

超短パルスガンマ線を用いた陽電子消滅寿命分光で探るガーネット型 多元系酸化物結晶の不純物共添加効果

Impurity Codoping Effect on Multicomponent Garnet Oxide Crystals Revealed by Gamma-induced Positron Annihilation Lifetime Spectroscopy

山形大理¹, 分子研 UVSOR², 総研大³, 東北大 NICHe⁴, 東工大 IIR⁵

○北浦 守¹, 平 義隆^{2,3}, 鎌田 圭⁴, 渡邊真太⁵, 大西彰正¹

Yamagata Univ.¹, IMS UVSOR², Sokendai³, Tohoku Univ. NICHe⁴, Tokyo Inst. Tech. IIR⁵

◦Mamoru Kitaura¹, Yoshitaka Taira^{2,3}, Kei Kamada⁴, Shinta Watanabe⁵, Akimasa Ohnishi¹

E-mail: kitaura@sci.kj.yamagata-u.ac.jp

多元系化合物の結晶育成過程では、様々な要因によって非化学量論組成が生じ、電荷補償効果のために様々な種類の格子欠陥が導入される。格子欠陥が導入されることで結晶が持つ本来の物理的特性が変化するため、材料開発において格子欠陥を制御することが肝要である。そのためには、格子欠陥の種類や量をできるだけ正確に評価しなければならない。結晶中に含まれる主要な格子欠陥である空孔型欠陥を評価する手法として、我々は超短パルスガンマ線を用いた陽電子消滅寿命分光 (GiPALS)[1]システムを新たに分子科学研究所 UVSOR 極端紫外光研究施設にて開発した。この方法では、電子蓄積リングを周回運動する電子ビームに垂直 90 度方向から超短パルスレーザーを入射し、逆トムソン散乱によって超短パルスガンマ線を発生する。透過力の高いガンマ線による対生成によって物質内部に陽電子を生じさせるため、結晶内部に潜む空孔型欠陥を調べることができる。これまでに融液成長した $Gd_3Al_2Ga_3O_{12}:Ce$ (GAGG:Ce)結晶シンチレータにおいてカチオン空孔と酸素空孔からなる欠陥対が存在することを明らかにし、この欠陥対がマグネシウムを共添加すると抑えられることを見出してきた[2]。しかし、何故マグネシウムを共添加すると空孔型欠陥が抑えられるのか、その機構は今もなお不明である。

GAGG:Ce 結晶と同じように、 $Y_3Al_5O_{12}:Ce$ (YAG:Ce)結晶や $LuAl_5O_{12}:Ce$ (LuAG:Ce)結晶でも空孔型欠陥の形成や不純物共添加効果が起こるかどうか、ガーネット構造を有する多元系酸化物結晶を俯瞰してみることは、これらの結晶の高品質化を達成するためには必要不可欠であり、そのためには必ず調べておく必要がある。そこで、本研究では、YAG:Ce 結晶と LuAG:Ce 結晶において空孔型欠陥の不純物添加効果を GiPALS によって調べた。結晶育成時には、試料に不純物としてマグネシウムあるいはリチウムを共添加した。YAG:Ce 結晶と LuAG:Ce 結晶には空孔型欠陥が存在し、不純物を共添加すると空孔型欠陥が抑制されることを見出した。

本研究は科研費(No.19K04997)および分子研協力研究(No.254)のサポートの下で行われました。

[1] Y. Taira et al. Rev. Sci. Instrum. 84, 053305 (2013).

[2] K. Fujimori et al. Appl. Phys. Express 13, 085505 (2020).