

電場存在下でのニオブ酸リチウム結晶成長における 不純物イオンの分配挙動

Impurity partitioning during growth of lithium niobate crystal under an intrinsic electric field

○船田尚、小山千尋、野澤純、宇田聡（東北大金研）

○Takashi Funada, Chihiro Koyama, Jun Nozawa, Satoshi Uda (Tohoku Univ.)

E-mail: t.funada@imr.tohoku.ac.jp

[緒言] 融液成長における溶質や不純物の実効分配係数 k_{eff} は、BPS 理論^[1] を用いて平衡分配係数 k_0 、融液の初期濃度 C_0 、成長速度 V 、溶質の融液拡散定数 D 、拡散層の厚み δ などによって表される。しかし、実際の結晶育成においては温度勾配に起因した内部電場が界面に存在し、溶質の輸送過程に影響を与える。そこで Pfann らは BPS 理論において成長速度 V の代わりに電場による溶質の移動を考慮した成長速度 V_E を用いるという理論を提案した^[2]。しかし、Uda らが行った Mn を添加したニオブ酸リチウム（以下 LN）結晶における溶質 Mn の濃度分布は、Pfann らの理論では説明できない結果を示しており、 k_0 の代わりに電場の影響を考慮した新たな平衡分配係数 k_{E0} を導入する必要があることを提案した^{[3][4]}。本研究では、電場存在下での不純物分配挙動を明らかにするために 1 V/cm 程度の強い温度勾配が固液界面に発生するマイクロ引き下げ法を用いて LN を結晶成長させた。ここで濃度を変えて添加した不純物の k_{eff} を測定することで、電場と不純物分配に関する詳細な議論を行う。

[実験方法] コングルエント組成 ($\text{Li}_2\text{O} = 48.38 \text{ mol}\%$) の LN (c-LN) に各種不純物を 0–10 mol% 添加し、焼結したものを融液原料とした。るつぼに原料をチャージし、マイクロ引き下げ法により LN 単結晶の育成を行った。育成結晶は研磨した後に EPMA で組成分析を行い、結晶中の不純物濃度を求めた。

[結果および考察] 一例として、原料融液の MnO_2 量と Mn の k_{eff} の関係を Fig. 1 に示す。融点測定の結果より、Fig. 1 中の水色の領域は $k_0 > 1$ 、黄色の領域は $k_0 < 1$ を示している。2000 °C/cm という強い温度勾配存在下で結晶育成を行ったところ、 $k_0 < 1$ にもかかわらず、 $k_{\text{eff}} > 1$ となる組成が発見された。この際、内部電場は融液中の Mn イオンを界面から遠ざける方向に動いている。それにもかかわらず、 $k_0 < 1$ である Mn の k_{eff} が 1 よりも大きくなるという結果は、従来の BPS 理論や Pfann らの理論では説明できず、電場存在下における k_{E0} の導入を提案する Uda らの理論を支持している。電場存在下での溶質分配、電場存在下における k_{eff} の成長速度依存性について議論する。

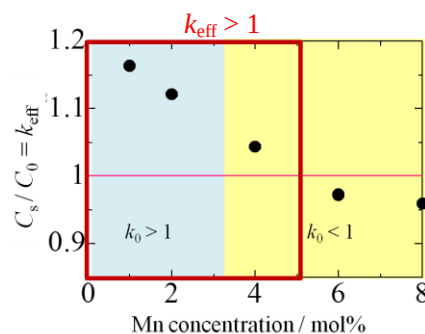


Fig. 1 Relation between Mn concentration in bulk LN melt and effective distribution coefficient of Mn.

[1] J.A. Burton et al., *J. Chem. Phys.*, **21** (1953) 1987.

[2] W. G. Pfann, R. S. Wagner, *Transaction of the metallurgical society of aime*, **224** (1962) 1139.

[3] S. Uda et al., *J. Cryst. Growth*, **179** (1997) 567.

[4] S. Uda et al., *J. Cryst. Growth*, **312** (2010) 3650.