

Morphology and structures of ultrafine particles produced by reactions between Mg and SiO particles

小嶋 雄樹[1], 堀内 千尋[1]

Yuuki Ojima[1], Chihiro Kaito[2]

[1] 立命大・理工

[1] Nanophysics in Fro., Ritsumeikan Univ, [2] Phy., Ritsumeikan Univ

1. はじめに

SiOの凝縮物は非晶質構造であり、高分解能電子顕微鏡法を主にして構造を解析し、加熱による構造変化と赤外吸収スペクトルの相関を明らかにしてきた。また、MgやFeとSiOの混合膜についても構造と吸収に関する実験を行ってきた。今回は新たに微粒子生成実験により、Mg₂SiO₄の生成条件を明らかにする。

2. 実験方法

Mg-SiO膜での反応過程との違いを明らかにするために、粒子反応生成物との違いを調べた。Mgは蒸気圧が高く、600程度で容易に蒸発する。蒸発源の熱源にはタングステンのボートを用いた。並列ボートを用いた場合、SiO側のボートにだけ電流を流しSiO粉末を直接加熱し蒸発させ、Mg粉末はSiO側のボートの輻射熱と対流を利用して間接的に加熱し蒸発させて蒸気圧コントロールを行った。並列ボートにより、Mg微粒子とSiO微粒子の反応が起こり微粒子が生成する。2つのボートを並列にすることでMgとSiOの割合を変化させて微粒子を作製した。また、2つのボートの結果を分析して、3つのボートにする(SiO-Mg-SiOの順に並べる)ことにより優先的にMg₂SiO₄を生成させることができることを示す。さらに、Mg, SiO混合粉末をボート1つで蒸発させて作製した微粒子についての実験結果と比較を行った。

3. 実験結果と議論

3.1 ボート1つによる実験

Mg, SiO混合粉末をボート1つで蒸発させて作製した微粒子はSi結晶の多結晶、あるいは微結晶とアモルファス相が生成した。エネルギー分散型X線分光器(EDX)による測定でMg原子の存在が確認できており、Mg原子はアモルファス相中に存在していることが分かる。また、EDXによりこの微粒子はSiO richで生成したことが分かった。ボート1つで実験を行うことで、SiO粉末を蒸発させるのにボートの温度を1000以上にするため、600程度で蒸発する蒸気圧の高いMgは温度分布から、SiO微粒子とMg蒸気の反応が支配的に起こっていると考えられる。

3.2 並列ボートによる実験(ボート2つ)

2つのボートを並列にして微粒子を作製することで、様々な形態・構造をした微粒子が生成した。このとき生成した微粒子にはMg₂Si, MgO, Mg₂SiO₄, Siなどの結晶が生成しており、ボート1つで行った実験とは異なるものができた。2つのボートでMg粉末とSiO粉末を別々の場所から同時に蒸発させることで、Mg richの場所とSiO richの場所ができるためである。この場合、Mg rich側ではMgO結晶の微結晶からなる針状結晶が成長し、その先には球状のMg₂Si単結晶が生成した。このMg₂Si単結晶の球状部分の表面には、MgO微結晶の存在が確認できた。この微粒子は共晶反応をともなってMg+Siの合金の液相が生成する。そして、微粒子の表面が早く冷えることでMgとSiO₂が反応しMgO微結晶が大量に生成する。微粒子表面で生成したMgOの微結晶が結晶方位を揃えて繋がることで柱状のMgO結晶が生成すると考えられる。微粒子表面に固体のMgO微結晶が生成することで、潜熱と酸化熱が微粒子の内部の合金部分に伝わり、表面に比べてゆっくり冷えることで、Mg₂Si!

結晶は単結晶になったと考えられる。また、SiO rich側ではMg₂SiO₄が生成しやすいことを見いだした。

3.3 並列ボートによる実験(ボート3つ)

SiO-Mg-SiOとボートを3つ並列することで、Mg₂SiO₄結晶とSi結晶でできた微粒子のみを作製することができた。SiO richであるだけでは4.1で示した微粒子が生成すると考えられる。並列ボートを用いることでMg粒子-SiO粒子の反応が起こり、MgベースにしてSiOが増加することでMg₂SiO₄結晶が生成すると考えられる。Mg微粒子とSi原子の反応が起こりMg₂Si液相ができ、SiO中のSiO₂相と反応することでMg₂SiO₄結晶が生成すると考えられる。

3.2-3.3の実験による微粒子のスペクトルをみると、非常によく類似しており構造との関係を明らかにする。