

2025年8月7日

報道機関 各位

国立大学法人東北大学

るつぼの限界、2,200°C以上で 高機能結晶を作製する技術を開発

— 高密度・高速発光・高耐久性等を有する新物質の創製に期待 —

【発表のポイント】

- 融点が3,400°C以上と高く熱処理炉などに使うタングステン（W）のるつぼを用いて結晶を成長させる新技術を開発し、従来は困難だった2,200°C以上の高温で様々な酸化物単結晶を作製することに成功しました。
- 新技術で融点が2,200°C以上の高密度酸化物（約9.7 g/cm³）の単結晶作製に成功し、希土類の添加で発光も確認しました。これらは高エネルギー応答や高速発光のシンチレータ^{（注1）}として応用が期待されます。
- 他にも様々な酸化物の単結晶作製にも成功し、高温における多様な酸化物単結晶の新物質開発への展開が期待されます。

【概要】

半導体や電子機器、光学機器等に用いられる付加価値の高い単結晶の一部は、これまで使用可能温度が2,200°C以下のイリジウム（Ir）や白金（Pt）製のるつぼを用いた単結晶成長で材料開発や量産が行われてきました。そのため、それらの貴金属のるつぼでは、2,200°Cを超える高温域の材料開発はほとんど進められてきませんでした。

東北大学金属材料研究所の横田有為准教授と吉川彰教授らからなる研究グループは、融点が3,400°Cを超えるW製のるつぼに着目し、新たな結晶成長技術を開発しました。Wるつぼは酸化物融液と反応することや結晶内への混入の懸念がありました。今回、反応や混入のメカニズムを解明して反応や混入を抑制した技術を実現しました。この結晶成長技術は、従来では困難だった2,200°Cを超える高融点の酸化物単結晶の新物質探索や量産製造に大きく貢献することが期待されます。これまでに既存シンチレータを超える高密度単結晶の開発に成功しており、多様な用途の新物質創製に寄与することが期待されます。

本研究成果は、2025年8月8日（現地時間）に科学誌 Scientific Reports に掲載されます。

【詳細な説明】

研究の背景

半導体や電子機器、光学機器等で重要な素子として広く用いられている機能性単結晶素子の一部は、Ir 製や Pt 製のるつぼを用いた単結晶成長法で材料開発や量産製造が行われています。例えば、Ir るつぼで量産製造されているサファイア (α - Al_2O_3) 単結晶は半導体用基板に、タンタル酸リチウム (LiTaO_3) 単結晶は携帯電話用の表面弾性波 (SAW) フィルタ^(注2)として我々の身近で活躍しています。一方で、Ir や Pt の貴金属るつぼは、使用可能な温度が $2,200^\circ\text{C}$ 以下であることから、それ以上の温度で単結晶成長が必要な高融点材料の探索や量産製造は一部に留まっていました (図 1)。

一方で、高融点の W は $2,200^\circ\text{C}$ 以上の温度でも使用可能であるにもかかわらず、結晶成長中の酸化物と反応したり、育成した結晶中に混入することが懸念されていたことで、単結晶材料の材料探索や量産製造用のるつぼとしての利用はほとんど行われてきませんでした。その結果、超高密度や高速発光などが期待されるハフニウム (Hf) やジルコニウム (Zr) を含むパイロクロア系、希土類ペロブスカイト系、希土類セスキオキサイド系、タンタル (Ta) 系酸化物等の材料は、その魅力的な機能性にも関わらず、 $2,200^\circ\text{C}$ を超える融点の材料が多いため単結晶の作製が困難でした。

今回の取り組み

本研究グループは、W と酸化物との反応や結晶内への W の混入が、結晶成長時に周囲の断熱材から放出される酸素に起因することを突き止めました。そこで酸素の放出を抑制する脱酸素化プロセス^(注3)を導入しました。その結果、W るつぼと脱酸素断熱材を用いた新たな結晶成長技術によって、高品質な高融点酸化物の単結晶成長に初めて成功しました。

この単結晶成長技術を用いることで、 $2,200^\circ\text{C}$ を超える融点のタンタル酸ルテチウム (Lu_3TaO_7)、ハフニウム酸ランタン ($\text{La}_2\text{Hf}_2\text{O}_7$)、ジルコン酸ランタン ($\text{La}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$) の単結晶を作製することができました。特に Lu_3TaO_7 は酸化物の中では密度が約 9.7 g/cm^3 と特に高く、この材料を用いたシンチレータは、高エネルギー放射線を効率よく検出できる上、チェレンコフ発光^(注4)を利用した高速応答が可能な高密度シンチレータとしての利用が期待されます。

この他にも、蛍光温度計^(注5)やレーザー用光学素子として注目されている酸化スカンジウム (Sc_2O_3) や酸化ルテチウム (Lu_2O_3) 等の希土類セスキオキサイドや、薄膜用基板として用いられているスカンジウム酸ガドリニウム (GdScO_3) に代表される希土類ペロブスカイト、スカンジウム酸イットリウム (YScO_3) 等のビックスバイト系の単結晶育成にも複数成功しており、これらの材料系では高温における高精度な温度測定や格子定数を調整した単結晶基板などの応用も可能です。

今後の展開

今回は、マイクロ引き下げ (μ -PD) 法^(注6)で W るつぼを用いた新たな結晶成長技術を開発し、2~3 mm 径のファイバー状単結晶を得ることに成功しました。一方で、広く機能性単結晶の量産製造に用いられているのは、数インチ径の大口径単結晶が製造可能なチヨクラスキー (Cz) 法^(注7)です。我々は、今回開発した新たな結晶成長技術は、同様に融液から単結晶を作製する結晶成長法である Cz 法においても実現可能であると考えています。現在、この新たな単結晶量産製造技術を実現するために、JST の支援の下で A-Step 産学共同 [本格型] の産学連携プロジェクトが進行中です。このプロジェクトの目標である W るつぼと脱酸素断熱材を用いた新たな Cz 法が確立することで、2,200°C 以上の融点を有する酸化物単結晶の量産製造が可能となります。さらに、近年の貴金属価格の高騰によって、従来法で製造可能な単結晶材料もその製造コストの増大が問題となっています。今回の製法は、2,200°C 以下の単結晶成長も可能であることから、貴金属るつぼを W るつぼで代替することによって既存単結晶材料の低コスト化にも寄与することが期待されます。

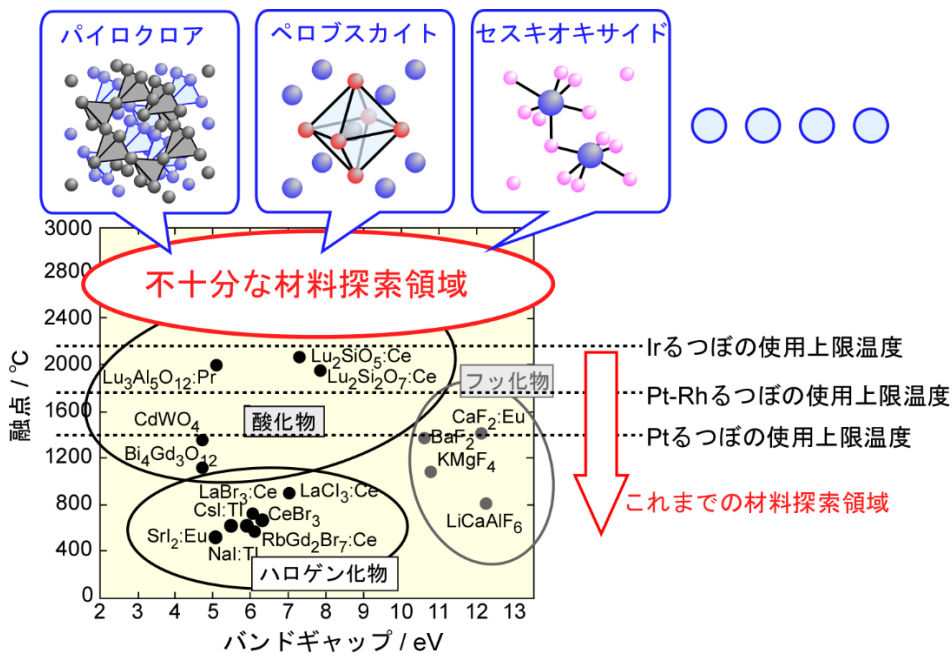


図 1. 既存の酸化物・フッ化物・ハロゲン化物シンチレータ単結晶の融点とバンドギャップ。Ir、Pt-Rh、Pt るつぼで結晶成長可能な領域と、これまで貴金属るつぼでは十分に材料探索が行われてこなかった領域が示されています。

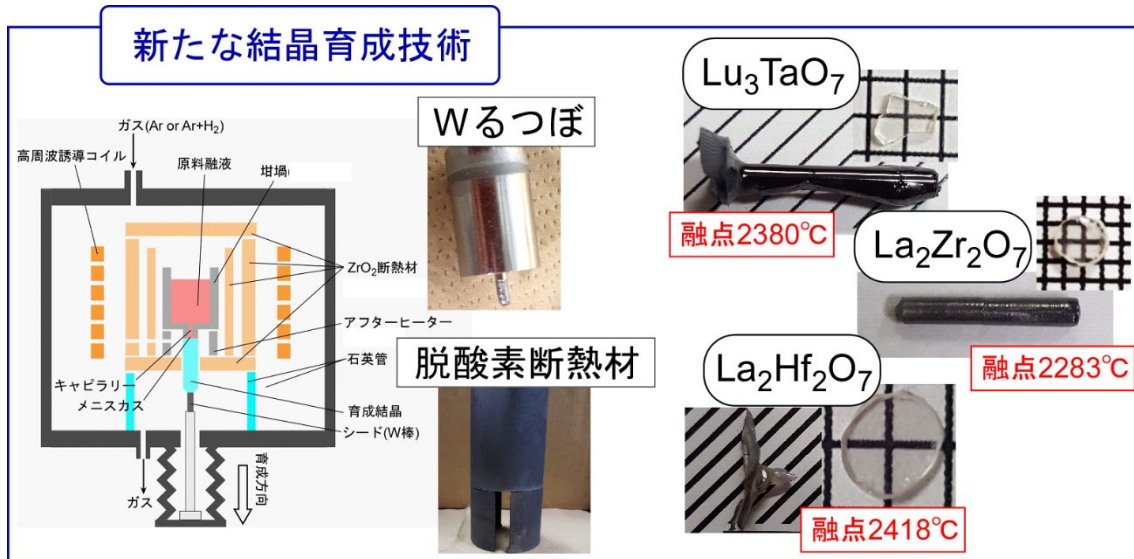


図 2. 左から順に、今回開発した W るつぼと脱酸素断熱材を用いた新たな結晶育成技術の模式図、その技術で作製した新たな単結晶材料の例。

【謝辞】

本研究は、JST A-STEP 産学共同 [育成型] (代表：横田有為、JPMJTR20T5)、JST A-STEP 産学共同 [本格型] (代表：吉川彰、JPMJTR232C)、科研費 国際共同研究強化 B (代表：横田有為、JP21KK0082) の支援を受けました。

【用語説明】

注1. シンチレータ

放射線を光に変換することが可能な光学単結晶のことです。この変換によって放射線の量や種類を検出することができますようになります。

注2. 表面弾性波 (SAW) フィルタ

特定の周波数帯域の電気信号を取り出すことが可能な圧電素子です。

注3. 脱酸素化プロセス

断熱材は高温で酸素を放出してしまう特徴があるので、あらかじめカーボン炉で断熱材を還元雰囲気下の高温で焼成して、酸素を取り除きます。これによって高温でも断熱材から酸素が放出されなくなります。このプロセスを脱酸素化プロセスと呼んでいます。

注4. チェレンコフ発光

荷電粒子が物質中の光速を超える速度で走るときに、物質が光を発する現象であり、その光は非常に高速の発光となります。物質中の光速は、屈折率が大きい材料 (=密度が大きい材料) ほど小さくなるので、高密度材料ではチェレンコフ発光が生じやすくなります。

注5. 蛍光温度計

蛍光材料をセンサとして用いた温度計のことで、特殊な環境下でも温度測定が可能なことが特徴です。蛍光材料から発生する光が、周囲の温度によって強度・寿命・波長を変化させることで、温度を計測できます。

注6. マイクロ引き下げ (μ -PD) 法

棒状の単結晶を融液から作製する結晶成長法です。底に小さな穴が開いたるつぼを使って、その穴から出てきた融液を下方向に引き下げることで単結晶が棒状に作製されます。高速に棒状結晶が作製できますので、材料探索や棒状の単結晶製造に用いられています。

注7. チョクラルスキー (Cz) 法

大きなサイズの単結晶を融液から作製する結晶成長法です。お椀状のるつぼを使って、その中の融液を上方向に引き上げることで単結晶がバルク状に作製されます。引き上げ法とも呼ばれています。高品質で大きな単結晶が得られることから、単結晶の量産製造に用いられています。

【論文情報】

タイトル : Growth of complex oxide single crystals with high melting point over 2200 °C using tungsten crucible

著者 : Yuui Yokota*, Takahiro Suda, Takahiko Horiai, Akira Yoshikawa

*責任著者 : 東北大学金属材料研究所 准教授 横田有為

掲載誌 : Scientific Reports

DOI : 10.1038/s41598-025-12535-0

URL : <https://doi.org/10.1038/s41598-025-12535-0>

【問い合わせ先】

(研究に関すること)

東北大学金属材料研究所

准教授 横田有為

TEL: 022-215-2214

Email: yui.yokota.a5@tohoku.ac.jp

(報道に関すること)

東北大学金属材料研究所

情報企画室広報班

TEL: 022-215-2144

Email: press.imr@grp.tohoku.ac.jp