

ニオブ酸リチウム結晶成長における Li サイトおよび Nb サイトへの Mg の分配

Partitioning of Mg into Li Site and Nb Site in LiNbO₃ Crystal during Growth

東北大金研¹ ○宇田 聡¹, (M2)堀江勇介¹

IMR, Tohoku Univ.¹, °Satoshi Uda¹, Yusuke Horie¹

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

融液からの結晶成長において複数の結晶サイトに不純物が分配されることが良く観察される。不純物の化学ポテンシャルは、融液、結晶サイト1、結晶サイト2、・・・間で等しいので、もし、不純物の平衡分配係数、 k_0 がサイト間で異なるなら、不純物のサイトへの入りにくさを表す mixing エンタルピー、 ΔH_{mix} が異なる。そこでコングルエントのニオブ酸リチウム (c-LN) に Mg を添加した融液から LN 結晶を育成し、Mg の融液からの Li および Nb のサイトへの分配挙動を観察した。

固相反応で Mg を LN にドーピングすると Mg はまず Li サイトに入る。Mg 量の増加に伴い Li サイト中の Nb は減少し、Li サイトから消滅すると Mg は Nb サイトにも入り始める。この時、LN 結晶の格子定数やラマン分光の振動ピークは不連続に変化し、結晶構造に不連続変化が見られる。なお、結晶サイトの自由度²からは Mg は最初に Nb サイトに入っても良いが、現実異なる。

上記は、固相一相のみの場合の Mg の挙動であるので、融液と結晶が共存する結晶成長時の Mg の結晶サイトへの分配を検討した。c-LN に 0~7 mol % の MgO を添加した融液から LN 結晶を μ -PD 法で 5 mm/h の速度で育成した。定常状態を急冷し、固液界面近傍の Mg の分布から Mg の平衡分配係数、 k_{E0} を求めた。図 1 に示すようにトータルの k_{E0} の MgO 濃度による変化は 3.7 mol% で不

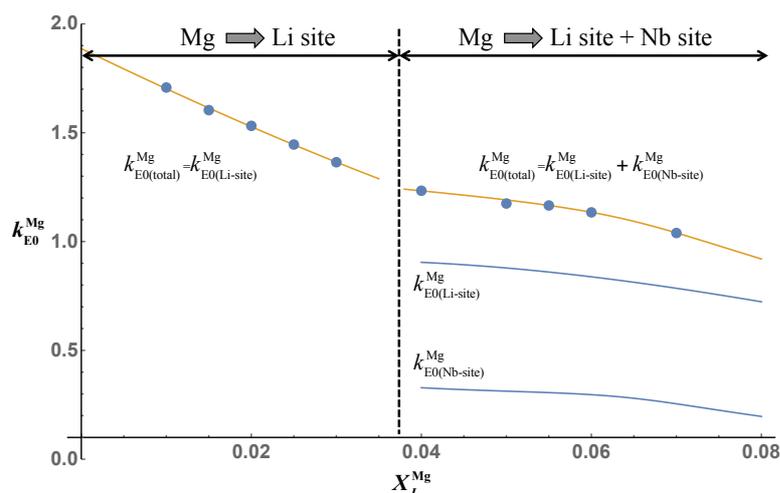


図 1 融液 MgO 濃度による Mg の平衡分配係数の変化

連続となる。これは Mg の融液からの分配が Li サイトに加え、Nb サイトにも起こり始めることに対応する。融液および Li サイトと Nb サイトの Mg の化学ポテンシャルに正則溶液モデルを適用し、 k_{E0} の融液 Mg 量に対する変化を解析すると Mg が Li サイトに入ることに伴う ΔH_{mix} は、Nb サイトへ入るときに比数倍小さく、Mg が最初に入るサイトは Li サイトが適当であることが示される。

1. C. Koyama, J. Nozawa, K. Maeda, K. Fujiwara, and S. Uda, *J. Appl. Phys.* **117**, 014102 (2015).
2. S. Uda, Ch. 4 in *Handbook of Crystal Growth*, Nishinaga, Rudolph, Kuech ed. Elsevier (2014).