

研究論文

六ニオブ酸カリウム結晶のフラックス成長のその場観察

森脇聖貴*, †林 文隆*, 山田哲也***, †手嶋勝弥***

In-situ Observation of Flux Growth of Potassium Hexaniobate Crystals

by

Masaki MORIWAKI*, †Fumitaka HAYASHI*, Tetsuya YAMADA*** and †Katsuya TESHIMA***

(Received Jan. 27, 2023; Accepted Feb. 28, 2023)

Abstract

Process and measurement informatics are one rising field of materials science because data-oriented approaches with experimental data bring powerful information on efficient preparation of functional crystalline materials. In this study, we report in situ observation of growth of potassium hexaniobate $K_4Nb_6O_{17}$ (KNO) crystals from a K_2MoO_4 flux using visible and near-infrared light cameras and quenching technique. The grown KNO crystals were characterized by X-ray diffraction and microscopic analyses. Movie data and experiment characterization results indicated the formation of KNO crystals after reaching 1100 °C, followed by being dissolved and precipitated during the holding at 1100 °C and cooling process.

Keywords: Process Informatics, Measurement Informatics, In-situ Observation, Flux Growth, Niobate Crystals

1. 緒言

近年、高度なシミュレーション技術や情報科学を駆使した新たな材料研究が脚光を浴びている¹⁾。特に、生成物やプロセス内部の状態をリアルタイムに観測する計測インフォマティクスは、先端計測技術により化学反応を記述する情報を説明変数として統合・融合的に活用されている²⁾。フラックス法は溶液から結晶を育成する手法の一種(溶液法)であり、フラックス(溶媒)のなかで溶質を結晶化させる。目的結晶種に応じてさまざまな塩や金属をフラックスとして用い、フラックスの蒸発や冷却による過飽和度の変化を駆動力として幅広い温度域で高品質な結晶を育成することができる³⁾。しかし、その結晶育成では多数の物理化学的現象

の影響を受けるため、研究者の経験や勘に頼ることが多い⁴⁾。本研究では、計測インフォマティクスに基づくフラックス結晶育成を目指して、六ニオブ酸カリウム $K_4Nb_6O_{17}$ (KNO)⁵⁾を題材とし、結晶育成場の基礎的情報を収集した。具体的には、結晶成長過程を捉えた可視・近赤外線映像を記録し、ex situ 実験結果と組み合わせて結晶成長機構を考察した。

2. 実験

KNO 結晶育成の原料には、溶質として炭酸カリウム K_2CO_3 (特級試薬, 和光純薬工業)と酸化ニオブ Nb_2O_5 (特級試薬, 和光純薬工業)を、フラックスとしてモリブデン酸カリウム K_2MoO_4 (特級試薬, 和光純薬工業)をそれぞれ用いた。溶質濃度が 5 mol%となるように、 K_2CO_3 , Nb_2O_5 および K_2MoO_4 をそれぞれ 1.382 g, 3.987 g および 22.623 g 秤量し、10 分間乾式混合した。その後、乾式混合した試薬をるつぽに充填し、電気炉内で加熱した。昇温速度、保持温度および保持時間は、それぞれ 300~500 °C·h⁻¹, 1100 °C および 0~10 h である。急冷法では白金るつぽを用い、所定温度で取り出したのち水に浸漬した。一方、それ以外の冷却(徐冷

令和 5 年 1 月 27 日受付

* 信州大学大学院総合理工学研究科：長野県長野市若里 4-17-1
TEL 026-269-5556 FAX 026-269-5550
fhayash@shinshu-u.ac.jp; teshima@shinshu-u.ac.jp
Graduate School of Science and Technology, Shinshu University: 4-17-1 Wakasato, Nagano-shi, Nagano 380-8553, Japan

** 信州大学 先鋭材料研究所：同上
Research Initiative for Supra-Materials, Shinshu University:
Same as above

† :連絡先/Corresponding author