

タンタル酸ニオブ酸カリウム (KTN) 結晶成長における初晶の検討

Investigation on primary phases in potassium tantalate niobate (KTN) crystal growth

°太子敏則¹, 伊藤幸介¹, 細川和也¹, 干川圭吾¹, 小島孝広², 小松貴幸³ (1.信大工, 2. オキサイド, 3. NTT-AT)

°T. Taishi¹, K. Ito¹, K. Hosokawa¹, K. Hoshikawa¹, T. Kojima², T. Komatsu³ (1. Shinshu Univ., 2. Oxide, 3. NTT-AT)

E-mail: taishi@shinshu-u.ac.jp

【はじめに】タンタル酸ニオブ酸カリウム (KTN: $\text{KTa}_x\text{Nb}_{1-x}\text{O}_3$) 単結晶は、電界により屈折率が変化する巨大なカー効果を有しており、光偏向素子への応用が期待されている¹⁾。一般的に、分解熔融酸化物である KTN の単結晶は TSSG 法で育成される¹⁾が、我々は垂直ブリッジマン (VB) 法により、直径 20mm の KTN 単結晶育成に成功した²⁾。本研究では、一方向凝固による KTN 結晶育成での初期固化部に生じる初晶と結晶中の異相について検討した。

【実験方法】原料は、 K_2CO_3 、 Ta_2O_5 、 Nb_2O_5 粉末を $\text{K} : (\text{Ta} + \text{Nb}) = 50 : 50$ もしくは $\text{K} : (\text{Ta} + \text{Nb}) = 53 : 47$ となるように混合し、円柱状に成型後に焼結した。これを白金るつぼに入れて VB 炉内にて溶解し、1mm/h でるつぼを引き下げて一方向凝固を行った。育成した結晶を坩堝から取り出し、初晶および結晶中の異相を XRD により評価した。

【結果と考察】図 1 は、一方向凝固で得られた結晶の初晶と原料組成をまとめたものである。K=53mol%とした場合は、すべての Ta 組成において KTN が晶出した。一方、K=50mol%の場合は、Ta 組成が高くなるにつれて生じる初晶が $\text{K}_4\text{Nb}_6\text{O}_{17}$ から $\text{K}_6\text{Ta}_{10.8}\text{O}_{30}$ に変化した。Ta+Nb=25:75 の場合のみ初晶が KTN ($\text{KTa}_{0.57}\text{Nb}_{0.43}\text{O}_3$) となった。そしてこの結晶は、最終固化部に向かって KTN から $\text{K}_4\text{Nb}_6\text{O}_{17}$ 、 KNbO_3 と相が変化することがわかった。これらの現象から、結晶育成中の融液組成の変化によって KTN と $\text{K}_4\text{Nb}_6\text{O}_{17}$ のギブスの自由エネルギーの大小関係が変わっていることが考えられる。K=50mol%、Ta:Nb=25:75 の融液において、KTN のギブスの自由エネルギーが他の異相に比べて小さいものの、結晶育成によって融液中の Ta:Nb 組成は KTaO_3 - KNbO_3 の全率固溶系状態図⁶⁾に沿って Nb-rich に変化していき、それによって KTN よりも $\text{K}_4\text{Nb}_6\text{O}_{17}$ のギブスの自由エネルギーが小さくなる。しかしこの異相の晶出により融液組成が K-poor に変化し、KTN の自由エネルギーが下がって最終的に KNbO_3 相が晶出すると考えると、一連の現象を説明できる。本研究の一部は、独立行政法人科学技術振興機構 研究成果発展事業 A-STEP における成果である。

【参考文献】

- 1) T. Imai et al., NTT Technical Review 5 (2007) 1-8.
- 2) 細川和也他, 第 43 回結晶成長国内会議, 07aA05.他
- 3) D. Rytz et al., J. Cryst. Growth **59** (1982) 468-484.

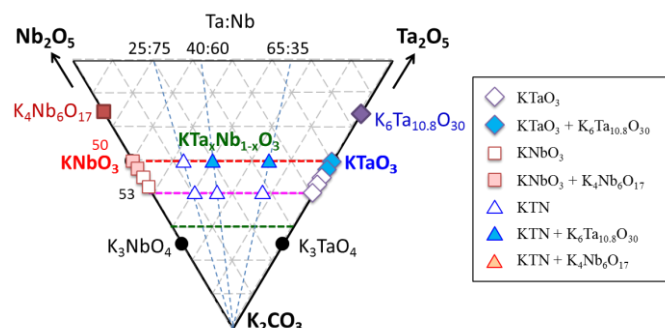


図 1 一方向凝固における初晶と原料組成の関係