

電子レンジを用いたAgGaS₂多結晶の合成

Synthesis of AgGaS₂ polycrystals by microwave process using a domestic microwave oven

○須崎 昌己 (大阪府立大学高専)

○Masami Susaki (Osaka Pref. Univ. College of Technology)

susaki@osaka-pct.ac.jp

【はじめに】 カルコパイライト型構造を有する非線形光学結晶 AgGaS₂は、透過波長域が500nm-13μmと広く、Ng:YAGレーザによる励起でOPOが実用化されている。AgGaS₂のバルク結晶成長には、Ag₂S-Ga₂S₃擬二元系状態図[1]に基づいて化学量論組成融液(Ag₂S比50mol%)からの垂直ブリッジマン成長法[2]、垂直温度勾配凝固法[3]が適用され、赤外域の透過率として60%を超える値が報告されている。しかしながら、半導体結晶としての可視バンド端近傍のPLスペクトルには自由励起子遷移の明瞭な構造はいまだ報告されていない、構成元素の過不足に起因する欠陥準位とPLの関係についての知見も少なく、高品質結晶成長に向けた課題は山積している。

本研究では、Ag₂S-Ga₂S₃系状態図よりAg₂S-richな領域に存在するAg₉GaS₆(Ag₂S比90mol%)-AgGaS₂共晶反応領域での単結晶育成を目指して予備的実験を開始した。本報告はその第一段階として、①コングルエント組成(Ag₂S比49mol%)、②化学量論組成、③Ag₂S比55mol%および④60mol%の各組成比について、構成元素の混合粉末を原料に用いマイクロ波加熱を利用してAgGaS₂多結晶を合成し、粉末XRD回折および低温PL観測により評価した結果を示す。

【合成方法および評価結果】 上記①-④の組成比に基づいて秤量した元素粉末Ag(4N)、Ga(5N)およびS(5N)を混合したのち石英アンブル内に真空封入した。混合元素粉末は全質量約1gとし、封入時の真空度は 2×10^{-3} Paとした。封入を終えた石英アンブルは、アルミナ坩堝の側壁に斜めに立てかけ電子レンジのターンテーブルのほぼ中央に置きマイクロ波を直接照射した。これにより金属元素が発熱を起こしS粉末を介した合成反応が促進される。このあと、石英アンブルをC-Al₂O₃粉末ヒーター中に埋め込みマイクロ波を照射し、Fig.1に示したPID温度制御のもとAgGaS₂合成を試みた。Fig.2に、例として④Ag₂S比60mol%で合成した多結晶の外観写真を示す。黒色Ag₆GaS₉に覆われた表面に黄色AgGaS₂結晶粒が広範囲に分布している。Ag₂S比を減じ組成比を①コングルエント組成に移すと全体が黄色微結晶から成る多結晶体であることが確認された。このような多結晶体の相変化はXRD回折実験により共晶反応の特徴として捉えることができた。Fig.3に、①-④の組成比で合成したAgGaS₂の低温PLスペクトルを示す。Ag₂S比60mol%の共晶反応領域での合成により鋭い励起子発光の構造が観測された。詳細は講演会にて議論する。

参考文献

- [1]R.S. Feigelson and R.K. Route: Opt. Eng. 26(2)(1987)113.
- [2]Baojun Chen et al.: J. Crystal Growth 292(2006)490.
- [3]E. Niwa and K. Masumoto: J. Crystal Growth 192(1998)354.

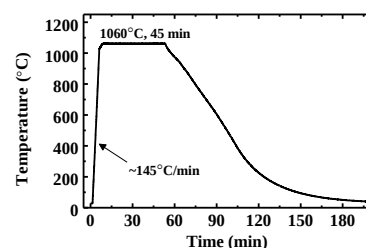


Fig.1 Temperature profile for microwave assisted synthesis of AgGaS₂ polycrystals.



Fig.2 View of the MW-synthesized bulk polycrystal for 60mol% Ag₂S.

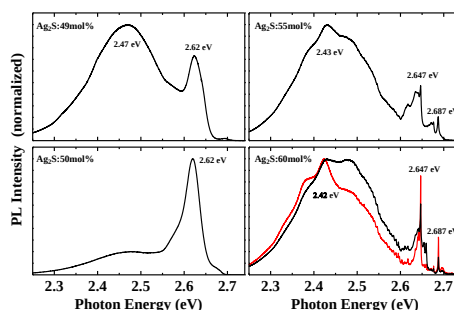


Fig.3 Ag₂S mole fraction dependence of PL spectra at 9K of AgGaS₂ polycrystals.