

不純物添加したタンタル酸リチウムの点欠陥の存在形態

Investigation of defect structure of impurity-doped lithium tantalate

東北大金研 [○]沼田 典親、小山 千尋、野澤 純、宇田 聡

IMR Tohoku Univ.

[○]Tenshin Numata, Chihiro Koyama, Jun Nozawa, Satoshi Uda

E-mail: tenshin.numata@imr.tohoku.ac.jp

はじめに タンタル酸リチウム (LiTaO_3 :LT) やニオブ酸リチウム (LiNbO_3 :LN) は表面弾性波デバイスや光の波長変換デバイスなどに利用されている非線形光学結晶である。工業的に生産されている LT や LN は結晶育成のし易さから一致熔融組成で育成されているが、その組成は不定比組成であるため結晶中に 1 mol% オーダーの点欠陥 (空孔、アンチサイト欠陥) を含む。LT, LN において、空孔は熱伝導率の低減、アンチサイト欠陥は波長変換デバイスとして利用する際の光強度の低下など、点欠陥は種々の物性値に影響を与える。ここで、Mg や Zn などの不純物を LT, LN に添加することで光損傷を抑制するなどの効果があることが分かっているが、その際のサイト構造や詳しいメカニズムに関してはあまり理解されていない。当研究室ではこれまでに、LN に不純物を添加した際の点欠陥の存在形態を明らかにしている¹⁾。そこで本発表では、LT に不純物を添加した際の点欠陥の存在形態を、熱力学的解析と格子定数測定を行うことにより明らかにする。

実験と結果 試料は、一致熔融組成の LT に不純物 (MgO , ZnO , Co_2O_3 , Fe_2O_3 , ZrO_2 , TiO_2) を 0~7mol% 添加した焼結体を用いた。熱力学的解析はサイトの自由度²⁾から、熱力学的に存在し得ないサイト構造を排除することで、存在可能なサイト構造を下記の 2 つに絞り込んだ。

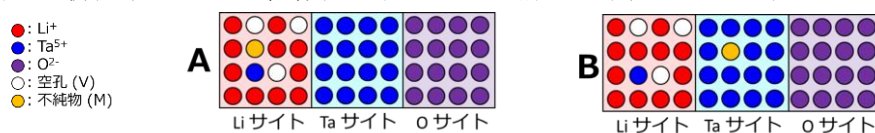


図 1 熱力学的に存在可能なサイト構造の模式図

各添加不純物に対して LT が A と B どちらの構造をとるのか、次のように求めた。まず、A と B 各構造における電荷補償と、Li, Ta 比が一定であるという式から、添加した不純物濃度に対する空孔、アンチサイトタンタルの濃度を算出した。それらの点欠陥濃度と、不純物と各サイトを構成する Li や Ta のイオン半径との差から、格子定数変化に寄与する度合いをフィッティングパラメーターで表したモデル式¹⁾を A、B 各構造について定めた。粉末 X 線解析によって格子定数を測定し、その値に対して次のような最小二乗法によるフィッティングを行った。6 種類の不純物に対して A と B 構造の 2 通りあるので全体として 2⁶通りの組み合わせがある。それらの組み合わせの中で、測定値と計算値の差の二乗和が最少の組み合わせを求め、それをサイト構造と決定した。各不純物が A 構造になるのか、B 構造になるのかを決める要因を、不純物の価数、イオン半径、電気陰性度で比較したところ、LN の場合と同様に不純物の価数とその要因であり、2 価、3 価の不純物は A 構造、4 価の不純物は B 構造になることが示された。

参考文献

- 1) C. Koyama, J. Nozawa, K. Maeda, K. Fujiwara, and S. Uda, *J. Appl. Phys.* **117**, 014102(2015)
- 2) S. Uda, "Stoichiometry of oxide crystals," in *Handbook of Crystal Growth: Fundamentals*, 2nd ed., edited by T. Nishinaga (Elsevier, 2014), Vol. IA, Chap. 4