiba: “Zero-temperature-coefficient SAW devices on AlN epitaxial films”, IEEE Trans. on Sonics and Ultrason., Vol. SU-32, No. 5, pp. 634-644 (1985).
- 31) 日本学術振興会弾性波素子技術第 150 委員会・編: “弾性波素子技術ハンドブック”, オーム社, pp. 545-546 (1991).
- 32) 森本信男, 砂川一郎, 都城秋穂・著, “鉱物学”, 岩波書店, p. 63 (1975).
- 33) 日本学術振興会弾性波素子技術第 150 委員会・編: “弾性波デバイス技術”, オーム社, pp. 21-29 (2004).
- 34) 株式会社 富士セラミックス: “圧電セラミック・テクニカルハンドブック”, p. 13.
- 35) 池田拓郎・著: “圧電材料学の基礎”, オーム社, p. 78 (1984).
- 36) James J. Campbell and William R. Jones: “A Method for Estimating Optimal Crystal Cuts and Propagation Directions for Excitation of Piezoelectric Surface Waves”, IEEE Trans. Sonics & Ultrason., Vol. 15, pp. 209-217 (1968).

# 謝辞

本論文は、筆者が奈良先端科学技術大学院大学 物質創成科学研究科 博士後期課程に在学した 2003 年の春に演算・記憶素子科学講座において着手し、同講座に在籍した 3 年間で挙げた研究成果をまとめたものである。

本研究を遂行するにあたり、終始御指導と御鞭撻をいただいた奈良先端科学技術大学院大学 物質創成科学研究科 演算・記憶素子科学講座の塩寄忠教授に深く感謝の意を表すとともに、厚く御礼申し上げます。

同学 物質創成科学研究科 微細素子科学講座の冬木隆教授には、副指導教員ならびに本論文の審査を引き受けていただきました。深く感謝いたします。

同学 物質創成科学研究科 凝縮系物性学講座の大門寛教授には、本論文の審査を引き受けていただきました。深く感謝いたします。

同学 物質創成科学研究科 演算・記憶素子科学講座の内山潔助教授には、本論文の審査を引き受けていただいたとともに、講座でのゼミナールで有意義な御助言を多く賜りました。深く感謝いたします。

現 東京理科大学 理学部 応用物理学科の岡村総一郎助教授 (元 奈良先端科学技術大学院大学 物質創成科学研究科 演算・記憶素子科学講座 助教授) には、筆者が同講座に在籍した最初の 2 年間で、多くの御指導ならびに御助言を賜りました。深く感謝いたします。

奈良先端科学技術大学院大学 物質創成科学研究科 演算・記憶素子科学講座の武田博明助手には、日々の研究生活で多くの御教示を賜り、また苦境に直面したときには激励していただきました。さらに、本研究を遂行するにあたり、結晶成長、圧電特性評価に関する有益な御助言を数多く賜りました。深く感謝いたします。

同講座の西田貴司助手には、本研究を遂行するにあたり数多くの有益な御助言をいただきました。特に、計測機器の使用法、弾性表面波特性の理論解析手法に関する御指導を賜りました。深く感謝いたします。

堺化学工業株式会社 大剣工場 技術課の式田尚志氏、ならびに同社 中央研究所の中尾日六士博士、西田雅宏氏には、共同研究者として終始多大なる御助力を賜りました。特に、西田雅宏氏には、作製結晶の組成分析など本研究の遂行に多大なる御尽力を賜りました。堺化学工業株式会社の諸氏に深く感謝いたします。

富山県立大学 工学部 電子情報工学科 機能材料工学講座の安達正利教授ならびに唐木智明助教授には、圧電特性の評価方法、特に本研究の核となった材料定数の算出に関して、国内外の会議において数多くの御助言を賜りました。深く感謝いたします。

筆者が在籍中、日々の研究生生活でお世話になった、奈良先端科学技術大学院大学 物質創成科学研究科 演算・記憶素子科学講座の学生諸氏に深く感謝いたします。特に、筆者とともに本研究を遂行し、苦労と喜びをともにした、博士前期課程の近藤綾子氏、児玉芳氏(現 パナソニック半導体ディスクリートデバイス株式会社)には、感謝の念に絶えません。厚く御礼申し上げます。また、本学の同期として学生生活をともにし、心の支えとなった同講座卒業生の迫秀樹氏(現 株式会社東レリサーチセンター)、松下充宏氏(現 シャープ株式会社)に深く感謝いたします。

最後に、長きに渡る学生生活を、経済的・精神的に支援してくださった両親に心より感謝いたします。



# 研究業績

## 発表論文

- 1) “Growth and Characterization of Lanthanum Calcium Oxoborate  $\text{LaCa}_4\text{O}(\text{BO}_3)_3$  Single Crystals”  
Hiroaki Takeda, Hideki Sako, Hiroyuki Shimizu, Kaoru Kodama, Masahiro Nishida, Hiroshi Nakao, Soichiro Okamura, Takashi Shikida and Tadashi Shiosaki  
Japanese Journal of Applied Physics, **42** (2003) pp. 6081-6085.
- 2) “Evaluation of Material Constants and Temperature Properties in Lanthanum Calcium Oxoborate  $\text{LaCa}_4\text{O}(\text{BO}_3)_3$  Single Crystals”  
Hiroyuki Shimizu, Kaoru Kodama, Hiroaki Takeda, Takashi Nishida, Takashi Shikida, Soichiro Okamura and Tadashi Shiosaki  
Japanese Journal of Applied Physics, **43** (2004) pp. 6716-6720.
- 3) “Dielectric, Elastic and Piezoelectric Constants of Lanthanum Calcium Oxoborate Single Crystals with Monoclinic Structure of Point Group  $m$ ”  
Hiroyuki Shimizu, Takashi Nishida, Masahiro Nishida, Hiroaki Takeda, and Tadashi Shiosaki  
Japanese Journal of Applied Physics, **44** (2005) pp. 7059-7063.
- 4) “Growth and Piezoelectric Properties of  $R_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$  and  $\text{RCa}_4\text{O}(\text{BO}_3)_3$  ( $R$ : rare-earth elements) Single Crystals”  
Hiroaki Takeda, Hiroshi Nakao, Shintaro Izukawa, Hiroyuki Shimizu, Takashi Nishida, Soichiro Okamura and Tadashi Shiosaki  
Journal of Alloys and Compounds, **408-412** (2006) pp. 474-479.
- 5) “Theoretical Calculation of the Surface Acoustic Wave Characteristics of GdCOB Single Crystals”  
Takashi Nishida, Hiroyuki Shimizu, Tadashi Shiosaki  
Journal of Alloys and Compounds, **408-412** (2006) pp. 577-581.
- 6) “Growth and SAW Properties of Rare-Earth Calcium Oxoborate Crystals”  
Hiroshi Nakao, Masahiro Nishida, Takashi Shikida, Hiroyuki Shimizu, Hiroaki Takeda and Tadashi Shiosaki  
Journal of Alloys and Compounds, **408-412** (2006) pp. 582-585.

## 国際会議プロシーディングス

- 1) “Evaluation of Material Constants and SAW Properties in  $\text{LaCa}_4\text{O}(\text{BO}_3)_3$  Single Crystals”  
Hiroyuki Shimizu, Hiroaki Takeda, Takashi Nishida, Takashi Shikida, Soichiro Okamura and Tadashi Shiosaki  
Proceeding 2004 IEEE Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control Symposium, (2004) pp. 1218-1222.
- 2) “Electro-Acoustical Constants and Rayleigh SAW Propagation Characteristics of Rare-Earth Calcium Oxoborate Single Crystals”  
Hiroyuki Shimizu, Ayako Kondo, Masahiro Nishida, Hiroaki Takeda, Takashi Nishida and Tadashi Shiosaki  
Proceeding 2005 IEEE Ultrasonics Symposium, (2005) pp. 934-938.
- 3) “Dielectric, Elastic, Piezoelectric Constants and Surface Acoustic Wave Properties of Rare-Earth Calcium Oxoborates,  $\text{RCa}_4\text{O}(\text{BO}_3)_3$  ( $R = \text{La, Gd, Y}$ ), Single Crystals”  
Hiroyuki Shimizu, Ayako Kondo, Masahiro Nishida, Hiroaki Takeda, Takashi Shikida and Tadashi Shiosaki  
Extended Abstracts in 12th US-Japan Seminar on Dielectric and Piezoelectric Ceramics, (2005) pp. 145-148.

## 解説

- 1) “希土類 Ca ボレート単結晶の作製と圧電特性 = $\text{LaCa}_4\text{O}(\text{BO}_3)_3$ 系単結晶の作製と材料定数評価と弾性表面波特性=”  
塩寄忠, 清水寛之, 武田博明, 西田貴司  
隔月刊「超音波テクノ」2006年6月号掲載
- 2) “低対称を有する圧電体単結晶の材料定数評価”  
清水寛之, 近藤綾子, 武田博明, 西田貴司, 塩寄忠  
会誌「応用物理」2006年5月号掲載

## 国内会議

- 1) “ランタンカルシウムオキソボレート  $\text{LaCa}_4\text{O}(\text{BO}_3)_3$  結晶の材料定数評価”  
清水寛之, 児玉芳, 武田博明, 西田貴司, 式田尚志, 岡村総一郎, 塩寄忠  
第 51 回日本応用物理学関係連合講演会, 東京工科大学 (2004 年 3 月 28 日)
- 2) “GdYCOB 結晶の材料定数の評価と弾性表面波特性の解析”  
西田貴司, 清水寛之, 武田博明, 岡村総一郎, 塩寄忠  
第 51 回日本応用物理学関係連合講演会, 東京工科大学 (2004 年 3 月 28 日)
- 3) “ランタンカルシウムオキソボレート  $\text{LaCa}_4\text{O}(\text{BO}_3)_3$  結晶の材料定数評価”  
清水寛之, 児玉芳, 武田博明, 西田貴司, 式田尚志, 岡村総一郎, 塩寄忠  
第 21 回強誘電体応用会議 FMA-21, コープイン京都 (2004 年 5 月 28 日)
- 4) “ランタンカルシウムオキソボレート  $\text{LaCa}_4\text{O}(\text{BO}_3)_3$  結晶の材料定数と温度特性”  
清水寛之, 武田博明, 西田貴司, 式田尚志, 岡村総一郎, 塩寄忠  
第 65 回日本応用物理学関係連合講演会, 東北学院大学 (2004 年 9 月 3 日)
- 5) “GdYCOB 結晶の材料定数の評価と弾性表面波特性の解析(II)”  
西田貴司, 清水寛之, 武田博明, 岡村総一郎, 塩寄忠, 西田雅宏,  
中尾日六士, 式田尚志  
第 65 回日本応用物理学関係連合講演会, 東北学院大学 (2004 年 9 月 3 日)
- 6) “ランタンカルシウムオキソボレート  $\text{LaCa}_4\text{O}(\text{BO}_3)_3$  結晶の作製と誘電・弾性・  
圧電諸定数の決定”  
塩寄忠, 清水寛之, 武田博明, 西田貴司, 岡村総一郎  
日本学術振興会弾性波素子技術第 150 委員会第 89 回研究会, 仙台ガーデンパ  
レス (2004 年 10 月 18 日)
- 7) “ $\text{LaCa}_4\text{O}(\text{BO}_3)_3$  結晶の材料定数評価と弾性表面波特性”  
清水寛之, 武田博明, 西田貴司, 式田尚志, 岡村総一郎, 塩寄忠  
第 25 回超音波エレクトロニクス USE04, 北海道大学 (2004 年 10 月 28 日)
- 8) “点群  $m$  に属する  $\text{LaCa}_4\text{O}(\text{BO}_3)_3$  結晶の誘電・弾性・圧電諸定数”  
清水寛之, 武田博明, 西田貴司, 岡村総一郎, 塩寄忠  
第 22 回強誘電体応用会議 FMA-22, コープイン京都 (2005 年 5 月 27 日)

- 9) “希土類カルシウムオキソボレート結晶の弾性表面波特性”  
清水寛之, 近藤綾子, 武田博明, 西田貴司, 内山潔, 塩寄忠  
日本セラミックス協会第 18 回秋季シンポジウム, 大阪府立大学 (2005 年 9 月 27 日)
- 10) “GdCOB 結晶の圧電定数測定と弾性表面波特性の計算機解析”  
西田貴司, 清水寛之, 武田博明, 内山潔, 塩寄忠  
第 26 回超音波エレクトロニクス USE05, 東京工業大学 (2005 年 11 月 16 日)
- 11) “希土類カルシウムオキソボレート結晶の  $RCa_4O(BO_3)_3$  ( $R = La, Gd, Y$ ) 結晶の圧電・弾性・誘電定数と弾性表面波特性”  
近藤綾子, 清水寛之, 西田貴司, 武田博明, 内山潔, 塩寄忠  
第 26 回超音波エレクトロニクス USE05, 東京工業大学 (2005 年 11 月 16 日)

## 国際会議

- 1) “Evaluation of Material Constants and SAW Properties in  $LaCa_4O(BO_3)_3$  Single Crystals”  
Hiroyuki Shimizu, Hiroaki Takeda, Takashi Nishida, Takashi Shikida, Soichiro Okamura, Tadashi Shiosaki  
2004 IEEE International UFFC Joint 50th Anniversary Conference, Montreal, Canada, Aug. 24, 2004.
- 2) “Theoretical Calculation of SAW Characteristics of the GdYCOB Single Crystals”  
Takashi Nishida, Hiroyuki Shimizu, Hiroaki Takeda, Soichiro Okamura and Tadashi Shiosaki  
2004 IEEE International UFFC Joint 50th Anniversary Conference, Montreal, Canada, Aug. 26, 2004.
- 3) “Growth and SAW Properties of Rare-Earth Calcium Oxoborate Crystals”  
Hiroshi Nakao, Masahiro Nishida, Takashi Shikida, Hiroyuki Shimizu, Hiroaki Takeda, Tadashi Shiosaki  
Rare Earth '04, Nara, Japan, Nov. 11, 2004.

- 4) “Electro-Acoustical Constants and Rayleigh SAW Propagation Characteristics of Rare-Earth Calcium Oxoborate Single Crystals”  
Tadashi Shiosaki, Hiroyuki Shimizu, Ayako Kondo, Masahiro Nishida, Hiroaki Takeda and Takashi Nishida  
2005 IEEE International Ultrasonics Symposium, Rotterdam, Netherlands,  
Sep. 21, 2005.
  
- 5) “Dielectric, Elastic, Piezoelectric Constants and Surface Acoustic Wave Properties of Rare-earth Calcium Oxoborates,  $RCa_4O(BO_3)_3$  ( $R = La, Gd, Y$ ), Single Crystals”  
Hiroyuki Shimizu, Ayako Kondo, Masahiro Nishida, Hiroaki Takeda, Takashi Nishida and Tadashi Shiosaki  
12th US-Japan Seminar on Dielectric and Piezoelectric Ceramics, Annapolis, USA,  
Nov. 7, 2005.

## 受賞

- 1) “IEEE Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control Society 2004 Student Award”  
(2004 IEEE International UFFC Joint 50th Anniversary Conference, Montreal, Canada, Aug. 26, 2004)
  
- 2) “Symposium on Ultrasonic Electronics : Young Scientist Award”  
(第 25 回超音波エレクトロニクス USE04, 北海道大学, 2004 年 10 月 28 日)
  
- 3) “シンポジウムポスター優秀賞”  
(日本セラミックス協会第 18 回秋季シンポジウム, 大阪府立大学, 2005 年 9 月 27 日)