

コングルエント・ニオブ酸リチウム単結晶成長における酸素挙動

Oxygen Partitioning during Growth of Congruent Lithium Niobate

○宇田 聡 (東北大金研)

○Satoshi Uda (IMR, Tohoku Univ.)

E-mail: uda@imr.tohoku.ac.jp

コングルエントのニオブ酸リチウム結晶では成長時に偏析がおきないと考えられている。これは酸素と Nb および酸素と Li の量比がストイキオメトリーの関係にある擬 2 成分系では、液相線と固相線が交わるコングルエント点の自由度は 0 であるからである。しかしながら融液中に存在するイオン種には偏析が見られ、このイオン種の偏析は結晶化起電力として観察される (図 1)¹⁾。結晶化起電力は成長速度などで変化するので、各イオン種の相対量が変化するために少なくとも自由度 1 が存在する。すなわち、酸化物結晶の成長は酸素を独立成分とする 3 成分系で扱う必要がある²⁾。この時、自由度が増えるので、界面融液では酸素と Nb や Li の間で必ずしもストイキオメトリーの関係が成り立たないことがわかる。しかしながら擬 2 成分系により融液-固相間での Li/Nb 比が等しいことは保たれていることに注意する必要がある (図 2)³⁾。酸素は独立成分なので結晶成長中では界面融液に酸素の過不足が存在している可能性がある。一方、これらのイオン種を含む融液種は、固有の分配係数を持って結晶化していく。これらの分配係数がユニークに決定されるには、「結晶化時には酸素と金属元素の間でストイキオメトリーが成り立つ、あるいは、結晶化時に電荷中性が成立する」という制約が加わり、結晶化に伴い自由度は 1 から 0 になり酸素欠陥の無い結晶ができる。すなわち、コングルエントのニオブ酸リチウム結晶成長においては界面近傍の融液中である程度の酸素の過不足が生じて、十分な量を持つバルク融液と界面融液との間で迅速なコミュニケーション (物質輸送) があれば、擬 2 成分系で表せるコングルエント結晶が定常状態成長で得られると考えられる。

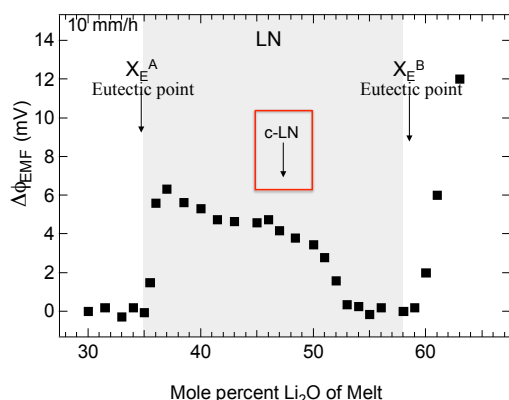


図 1 ニオブ酸リチウムの結晶化起電力¹⁾

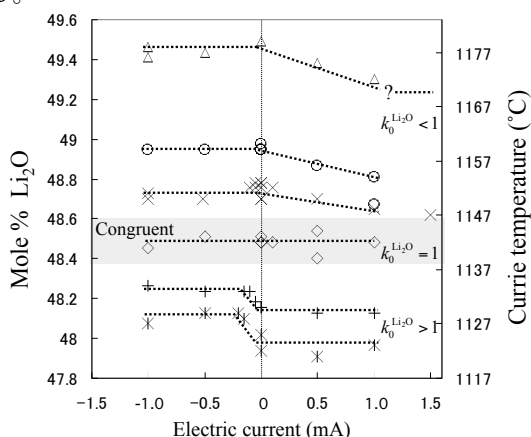


図 2 電流印加により界面融液の Li イオン量を変化させた時のニオブ酸リチウムの組成変動³⁾

1) S. Koh, S. Uda, M. Nishida, X. Huang, *J. Cryst. Growth*, **297** (2006) 247.

2) S. Uda, Chapter 4 in *Handbook of Crystal Growth*, Vol. 1A 2nd Ed. (Elsevier, 2014), T. Nishinaga Ed.

3) Y. Azuma, S. Uda, *J. Crystal Growth* **306** (2007) 217.