

Lu₂SiO₅ 単結晶の方位測定 Measurement of orientation of Lu₂SiO₅ single crystal

八木 康洋, 小林 栄司
Yasuhiro Yagi, Eiji Kobayashi

日立化成工業(株)
Hitachi Chemical Co., Ltd.

医療用シンチレータ材料である Lu₂SiO₅ 単結晶の方位測定を行った。SPring-8 の指向性が高い X 線を用いる事によりラボ系実験では得る事のできない高精度の測定データを取得する事ができた。SPring-8 の実験結果をラボ系の測定に生かし、現在、ラボ内の実験のみで Lu₂SiO₅ 単結晶の方位確認を行う当社独自の方法論を確立しようと試みている。

キーワード： 単結晶、方位測定、 ϕ スキャン、 ω スキャン

背景と研究目的：

結晶構造の異方性に起因して機械的、光学的、電気的な性質が異なる事を積極的に利用した例は水晶振動子等に見られる。このような単結晶材料の品質安定のためには、結晶を一定方向で切り出す必要があり、単結晶の方位を正確に知る事は重要である。当社では医療用シンチレータ材料として Ln₂SiO₅ (Ln は希土類) 単結晶を製造しており、安定した歩留を確保するために結晶引き上げの方位を確認する方法論を確立する事が必要である。Ln₂SiO₅ は Ln のイオン半径に応じて 2 種類の結晶構造を取り、いずれも単斜晶に属する[1,2]。単結晶の方位を確認する手段としてラウエ法が一般的であるが[3]、Ln₂SiO₅ のように解析が複雑になる材料には不向きである。我々は多軸回折計を用い、3 本のピークから結晶方位を求める方法[4]を採用した。

当社は多軸回折計として(株)リガク製の薄膜用 X 線回折装置 ATX-G を保有している。本装置は人工多層膜を用いて平行ビームを作り出す機構を備えており、 2θ 方向、 ω 方向には平行性の高いビームを利用する事ができる。その一方で ϕ 方向には発散したビームを検出する事になり、ラボ系の装置で 2θ , ω , ϕ の全ての走査において精度の高いデータを得る事は困難である。そこで、モデル試料として Lu₂SiO₅ 単結晶を作製し、指向性の高い SPring-8 の放射光を利用してその高精度の方位測定の結果を取得、ラボ系の測定にフィードバックする事で、当社独自の Lu₂SiO₅ 単結晶方位確認の方法論を確立する事を目的とした。

実験：

チョクラルススキ法により育成した Lu₂SiO₅ 単結晶を(11 $\bar{1}$)面が出るように $30 \times 30 \times 5 \text{ mm}^3$ の板状に切断し、モデル試料とした。試料の一部を粉碎し、 $\phi 0.1 \text{ mm}$ のガラスキャピラリーに詰めてビームライン BL19B2 にて粉末回折測定を行った。粉末回折測定に用いた X 線の波長は 0.5 \AA である。次いで X 線の波長を 1.24 \AA に設定し、同じビームラインにある Huber 製多軸回折計を用いて板状試料の方位測定を行った。

同じ試料の測定をラボ系薄膜用 X 線回折装置 ATX-G でも行い、SPring-8 の結果と比較した。ラボ系の実験では X 線として Cu K α 1 線を利用した。

結果および考察：

粉末回折測定の結果を図 1 に示す。Le Bail 法により格子定数を計算したところ、 $a = 14.27 \text{ \AA}$, $b = 6.65 \text{ \AA}$, $c = 12.73 \text{ \AA}$, $\beta = 135.4^\circ$ であった。文献[2]では Y₂SiO₅ (Lu₂SiO₅ も同じ結晶構造になる) の空間群が $B2/b$ ($B2/n$ の誤りであろう) であるとしてその結晶構造を報告しているが、本報告では同じ International Tables[5]の No. 15 に属する $C2/c$ で結晶構造を表記している。方位測定においては(22 $\bar{2}$)面、(75 $\bar{6}$)面、(57 $\bar{4}$)面の 2θ , ω , ϕ 測定を行い、格子定数の値を用いて方位の計算をした。結果を表 1 に示す。図 2 と図 3 にそれぞれシンクロトロン放射光を用いた(22 $\bar{2}$)面の ϕ スキャンの結果と ATX-G における同面、同スキャンの結果を示す。ピークの広がりを比較すると図 2 では半値幅が 1.97° で

あるのに対し、図3では23.3°である。すなわち放射光を用いた時の方がピークの幅が狭くなっており、ラボ系の発散光の検出に比べて、指向性の高いシンクロトン放射光を利用した場合の優位性を確認する事ができる。同じ事が(75 $\bar{6}$)面、(57 $\bar{4}$)面の ϕ スキャンでも確認され、本課題実験においてラボ系の実験では得られない精度の高いデータを取得する事ができた。

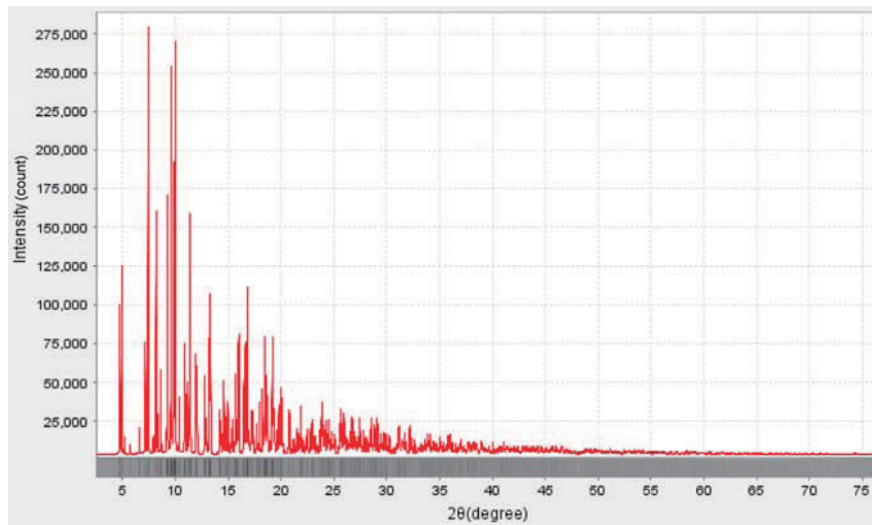


図1. Lu₂SiO₅単結晶の粉末回折測定の結果（放射光）

表1. 方位計算の結果

軸	方位角	仰角
<i>a</i>	20.9°	65.1°
<i>b</i>	-126.4°	28.9°
<i>c</i>	-109.1°	117.8°

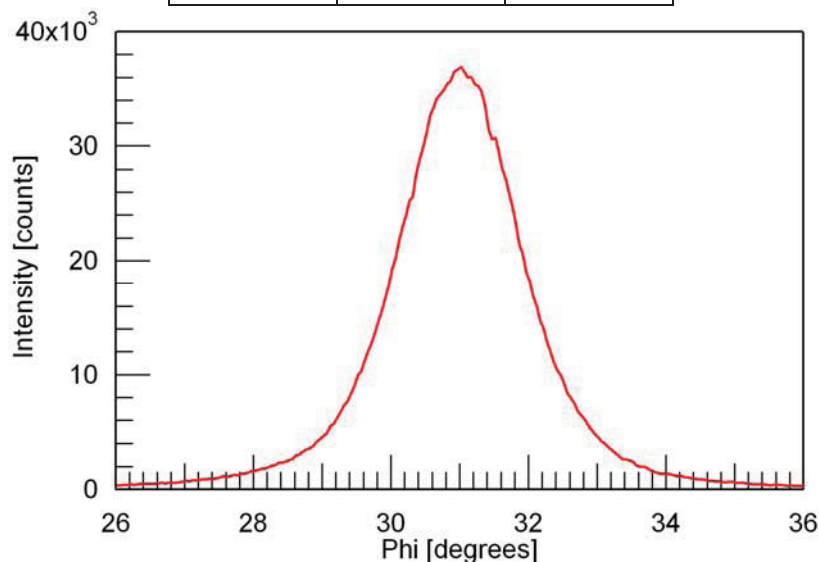


図2. Lu₂SiO₅単結晶の ϕ スキャン（放射光）

ラボ系の実験では放射光と同程度の精度を要求する事ができないが、方位確認の目的に限れば同等の精度を出す事も可能であると考えられる。図4に同じ板状モデル試料のATX-Gによる(22 $\bar{2}$)面の ω スキャンの結果を示す。ATX-Gは ω 方向で平行性の高いビームを利用する事ができるため、 ϕ を0°, 180°, 90°, -90°で ω スキャンを行い、それらのピーク位置から(22 $\bar{2}$)面の方位を高精度に求める事ができる。図4の ω スキャンにおいて放射光の測定時とほぼ同じ方位の値が出る事が分かった。本実験により、SPring-8を活用して高精度のLu₂SiO₅単結晶の方位測定結果を出しておけば、それを利用してラボ系でも同等の精度の方位確認を行う事が可能である事を実証する事ができた。現在、

特徴的な(*hkl*)面からずらした時にラボ系でどのような Lu_2SiO_5 単結晶の方位確認が可能になるのか、実験を重ねているところである。これが確立されれば、任意の引き上げ方向で結晶の方位ずれを検査する事ができるようになり、 Lu_2SiO_5 単結晶の社内での方位確認手法が確立される。

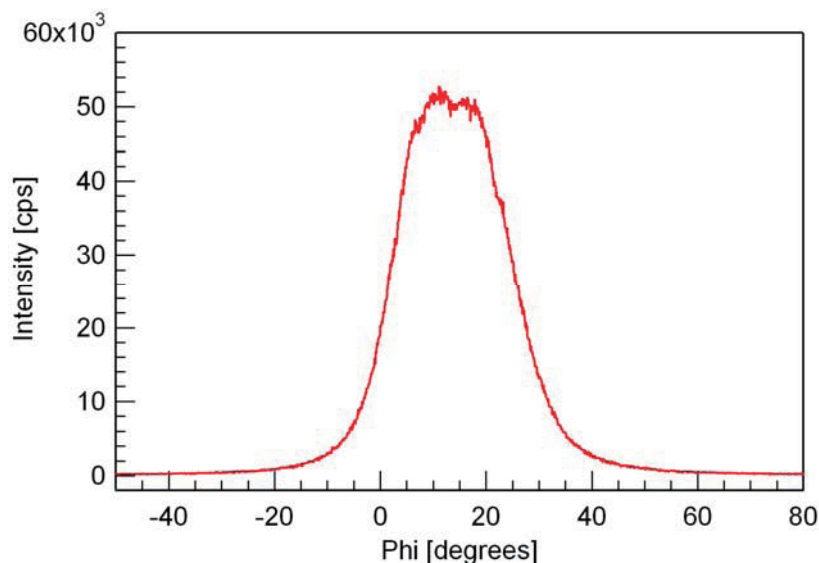


図 3. Lu_2SiO_5 単結晶の ϕ スキャン(ATX-G)

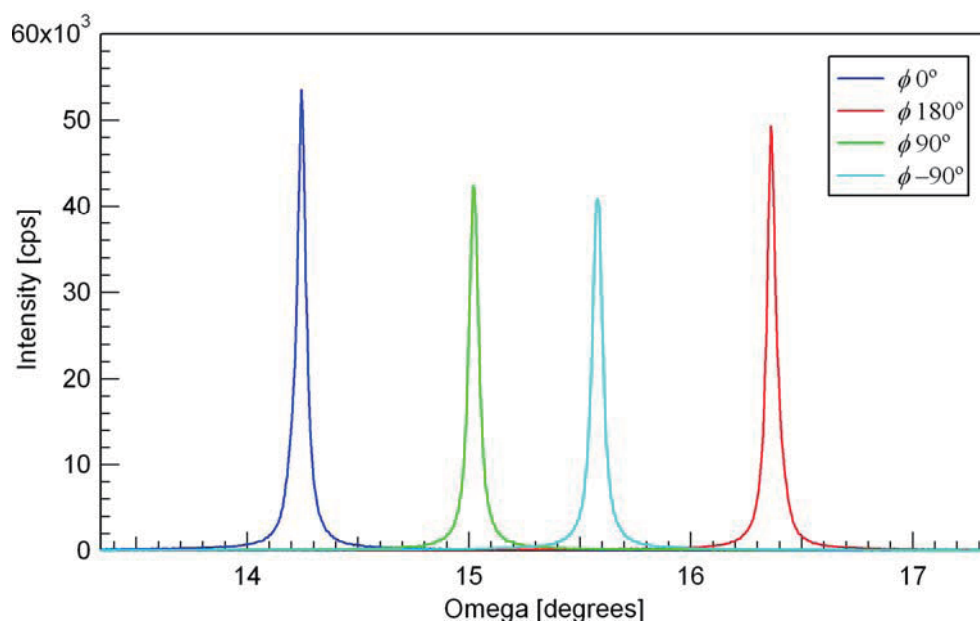


図 4. Lu_2SiO_5 単結晶の ω スキャン(ATX-G)

今後の課題：

現在、ラボ系の実験において特徴的な(*hkl*)面からずれた切断面でどのように Lu_2SiO_5 単結晶の高精度な方位確認をしたら良いのか、方法論を探っているところである。ある程度の実験成果が出た段階で再度 SPring-8 での実験を課題申請する予定である。

参考文献：

- [1] C. Michel, G. Buisson, E. F. Bertaut, *C. R. Seances Acad. Sci. Ser. B* **246**, 397 (1967).
- [2] Y. Smolin, S. P. Tkachev, *Kristallografiya* **14**, 22 (1969).
- [3] 菊池哲夫、理学電機ジャーナル、**19**, 24 (1988).
- [4] W. R. Busing, H. A. Levy, *Acta Crystallogr.* **22**, 457 (1967).
- [5] "International Tables for Crystallography," Vol. A, 3rd Revised Edition, Ed. by D. Hahn, Kluwer Academic Publishers, Dordrecht (1992).