

Ce:(Y,Lu)AlO₃ 混晶化シンチレータにおける Lu 原子局所構造の 蛍光 X 線ホログラフィー解析

X-ray fluorescence holography analysis of local structure around Lu atoms in Ce: (Y, Lu)AlO₃:Ce mixed crystalline scintillators

北浦 守^{1,*}, Artoni Kevin Ang², 木村耕治², 八方直久³, 林 好一², 鎌田 圭⁴,
山根久典⁵, 渡邊真太⁷, 大西彰正¹

¹山形大学, ²名古屋工業大学, ³広島市立大学, ⁴東北大学 NICHe,

⁵東北大学 IMRAM, ⁶東京工業大学 IIR

Mamoru Kitaura^{1,*}, Artoni Kevin Ang², Koji Kimura², Naohisa Happo³, Kouichi Hayashi²,
Kei Kamada⁴, Hisanori Yamane⁵, Shinta Watanabe⁶, Akimasa Ohnishi¹

¹Yamagata University, ²Nagoya Institute of Technology, ³Hiroshima City University,

⁴Tohoku University NICHe, ⁵Tohoku University IMRAM, ⁶Tokyo Institute of Technology IIR

1 はじめに

酸化物混晶において結晶学的に同じ格子位置を異なる原子が占める場合、その位置揺らぎが互いに異なることを蛍光 X 線ホログラフィー[1]によって見出してきた[2]。このような構造的な特徴が他の酸化物混晶でもみられるかどうかを継続して蛍光 X 線ホログラフィーで調べている。このレポートでは、混晶化シンチレータの一種である (Y, Lu)AlO₃:Ce において Lu 原子の局所構造を調べたので、その結果の一部を報告する。

2 実験

蛍光 X 線ホログラフィーの測定に用いた試料の組成は Y_{0.89}Lu_{0.1}Ce_{0.01}AlO₃ 混晶であった。Lu-L₃吸収端を超えるエネルギーを持つ X 線を試料の(100)面にあてて試料表面から放出された Lu-L_α蛍光をトロイダル型分光結晶で単色化して APD 検出器で検出した。測定時には、試料の極角θを 0-75°の範囲で 1°ずつ変えて、方位角φを 0-360°の範囲で 0.25°ずつ変えて散乱 X 線の強度分布を測定した。X 線エネルギーを 9.5 keV から 13 keV の範囲で 0.5 keV ずつ変えて同じ測定を行った。プログラム 3d-air-image[3]を使って測定データからホログラム振動を抽出しエミッタ原子周囲の点対称性を考慮して全方位にわたって完球し 8 枚のホログラムを得た。測定時の試料温度は 100 K であった。

Lu 原子周囲に分布する原子の位置揺らぎを見積もるために、100K で単結晶 X 線回折を行い結晶構造パラメータを事前に決定した。そのパラメータを使ってシミュレーションを行い再生原子像を得た。シミュレーションでは Y 原子と Lu 原子が同じ格子位置に均一に分布することを仮定した。また、X 線のエネルギーによって吸収係数が異なるので、その影

響も考慮した。さらに、実験結果と同じθとφの範囲内のシミュレーションデータからホログラム振動を抽出し実験結果と同じ条件で解析した。実験とシミュレーションから得られた再生格子像の強度を比較して特徴的な違いがみられないかを探った。

3 結果および考察

図 1 に 9.5keV の X 線エネルギーで得た Lu-L_αホログラムを示す。図 1(a)が実験から決定したホログラムであり図 1(b)がシミュレーションで決定したホログラムである。実験結果にはシミュレーション結果と同じように定在波線が観測される。このことは、実験に用いた試料の結晶性がよいことを示す。

図 2 にはエミッタ原子である Lu 原子から<100>方向に 2.67Å だけ離れた格子面の再生原子像を示す。図 1(a)が実験から決定した再生原子像であり図 1(b)がシミュレーションで決定した再生原子像である。最大の像強度は z=0 の格子面に存在したのでその強

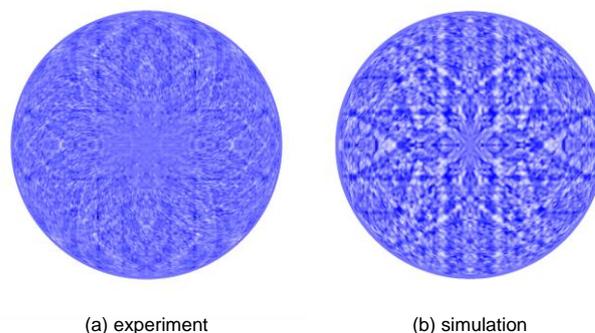


図 1: 実験(a)とシミュレーション(b)から決定した Y_{0.89}Lu_{0.1}Ce_{0.01}AlO₃ 混晶(100)面の Lu-L_α蛍光 X 線ホログラム。X 線のエネルギーは 9.5 keV に設定した。

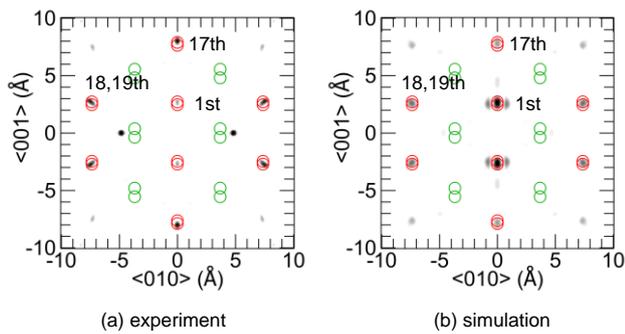


図 2: 実験(a)とシミュレーション(b)から決定した $\text{Y}_{0.89}\text{Lu}_{0.1}\text{Ce}_{0.01}\text{AlO}_3$ 混晶(100)面の Lu 原子周囲の再生原子像. 中心には Lu 原子が位置する. 単結晶 X 線回折から決定した Y(Lu)原子と酸素原子の位置をそれぞれ青丸と赤丸で示した.

度が 1 になるように規格化した。赤色と緑色の丸はそれぞれ単結晶 X 線回折によって決められた Y(Lu) 原子の位置と酸素原子の位置を示す。なお、丸の大きさ自体に意味はない。

再生原子像は Y(Lu)原子の位置に見られるが、酸素原子の位置には見られない。一般に像強度は原子番号と原子間距離に依存するので、軽元素である酸素原子の再生原子像は Y(Lu)のそれと比べて弱い。また、酸素原子の等方性原子変位パラメータは Y(Lu)のそれよりも 1.4 倍程度大きい。そのため、酸素原子の位置には再生原子像が観測されないと考えられる。第一近接の Y(Lu)原子位置の像強度を周辺のそれを比較すると実験では著しく弱く、シミュレーションでは明らかに強い。シミュレーションでは等方的な位置ゆらぎが考慮されているので、実際の結晶では付加的な位置ゆらぎが存在することを示唆する。エミッタ原子近傍では動径方向の原子変位が抑えられて角度方向の原子変位が許される。この原子変位の制約が第一近接に付加的な位置ゆらぎが働いているようにみえる原因であろう。実際に、似たような結果は半導体混晶でも報告されており[4]、酸化物混晶でも十分に起こりうる。

4 まとめ

本研究では、 $\text{Y}_{0.89}\text{Lu}_{0.1}\text{Ce}_{0.01}\text{AlO}_3$ 混晶において Lu 原子周囲の局所構造を Lu-L α 蛍光 X 線ホログラフィーによって調べた。実験結果の解析結果から Lu 原子の第一近接 Y(Lu)原子の再生原子像は著しく弱いことが判明した。このような結果は、等方性原子変位パラメータを考慮したシミュレーションの結果には見られなかった。Lu 原子近傍には、例えば角度方向への位置ゆらぎが生じていると考えられる。現在は、Lu と同じ結晶位置を占める Y 原子や Ce 原子でも同じ結果がえらえるかどうか、調べている最中である。

混晶化シンチレータでは発光収量が増加することが報告されており[5]、この問題を構造論的観点から調べることに意義があると思われる。

参考文献

- [1] K. Hayashi *et al.*, J. Appl. Phys: Condens. Matter **24**, 093201 (2012).
- [2] M. Kitaura *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **58**, 120602 (2019).
- [3] <https://ja.osdn.net/projects/tmcoca/releases/p14436>.
- [4] S. Hosokawa *et al.*, Phys. Rev. B **87**, 094104 (2013).
- [5] A. V. Gektin *et al.*: IEEE Trans. Nucl. Sci. **61**, 262 (2014).

* kitaura@sci.kj.yamagata-u.ac