

JAERI-Research

94-032



LiTaO₃結晶のX線による評価

1994年11月

塩飽秀啓・依田芳卓*・原見太幹・菊田惺志*・大野英雄

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。

入手の問合せは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越しください。なお、このほかに財團法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費領布をおこなっております。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division, Department of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokaimura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1994

編集兼発行 日本原子力研究所

印 刷 株原子力資料サービス

LiTaO₃結晶のX線による評価

日本原子力研究所大型放射光施設開発室

塩飽 秀啓・依田 芳卓*・原見 太幹

菊田 健志*・大野 英雄

(1994年10月7日受理)

6.21 keVのエネルギーを取り出し核共鳴散乱光学素子となりうるリチウムタンタレート(LiTaO₃)結晶の結晶性について、放射光X線を用いて評価を行った。評価は、ラウエ写真、X線トポグラフィー、回折強度曲線により行った。その結果、市販されている結晶(SAW (Surface Acoustic Wave) grade結晶)では、回折強度曲線の半値幅が40秒もあり、また結晶表面には多くの歪みが存在し、核共鳴散乱光学素子として相応しくないことが分かった。しかし、結晶に化学処理を施し表面近傍の歪み層を取り除くと、歪みのある結晶構造に変わりはないが、半値幅が5秒程度の領域が現われ、核共鳴散乱光学素子として充分利用できることが分かった。

Characterization of Lithium Tantalate Crystals by X-rays

Hideaki SHIWAKU, Yoshitaku YODA*, Taikan HARAMI

Seishi KIKUTA* and Hideo OHNO

Department of Synchrotron Radiation Facility Project

Japan Atomic Energy Research Institute

Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received October 7, 1994)

Lithium tantalate (LiTaO_3) crystals can give a nuclear resonant scattering with a very narrow energy resolution at 6.2 keV and has become available to be an optical device. X-ray experiments were carried out on the crystals by taking Laue photographs and X-ray topographs, and measuring rocking curves with the use of Synchrotron Radiation. SAW (Surface Acoustic Wave) grade crystals are shown about 40 arcsec in FWHM of rocking curve, including lots of strain, and being not suitable for the optical device. After chemical etching on the crystals, X-ray photographs show there small area of about 5 arcsec in FWHM. These are available as the optical device.

Keywords: Lithium Tantalate (LiTaO_3), Mössbauer, Topography, Tantalum, Rocking Curve, Etching, Nuclear Resonant Scattering, Synchrotron Radiation

* Faculty of Engineering, The University of Tokyo

目 次

1. 序 論	1
2. 実 験	2
2.1 試 料	2
2.2 ラウエ写真法	2
2.3 X線トポグラフおよび回折強度曲線	2
3. 結 果	4
3.1 表面処理前	4
3.2 表面処理後	5
4. 結 論	7
謝 辞	7
参考文献	7

Contents

1. Introduction	1
2. Experimental	2
2.1 Sample Preparation	2
2.2 Laue Method	2
2.3 X-ray Topography & Rocking Curve Measurements	2
3. Results	4
3.1 Pre-Treatment by Chemical Etching	4
3.2 Post-Treatment by Chemical Etching	5
4. Conclusion	7
Acknowledgement	7
References	7

1. 序論

理論的に核共鳴散乱を起こす元素として、表1に示した通り多くの核種が存在している。これらの核種の中で核共鳴散乱による信号が実験的に確認されているものは、 $^{57}\text{Fe}^{(1)}$ 、 $^{119}\text{Sn}^{(2)}$ 、 $^{169}\text{Tm}^{(3)}$ である。 ^{57}Fe ($^{57}\text{Fe}_2\text{O}_3$ を使用) では、放射光X線を用いて秒当り約2万4千カウントの核共鳴散乱X線の信号が得られているが⁽⁴⁾、 ^{57}Fe 以外の他の核種では秒当り1カウント以下の微弱信号が得られている程度である。核共鳴散乱を示す他の核種を見いだすため検討が行われている。例えば、Si基板上に軽元素と重元素を積層したGIAR (grazing incidence anti-reflection) 膜がある。

われわれは比較的結晶性がよく、しかも大きな酸化物結晶が得られる元素としてタンタル(Ta)を選び、Taからの核共鳴散乱を検出することを検討している。6.21keVのエネルギーを持つタンタルでの核共鳴散乱は、電子散乱よりもはるかに寿命が長く($6\mu\text{sec}$)、核共鳴散乱と電子散乱を分離しやすいと考えられる。そこで、タンタル元素を含む LiTaO_3 結晶の結晶性について(a)ラウエ写真法、(b)回折強度曲線、(c)X線トポグラフィーの3種の方法により評価を行い、核共鳴散乱光学素子としての可能性について検討を行った。

2. 実験

2.1 試料

測定試料であるLiTaO₃結晶は、録画機器のSAW (Surface Acoustic Wave) デバイス用ウエハーとして(株)東芝より販売されている製品を用い、(30·0)-cut (Y-cut)、(11·0)-cut (X-cut)、(01·2)-cut の3種類について評価を行った。試料のサイズは共に75mm^φ × 3mm^Tである。LiTaO₃結晶は表2に示すように、R₃Cに属し1ユニットあたりリチウム原子6個、タンタル原子6個、酸素原子6個で構成される六角柱状結晶である⁽⁵⁾。測定に用いた結晶の仕様を表3⁽⁶⁾に示す。外見は淡黄乳白色をしており、眼視では表面に外傷や撓み、歪みなどは見られなかった。

購入したままの結晶は、#3000研磨剤による物理研磨が施されているのみであり⁽⁶⁾、研磨後に化学処理が施されていない。そのため結晶表面には、研磨に起因する歪みが残存している可能性がある。結晶表面の研磨時に生じた表面近傍の歪みを取り除くため、化学処理（エッチング）を施した。エッチング溶液には、フッ化水素と硝酸の混合溶液（1:1）を用い、オートクレーブ中で、115°C～120°Cの温度で3～4時間行った。

2.2 ラウエ写真法

初めに、結晶の方位を確認するため背面ラウエ写真を撮影した（図1）。タンゲステン管球を用い40kV、20mAでポラロイドフィルム（Type 57：日本ポラロイド）に10分間露光撮影した。ラウエ像を見る限りでは、結晶性は良く、カットも良好に行われている。

2.3 X線トポグラフおよび回折強度曲線

放射光X線を用いた実験は、高エネルギー物理学研究所・放射光実験施設、実験ステーション14B (BL-14B)において行った。このビーンラインは、ストレージリング内の電子を縦方向に蛇行させ、より強力なX線を取り出す挿入光源（Superconducting Vertical Wiggler）を備えたビームラインである。BL-14Bにおける光源の放射光強度スペクトル^(7,8)を図2に示す。実験はマシンタイムの関係から、表面処理を施す前の結晶ではシングルバンチモード（最大リングカレント：50mA）で行い、表面処理を施した結晶についてはマルチバンチモード（最大リングカレント：350mA）によって行った。

実験装置の写真を図3(a), (b)に示す。また、実験配置を図4(a)（X線トポグラフ）、図4(b)（回折強度曲線）、図4(c)（反射率測定）に示す。放射光をスリットを介し、Si(111)二結晶モノクロメーターで分光し、Si(111)非対称カット（Fankuchen-cut）モノクロメーターにより照射野を広げ、かつ入射光の平行性を高め試料結晶に入射した。結晶の配置は図4の如く+/-平行配置とし、その調整にはPIN検出器を用いて行った。入射光の強度は、入射方向に対し45度傾けて配置されたポリイミド膜から散乱するX線を、90度方

向に配置した NaI(Tl) シンチレーションカウンターを用いて測定し、強度規格化の基準とした。試料結晶はオリエンテーションフラット面を下にし、下方から 30mm の場所を中心として上下 ± 10mm (幅 20mm)、左右 ± 20mm (幅 40mm) の領域を評価した。カット面の異なる 3 種の各試料について、測定条件を表 4 に示す。評価波長と非対称カットモノクロメーターの回折面指数または入射角は、非対称モノクロメーターのブラッグ角と試料結晶のブラッグ角をほぼ等しくするため、またタンタルの L 吸収端 ($L_1:1.0613\text{\AA}$, $L_2:1.1137\text{\AA}$, $L_3:1.2553\text{\AA}$) を考慮して決定した。検出器として、トポグラフ撮影には X 線フィルム (H-80 : 富士フィルム) およびポラロイドフィルム (Type 57 : 日本ポラロイド) を用いた。

回折強度曲線の測定は、トポグラフ撮影と同じ光学配置で行い (図 4 (b))、検出器には NaI(Tl) シンチレーションカウンターを用いた。非対称カットされた Si 結晶と試料結晶の間、試料結晶と検出器の間 2 カ所に四象元スリットを入れ解放視野と制限視野の両方で測定した。さらに、微少領域での結晶の均一性を調べるために、X 線ビームを $1\text{mm} \times 1\text{mm}$ に絞り、結晶中心から水平方向に ± 8mm の領域を走査しながらロッキングカーブを測定し、ロッキングカーブのプロファイルとその半値幅から微少領域の結晶性を検討した。

試料結晶の反射率は、図 4 (c) に示したように試料結晶を出し入れすることにより、試料により回折された時とそうでない時の回折 X 線強度を比較した。

3. 結 果

3.1 表面処理前

(1) (30·0)-cut 結晶

図1(a)に(30·0)-cut 結晶のラウエ写真を示す。スポットに広がりや滲みは見られず、結晶性は良く、カットも良好に行われていた。

波長 1.081 \AA (11.47 keV) にて測定した LiTaO_3 結晶の $(60\cdot0)$ 面のロッキングカーブを図5に示す。ロッキングカーブの半値幅は、完全結晶における理論値の4.9秒に対し80秒もあり、さらにメインピークから78秒離れた場所に第2ピークが見られた。メインピーク(0秒)とそこから-78秒、25秒、40秒離れた場所で撮影したX線トポグラフ写真を図6に示す。25秒、40秒離れた場所はそれぞれ強度半値に相当する。どのトポグラフ写真も黒化度は一様ではなく緩やかに濃度変化しており、歪みが場所によりグラジエントに変化している様子が現れている。また、クラックも多く見られることから、結晶全体が歪んでいることが分かった。

(2) (11·0)-cut 結晶

図1(b)に(11·0)-cut 結晶のラウエ写真を示す。(30·0)-cut 結晶と同様にスポットに広がりや滲みは見られず、結晶性も良く、カットも良好に行われていた。

波長 1.135 \AA (10.92 keV) にて測定した LiTaO_3 結晶の $(44\cdot0)$ 面のロッキングカーブを図7に示す。ロッキングカーブの半値幅は、完全結晶における理論値の5.4秒に対し115秒もあり、さらにメインピークから35秒、85秒、127秒離れた場所にサブピークが見られた。メインピークとサブピークのそれぞれの場所で撮影したX線トポグラフ写真を図8に示す。(30·0)-cut 結晶と同様に、どの場所で撮影されたトポグラフ写真にも多くのクラックが見られる。しかもクラックで仕切られた領域中にも濃度変化が見られる。

(3) (01·2)-cut 結晶

図1(c)に(01·2)-cut 結晶のラウエ写真を示す。(30·0)-cut 結晶と同様にスポットに広がりや滲みは見られず、トポグラフ写真で見る限りどの結晶も結晶性は良く、カットも良好に行われていた。

波長 1.162 \AA (10.67 keV) にて測定した LiTaO_3 結晶の $(04\cdot8)$ 面のロッキングカーブを図9に示す。ロッキングカーブの半値幅は、完全結晶における理論値の5.6秒に対し83秒であり、さらにメインピークから120秒離れた場所に肩ピークが見られた。(30·0)-cut 結晶や(11·0)-cut 結晶と比べると、比較的左右対称なプロファイルを示しているが、図10に示したトポグラフ写真では、(30·0)-cut 結晶や(11·0)-cut 結晶と同様に、非常に多くの歪みやクラックが見られている。これらから結晶が全体的に緩やかに歪んでいることが分かった。

(4) 微少領域の結晶性

評価に用いた LiTaO_3 結晶の中で、図 6 に示されているように、(30・0)-cut 結晶は他の二種類の結晶よりも、比較的広い範囲において均一な領域が見られる。そこで、微少領域での結晶の均一性を調べるために、X線ビームを走査しながらロッキングカーブを測定し、ロッキングカーブのプロファイルとその半値幅から結晶性を検討した。各場所でのロッキングカーブを図 11 に示す。このように微少領域のロッキングカーブはなだらかに変化しており肩ピークは見られないが、どの場所においても半値幅はおよそ 40 秒もあった。この値は解放視野の場合と同じであり、このことから測定に用いた LiTaO_3 結晶は全体的に歪みがあり、また局所的にも結晶性が悪いことが示唆された。

3.2 表面処理後

購入したままの結晶表面は、#3000研磨剤による物理研磨が施されているのみであり⁽⁶⁾、研磨後に化学処理が施されていない。そのため結晶表面には、研磨に起因する歪みが残存している可能性があるため化学処理（エッチング）を行った。

(1) (30・0)-cut 結晶

波長 1.080 Å (11.48 keV) にて測定した LiTaO_3 結晶の (60・0) 面のロッキングカーブを図 12 に示す。エッチングをする前（図 5）はブロードな大きなピークであったが、エッチングをした後では図 12 のように 5 つのピークを持つロッキングカーブが得られた。メインピーク（0 秒）とそこから -29 秒、-13 秒、-4 秒、6 秒、20 秒、43 秒離れた場所で撮影した X 線トポグラフ写真を図 13 に示す。また、図 12 において最も強度の大きいピークを示した場所を制限視野 (0.6mm × 3mm) にてロッキングカーブを測定した。図 14 に示した通り、半値幅が LiTaO_3 結晶の完全結晶における理論値に近い約 4 秒の非常に良好なロッキングカーブが得られた。このことは、結晶表面にあった歪みがエッチングにより取り除かれ、完全結晶（に近い）部分が現れたと考えられる。他の面についても、以下に示すように同様な結果が得られている。

(2) (11・0)-cut 結晶

波長 1.134 Å (10.93 keV) にて測定した LiTaO_3 結晶の (44・0) 面のロッキングカーブを図 15 に示す。(60・0) 面と同様に、エッチングをする前（図 7）はブロードな大きなピークであったが、エッチングをした後では図 15 のように沢山のピークを持つロッキングカーブが得られた。メインピーク（0 秒）とそこから -3 秒、4 秒、16 秒、36 秒、47 秒、86 秒、120 秒離れた場所で撮影した X 線トポグラフ写真を図 16 に示す。メインピークから -3 秒、4 秒の場所は、それぞれメインピークの半分の強度の場所である。また、図 15 において最も強度の大きいピークを示した場所を制限視野 (0.6mm × 3mm) にてロッキングカーブを測定した結果、(30・0)-cut 結晶と同様に、半値幅が LiTaO_3 結晶の完全結晶における理論値に近い約 4 秒の非常に良好なロッキングカーブ（図 17）が得られた。

(3) (01·2)-cut 結晶

波長 1.162 Å (10.65 keV) にて測定した LiTaO₃ 結晶の (04·8) 面のロッキングカーブを図 18 に示す。 (60·0) 面と同様に、エッチングをする前 (図 9) はプロードで大きなピークであったが、エッチングをした後では図 18 のように 2 のピークを持つロッキングカーブが得られた。メインピーク (0 秒) とそこから -10.5 秒、 -5.8 秒、 14.8 秒、 20.5 秒、離れた場所で撮影した X 線トポグラフ写真を図 19 に示す。また、図 18 において最も強度の大きいピークを示した場所を制限視野 (0.6mm × 3mm) にてロッキングカーブを測定した結果、やはり (30·0)-cut 結晶と同様に、半値幅が LiTaO₃ 結晶の完全結晶における理論値に近い約 5 秒の非常に良好なロッキングカーブ (図 20) が得られた。

(4) X 線反射率

各試料結晶の反射率の測定を行った。図 4 (c) に示したように、非対称カット Si 結晶からの X 線を試料結晶で回折させた場合の強度と、結晶を外し直接検出器で受けた強度を比較した。完全結晶における理論反射率は、それぞれ表 4 の測定条件において、 (30·0)-cut 結晶は 48%、 (11·0)-cut 結晶は 52%、 (01·2)-cut 結晶は 62% であるのに対し、測定結果はそれぞれ 22%、 28%、 43% であった。つまり、 (30·0)-cut 結晶は理論値の 46%、 (11·0)-cut 結晶は理論値の 54%、 (01·2)-cut 結晶は理論値の 69% 程度しか得られていない。この結果も結晶の歪みに起因すると考えられる。

以上のように、結晶表面にエッチングを施すことにより、完全結晶に近い領域が現れることが分かった。また、その領域は核共鳴散乱実験に必要な大きさ (1mm × 1mm 程度) を確保できることが分かった。しかし、図 13、図 16、図 19 に示したトポグラフ写真に見られるように、結晶は非常に細かい鱗片状の部分から構成されており完全結晶とは言い難い。また X 線反射率は理論値の 50% ~ 70% 程度しか得られていない。そのため、より完全に近い結晶を作成することも必要である。

4. 結 論

市販されている SAW grade 結晶では半値幅が 40 秒もあり、また結晶表面には多くの歪みが見られ、核共鳴散乱光学素子として相応しくないことが分かった。しかし、結晶に化学処理を施し表面近傍の歪み層を取り除くことにより、歪みのある結晶構造に変わりはないが、半値幅が 5 秒程度の領域が現われ、核共鳴散乱光学素子として充分利用できることが分かった。今後は、エッティングを行った結晶を用いることにより核共鳴散乱の実験が可能である。また、さらに完全に近い結晶の作成も必要である。

謝 辞

実験にあたり、実験ステーション担当者である平野馨一博士（高エネルギー物理学研究所放射光実験施設）には実験ステーションや実験装置について有益なご助言を賜わりましたことを感謝いたします。また、LiTaO₃ 結晶のエッティングをしていただきました（株）東芝・電子機能材料技術部・勝井修二氏、ならびに LiTaO₃ 結晶に関する有益な助言を頂きました、同・松村禎夫博士に感謝いたします。

参 考 文 献

- (1) A. I. Chechin, N. V. Andronova, M. V. Zelepukhin, A. N. Artemev, E. P. Stepanov; JETP Lett. 37(11), 633-636 (1983)
- (2) E. E. Apl, T. M. Mooney, T. Teollner, W. Sturhn, E. Witthoff, R. Rohlsberger, E. Gerdau, H. Homma, M. Kentjana; Phys. Rev. Lett. 70, 3351-3354 (1993)
- (3) W. Sturhahn, E. Gerdau, S. Boerger; Hyp. Int. 58, 2483-2488 (1991)
- (4) C. K. Suzuki, Y. Yoda, X. W. Zhang, H. Sugiyama, K. Izumi, T. Ishikawa, M. Ando, H. Takei, T. Harami, H. Ohno, S. Kikuta; Hyp. Int. (1994) (submitted)
- (5) S. C. Abrahams and J. L. Berndtein, J. Phys. Chem. Solids, Vol.28, 1685-1692, (1967)
- (6) data from a catalogue of "Toshiba specification for LiTaO₃ wafer"
- (7) Hideo Kitamura, Insertion Device Handbook 1990 Photon Factory, (1990)
- (8) Hideo Kitamura, Synchrotron Radiation Calculation Program for PC98** Ver.2.3 (Oct.21, 1993)

4. 結 論

市販されている SAW grade 結晶では半値幅が 40 秒もあり、また結晶表面には多くの歪みが見られ、核共鳴散乱光学素子として相応しくないことが分かった。しかし、結晶に化学処理を施し表面近傍の歪み層を取り除くことにより、歪みのある結晶構造に変わりはないが、半値幅が 5 秒程度の領域が現われ、核共鳴散乱光学素子として充分利用できることが分かった。今後は、エッティングを行った結晶を用いることにより核共鳴散乱の実験が可能である。また、さらに完全に近い結晶の作成も必要である。

謝 辞

実験にあたり、実験ステーション担当者である平野馨一博士（高エネルギー物理学研究所放射光実験施設）には実験ステーションや実験装置について有益なご助言を賜わりましたことを感謝いたします。また、LiTaO₃ 結晶のエッティングをしていただきました（株）東芝・電子機能材料技術部・勝井修二氏、ならびに LiTaO₃ 結晶に関する有益な助言を頂きました、同・松村禎夫博士に感謝いたします。

参 考 文 献

- (1) A. I. Chechin, N. V. Andronova, M. V. Zelepukhin, A. N. Artemev, E. P. Stepanov; JETP Lett. 37(11), 633-636 (1983)
- (2) E. E. Apl, T. M. Mooney, T. Teollner, W. Sturhn, E. Witthoff, R. Rohlsberger, E. Gerdau, H. Homma, M. Kentjana; Phys. Rev. Lett. 70, 3351-3354 (1993)
- (3) W. Sturhahn, E. Gerdau, S. Boerger; Hyp. Int. 58, 2483-2488 (1991)
- (4) C. K. Suzuki, Y. Yoda, X. W. Zhang, H. Sugiyama, K. Izumi, T. Ishikawa, M. Ando, H. Takei, T. Harami, H. Ohno, S. Kikuta; Hyp. Int. (1994) (submitted)
- (5) S. C. Abrahams and J. L. Berndtein, J. Phys. Chem. Solids, Vol.28, 1685-1692, (1967)
- (6) data from a catalogue of "Toshiba specification for LiTaO₃ wafer"
- (7) Hideo Kitamura, Insertion Device Handbook 1990 Photon Factory, (1990)
- (8) Hideo Kitamura, Synchrotron Radiation Calculation Program for PC98** Ver.2.3 (Oct.21, 1993)

4. 結 論

市販されている SAW grade 結晶では半値幅が 40 秒もあり、また結晶表面には多くの歪みが見られ、核共鳴散乱光学素子として相応しくないことが分かった。しかし、結晶に化学処理を施し表面近傍の歪み層を取り除くことにより、歪みのある結晶構造に変わりはないが、半値幅が 5 秒程度の領域が現われ、核共鳴散乱光学素子として充分利用できることが分かった。今後は、エッティングを行った結晶を用いることにより核共鳴散乱の実験が可能である。また、さらに完全に近い結晶の作成も必要である。

謝 辞

実験にあたり、実験ステーション担当者である平野馨一博士（高エネルギー物理学研究所放射光実験施設）には実験ステーションや実験装置について有益なご助言を賜わりましたことを感謝いたします。また、LiTaO₃ 結晶のエッティングをしていただきました（株）東芝・電子機能材料技術部・勝井修二氏、ならびに LiTaO₃ 結晶に関する有益な助言を頂きました、同・松村禎夫博士に感謝いたします。

参 考 文 献

- (1) A. I. Chechin, N. V. Andronova, M. V. Zelepukhin, A. N. Artemev, E. P. Stepanov; JETP Lett. 37(11), 633-636 (1983)
- (2) E. E. Apl, T. M. Mooney, T. Teollner, W. Sturhn, E. Witthoff, R. Rohlsberger, E. Gerdau, H. Homma, M. Kentjana; Phys. Rev. Lett. 70, 3351-3354 (1993)
- (3) W. Sturhahn, E. Gerdau, S. Boerger; Hyp. Int. 58, 2483-2488 (1991)
- (4) C. K. Suzuki, Y. Yoda, X. W. Zhang, H. Sugiyama, K. Izumi, T. Ishikawa, M. Ando, H. Takei, T. Harami, H. Ohno, S. Kikuta; Hyp. Int. (1994) (submitted)
- (5) S. C. Abrahams and J. L. Berndtein, J. Phys. Chem. Solids, Vol.28, 1685-1692, (1967)
- (6) data from a catalogue of "Toshiba specification for LiTaO₃ wafer"
- (7) Hideo Kitamura, Insertion Device Handbook 1990 Photon Factory, (1990)
- (8) Hideo Kitamura, Synchrotron Radiation Calculation Program for PC98** Ver.2.3 (Oct.21, 1993)

表1 メスバウアー核種

Energy (keV)	Mossbauer Nuclei	Energy (keV)	Mossbauer Nuclei	Energy (keV)	Mossbauer Nuclei	Energy (keV)	Mossbauer Nuclei
6.21	^{181}Ta	43.84	^{161}Dy	73.08	^{193}Ir	81.0	^{133}Cs
8.42	^{169}Tm	44.7	^{238}U	73.39	^{164}Dy	81.99	^{154}Sm
9.3	^{83}Kr	46.48	^{183}W	74.57	^{161}Dy	82.1	^{176}Yb
12.9	^{133}Ba	49.8	^{232}Th	75.3	^{160}Gd	82.35	^{191}Ir
14.41	^{57}Fe	57.60	^{127}I	76.5	^{174}Yb	83.37	^{153}Eu
21.55	^{151}Eu	58.0	^{159}Tb	75.89	^{171}Yb	84.0	^{243}Am
22.5	^{149}Sm	59.54	^{237}Np	77.34	^{194}Au	84.20	^{231}Pa
23.875	^{119}Sn	60.02	^{155}Gd	78.7	^{172}Yb	84.26	^{170}Yb
26.79	^{161}Dy	64.0	^{157}Gd	79.3	^{170}Er	86.54	^{155}Gd
27.75	^{129}I	66.74	^{171}Yb	79.32	^{167}Er	86.79	^{160}Dy
29.4	^{40}K	67.03	^{73}Ge	79.51	^{158}Gd	88.36	^{176}Hf
33.48	^{125}Te	67.25	^{145}Nd	79.80	^{168}Er	88.98	^{156}Gd
36.22	^{189}Os	67.40	^{61}Ni	80.16	^{131}Xe		
37.15	^{121}Sb	69.59	^{189}Os	80.56	^{166}Er		
39.58	^{129}Xe	72.5	^{145}Ni	80.7	^{162}Dy		

表 2 LiTaO₃結晶の結晶構造

Space Group
R3c

Lattice Parameters (hexagonal indication)

$$\begin{aligned} a &= 5.15428 \text{ \AA} \\ c &= 13.78351 \text{ \AA} \end{aligned}$$

Number of Atoms in a Unit Cell

$$\begin{aligned} \text{Li} &: 6 \\ \text{Ta} &: 6 \\ \text{O} &: 18 \end{aligned}$$

Atomic Positions

$$\text{Li} : 6a$$

$$\begin{aligned} (0, 0, z), (0, 0, \frac{1}{2}+z), (\frac{1}{3}, \frac{2}{3}, \frac{2}{3}+z), \\ (\frac{1}{3}, \frac{2}{3}, \frac{2}{3}+\frac{1}{2}+z), (\frac{2}{3}, \frac{1}{3}, \frac{1}{3}+z), (\frac{2}{3}, \frac{1}{3}, \frac{1}{3}+\frac{1}{2}+z) \\ z = 0.2790 \end{aligned}$$

$$\text{Ta} : 6a$$

$$\begin{aligned} (0, 0, 0), (0, 0, \frac{1}{2}), (\frac{1}{3}, \frac{2}{3}, \frac{2}{3}), \\ (\frac{1}{3}, \frac{2}{3}, \frac{2}{3}+\frac{1}{2}), (\frac{2}{3}, \frac{1}{3}, \frac{1}{3}), (\frac{2}{3}, \frac{1}{3}, \frac{1}{3}+\frac{1}{2}) \end{aligned}$$

$$\text{O} : 18b$$

$$\begin{aligned} (x, y, z), (-y, x-y, z), (y-x, -x, z), \\ (-y, -x, \frac{1}{2}+z), (x, x-y, \frac{1}{2}+z), (y-x, y, \frac{1}{2}+z), \\ (x+\frac{1}{3}, y+\frac{2}{3}, z+\frac{2}{3}), (-y+\frac{1}{3}, x-y+\frac{2}{3}, z+\frac{2}{3}), (y-x+\frac{1}{3}, -x+\frac{2}{3}, z+\frac{2}{3}), \\ (-y+\frac{1}{3}, -x+\frac{2}{3}, \frac{1}{2}+z+\frac{2}{3}), (x+\frac{1}{3}, x-y+\frac{2}{3}, \frac{1}{2}+z+\frac{2}{3}), \\ (y-x+\frac{1}{3}, y+\frac{2}{3}, \frac{1}{2}+z+\frac{2}{3}), \\ (x+\frac{2}{3}, y+\frac{1}{3}, z+\frac{1}{3}), (-y+\frac{2}{3}, x-y+\frac{1}{3}, z+\frac{1}{3}), (y-x+\frac{2}{3}, -x+\frac{1}{3}, z+\frac{1}{3}), \\ (-y+\frac{2}{3}, -x+\frac{1}{3}, \frac{1}{2}+z+\frac{1}{3}), (x+\frac{2}{3}, x-y+\frac{1}{3}, \frac{1}{2}+z+\frac{1}{3}), \\ (y-x+\frac{2}{3}, y+\frac{1}{3}, \frac{1}{2}+z+\frac{1}{3}) \\ x = 0.0501, y = 0.3436, z = 0.0687 \end{aligned}$$

表3 試料結晶の仕様

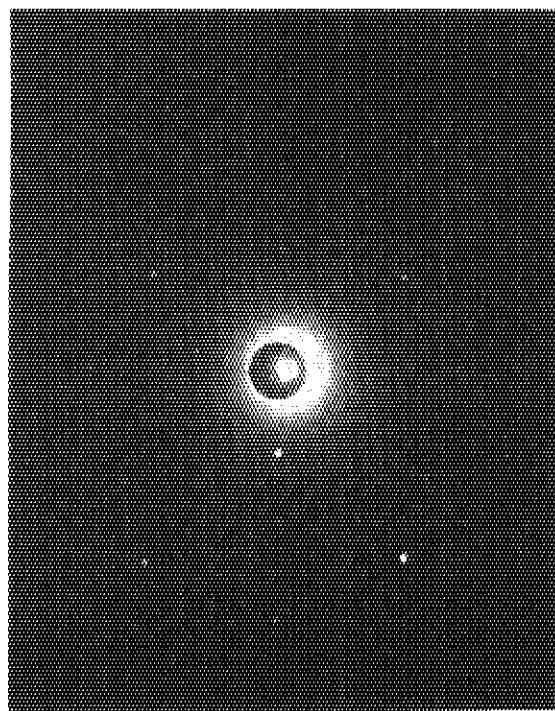
Crystal Cut	Y-cut	X-cut	
Crystal Orientation	(30·0)	(11·0)	(01·2) 32.9° rotated Y-cut
Orientation Flat	Z-cut	22.2° rotated Y-cut	123° rotated Y-cut
Diameter, Thickness	75mmΦ, 3.0mm ^T		

- Surface Quality 1) Mirror polished for high yield photo fabrication of SAW devices.
 2) Both side surface roughness ---> GC #2000 or 3000 lapped.
 3) No visible scratches, pits, pores and inclusions.
- Crystal Quality 1) "SAW grade" single crystal with single domain.
 2) Curie temperature variations are within $605^{\circ}\text{C} \pm 3^{\circ}\text{C}$

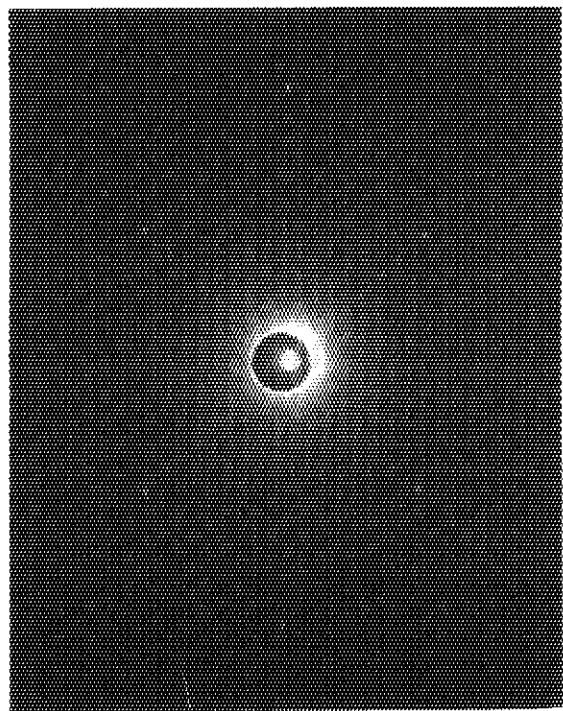
表4 実験測定条件一覧

Sample Crystal	(30·0)-cut		(11·0)-cut		(01·2)-cut	
	before*	after*	before*	after*	before*	after*
Wavelength (Å)	1.081	1.080	1.135	1.134	1.162	1.164
Energy (keV)	11.469	11.480	10.924	10.933	10.670	10.652
Si						
Diffraction Plane	117		800		440	
d space (Å)	0.76036		0.67876		0.95599	
Glancing Angle (°)	1.989	1.936	1.993	1.916	1.983	2.238
Bragg Angle (°)	45.303	45.250	56.729	56.652	37.248	37.502
b	0.0347	0.0337	0.0374	0.0359	0.0363	0.0409
Magnitude (=1/b)	28.80	29.59	26.76	27.844	27.56	24.45
LiTaO ₃						
Diffraction Plane	600		440		048	
d space (Å)	0.74396		0.64429		0.93663	
Bragg Angle (°)	46.596	46.539	61.742	61.647	38.339	38.417

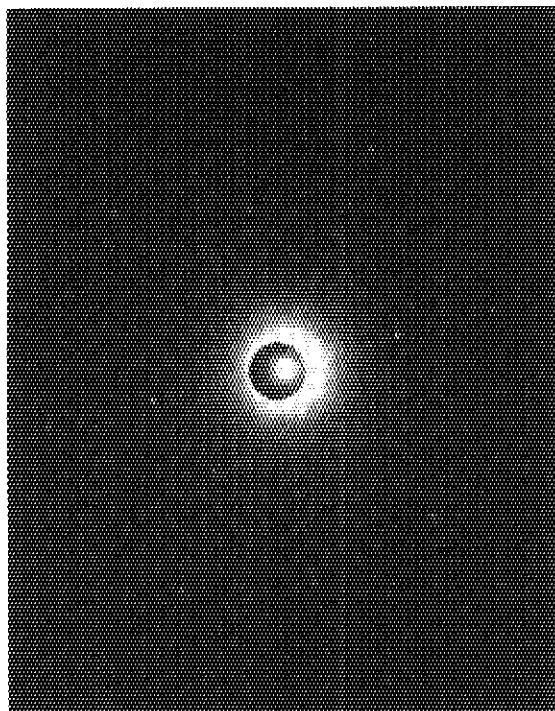
* before: before etching, after: after etching



(a) (30·0)面



(c) (01·2)面



(b) (11·0)面

図1 LiTaO₃結晶の背面ラウエ写真
タンゲステンX線管球を用い40kV、20mA
にて10分間撮影、増感紙使用

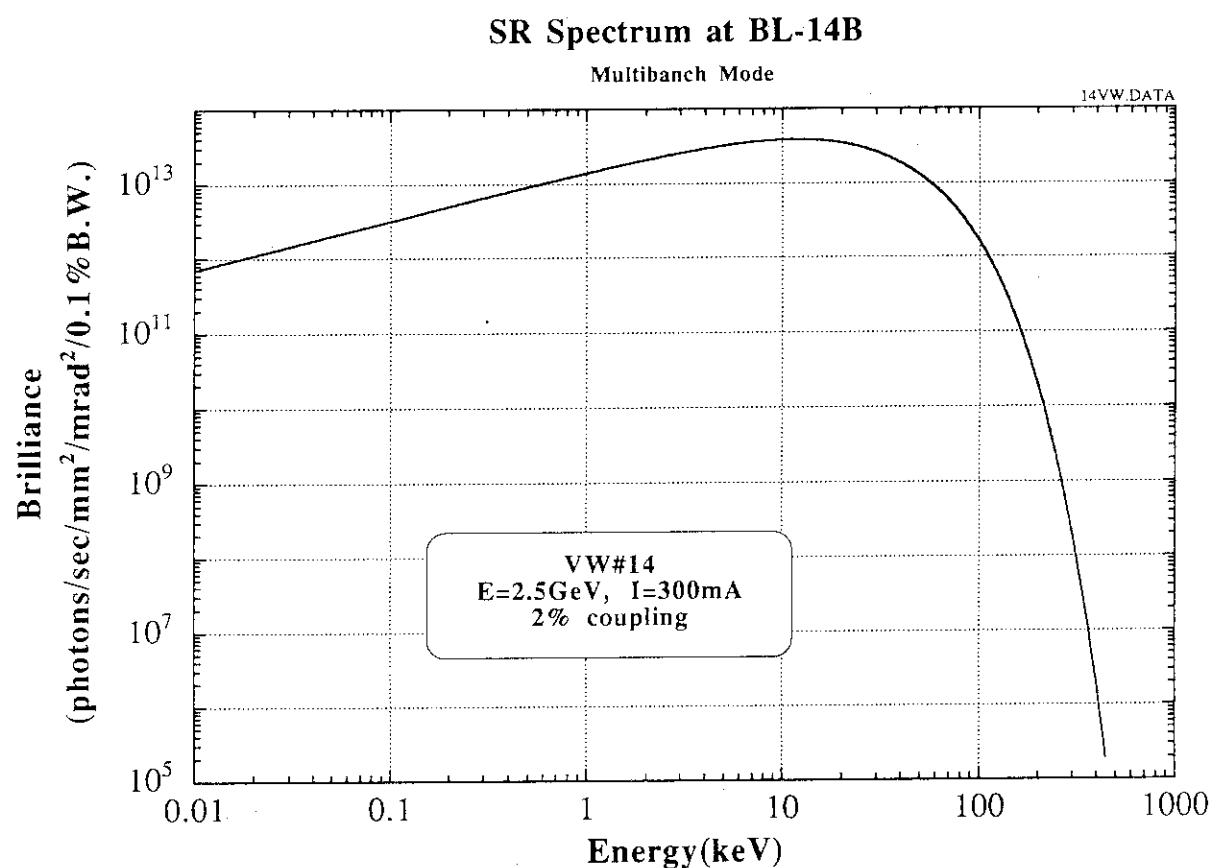
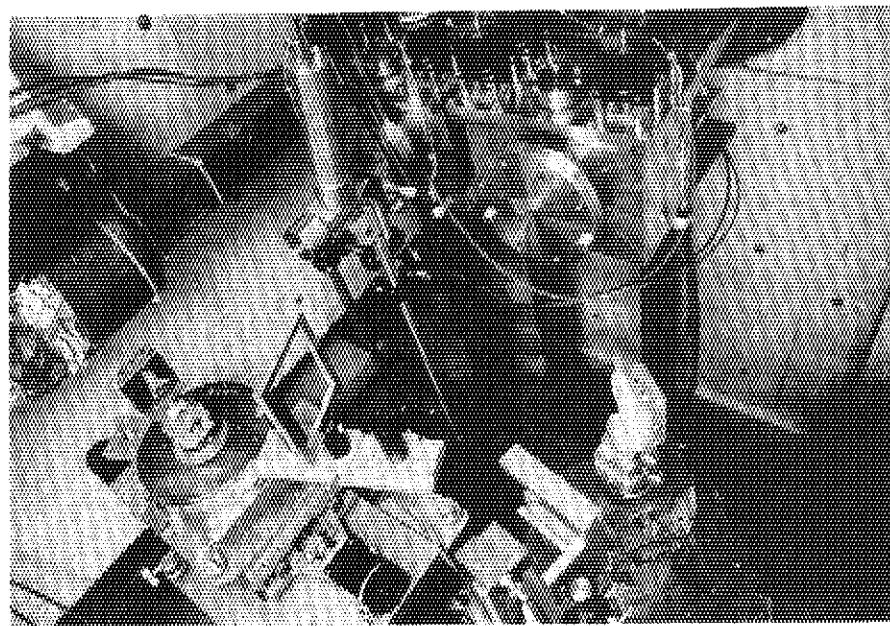
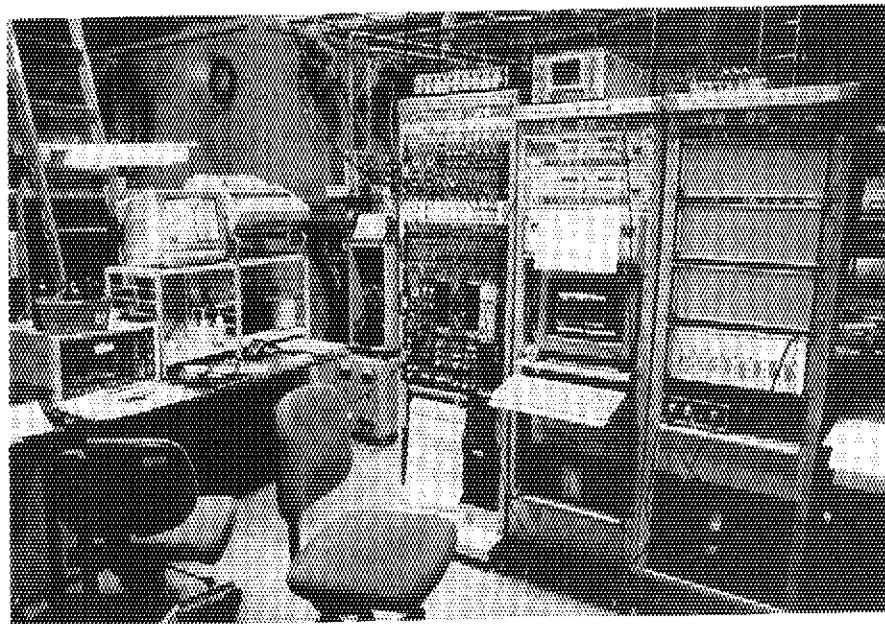


図2 BL-14Bにおける放射光強度スペクトル



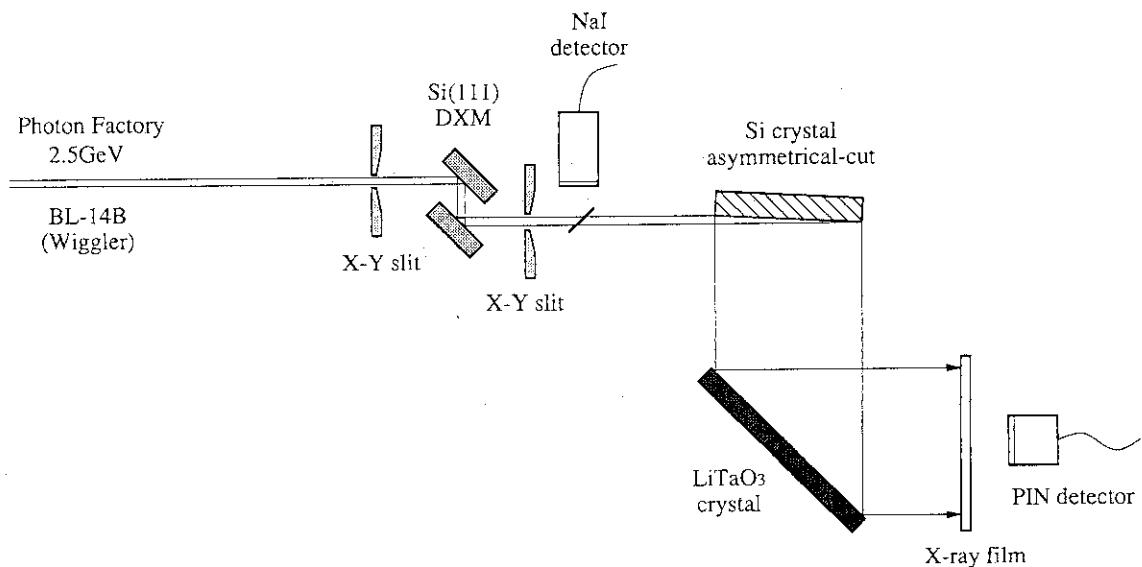
(a) 実験ハッチ内、X線トポグラフィー装置



(b) 制御及びデータ処理システム

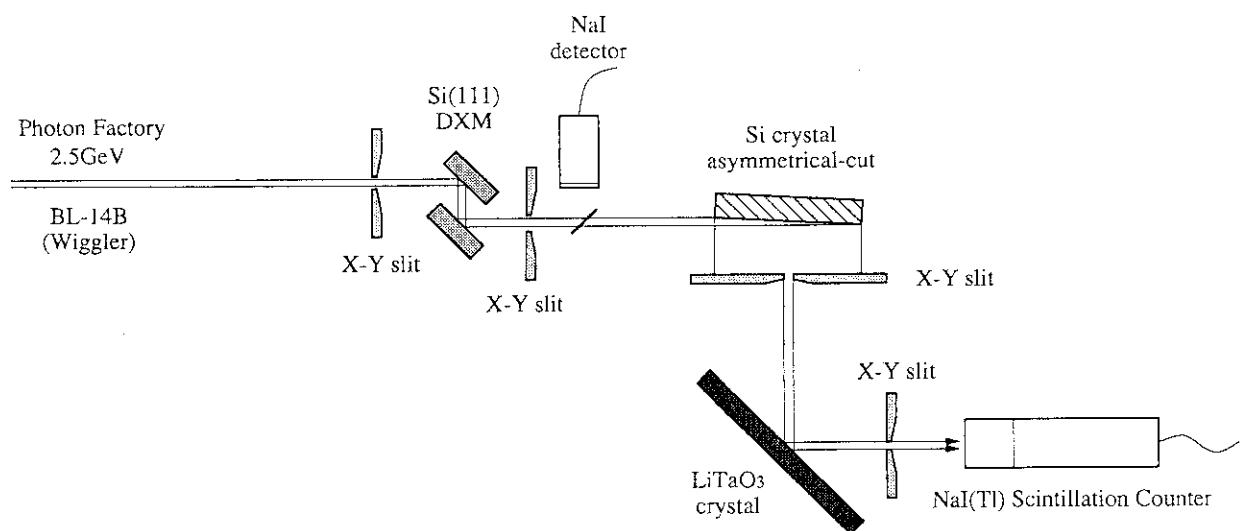
図3 実験装置の写真

Experimental Set-up for X-ray Topography



(a) X線トポグラフィーの撮影

Experimental Set-up for Measuring Rocking Curve



(b) 回折強度曲線の測定

図4 実験配置

Experimental Set-up for Measuring Reflectivity

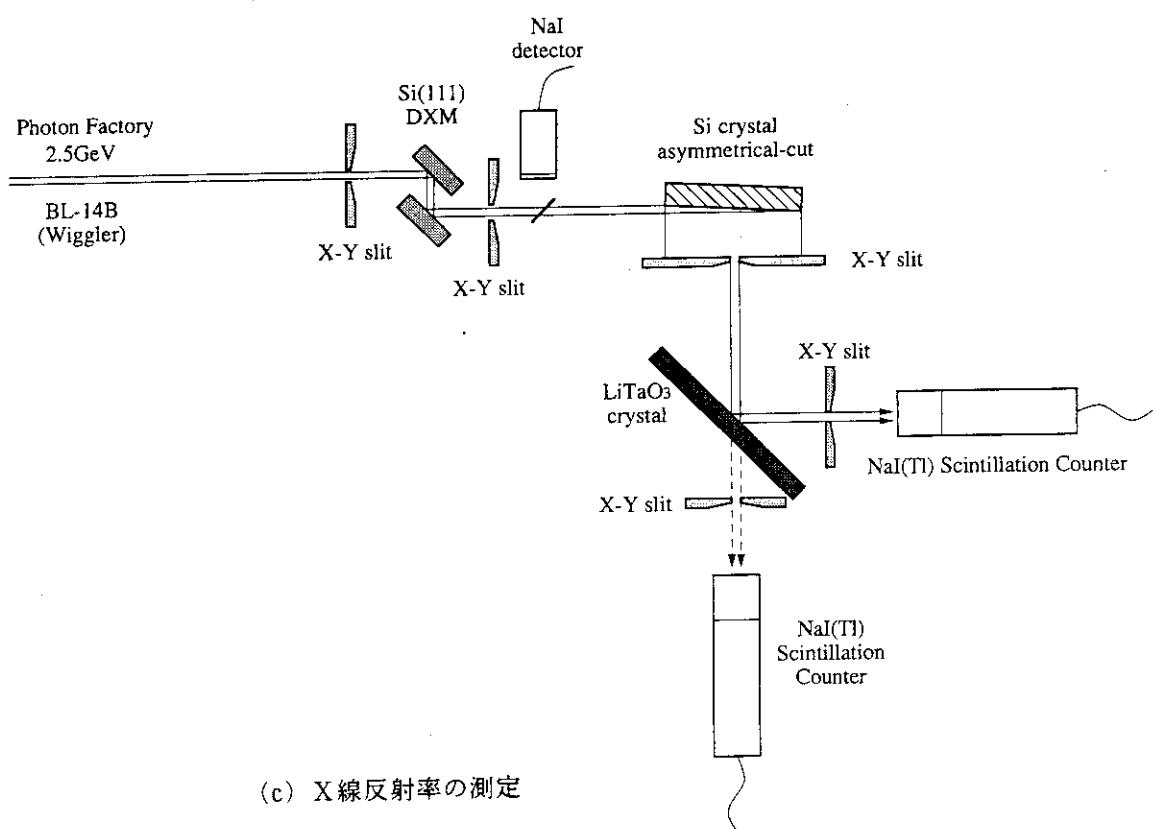


図4 実験配置

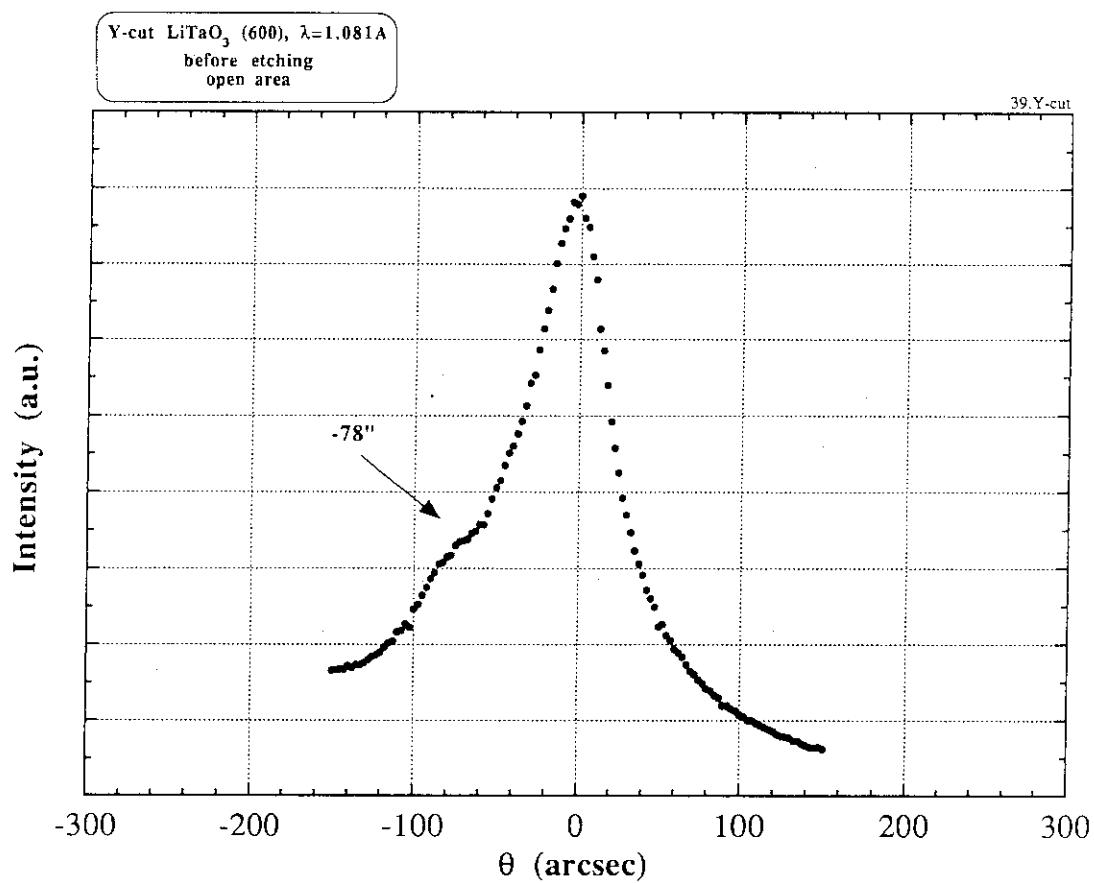
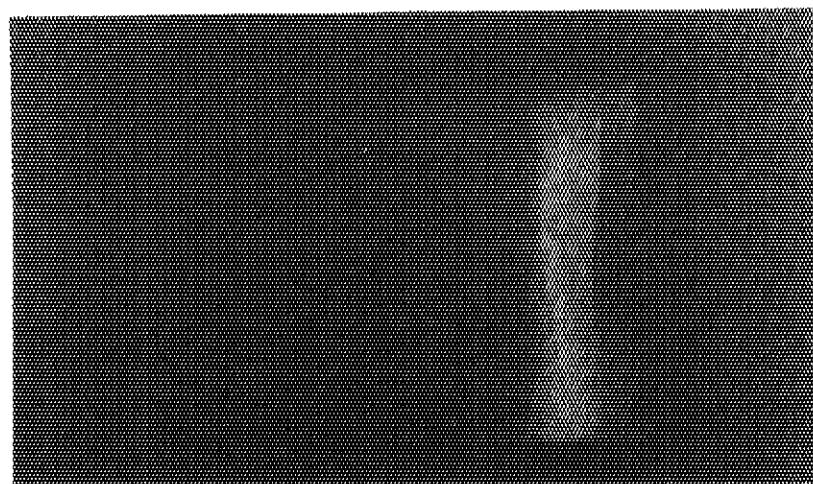
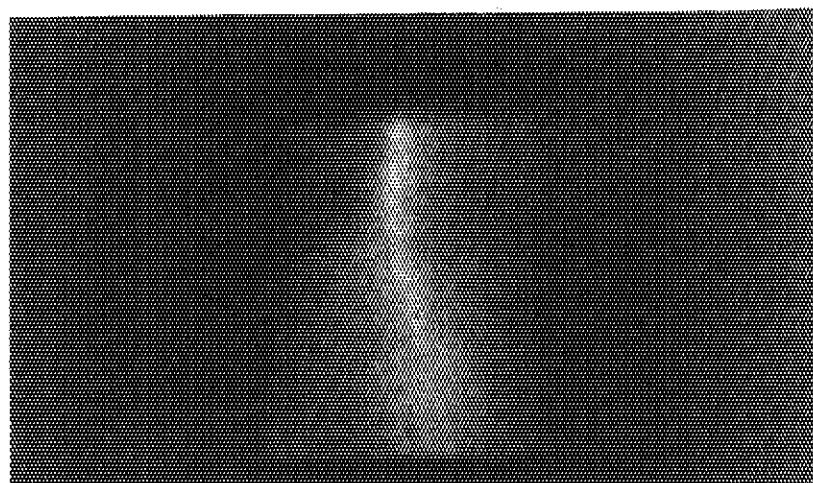


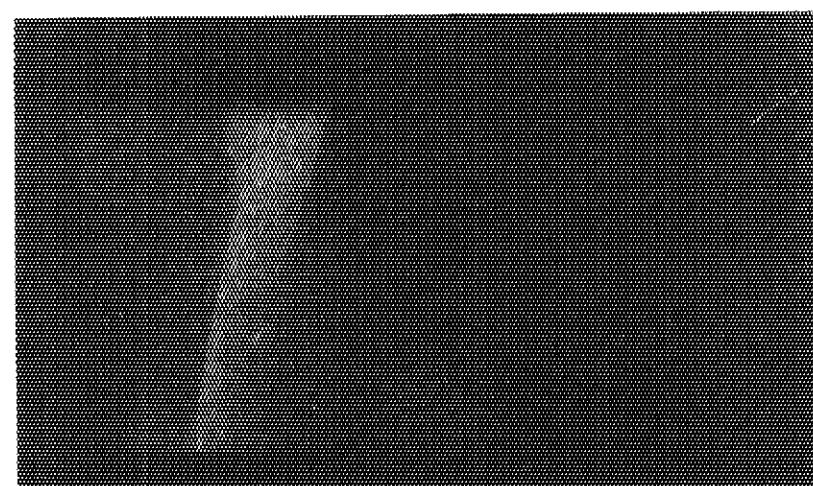
図5 LiTaO₃結晶(60・0)面のロッキングカーブ
 $\lambda=1.081\text{ \AA}$ ($E=11.45\text{ keV}$), Si非対称結晶(117面回折)への入射角 1.989°



(a) メインピークから-78秒の位置, 露光: 40分

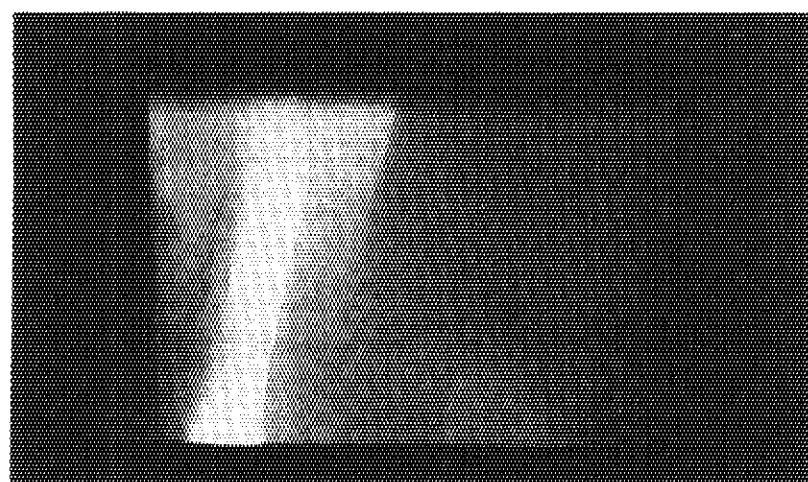


(b) メインピーク位置, 露光: 30分



(c) メインピークから25秒の位置, 露光: 40分

図 6 LiTaO₃結晶(60°0)面のトポグラフ写真
X線フィルム: H-80 (富士写真フィルム)



(d) メインピークから40秒の位置、露光：120分

図 6 LiTaO₃結晶(60°0)面のトポグラフ写真
X線フィルム：H-80（富士写真フィルム）

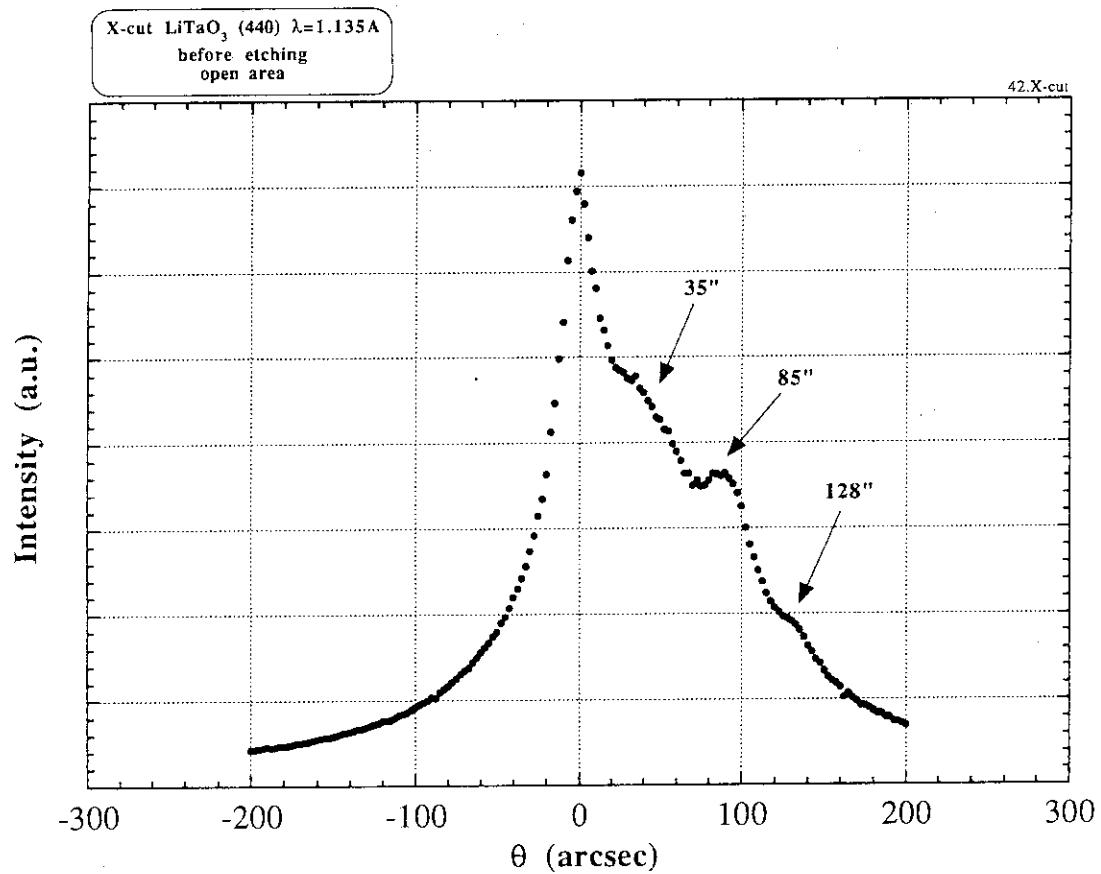
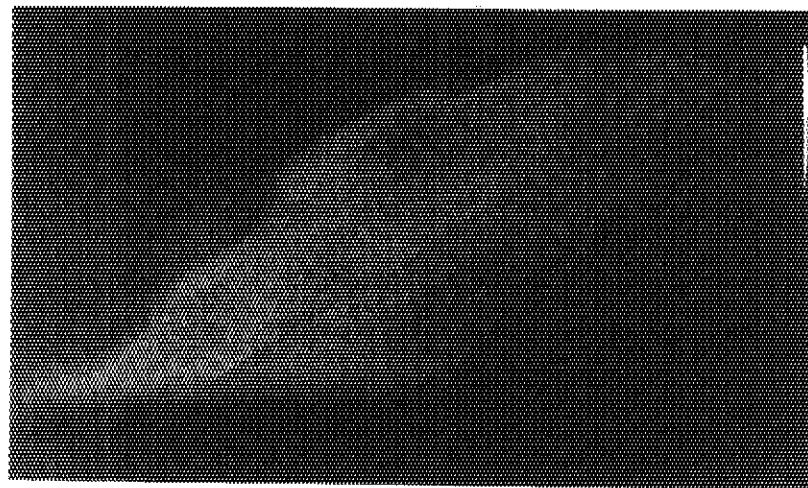
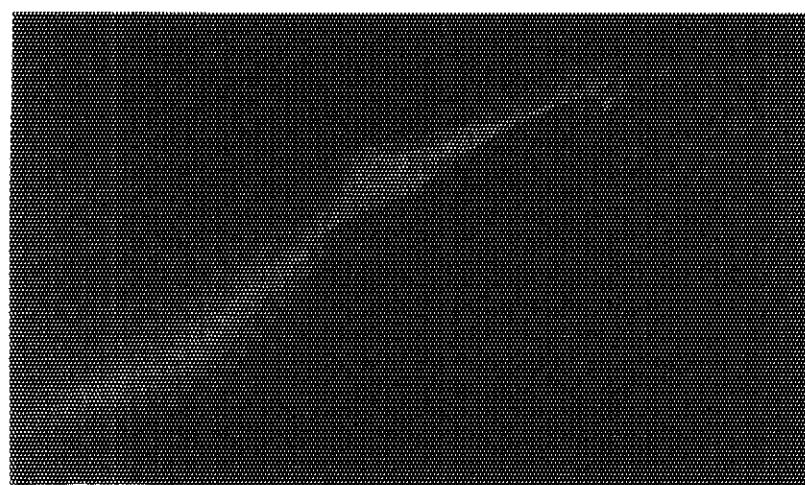


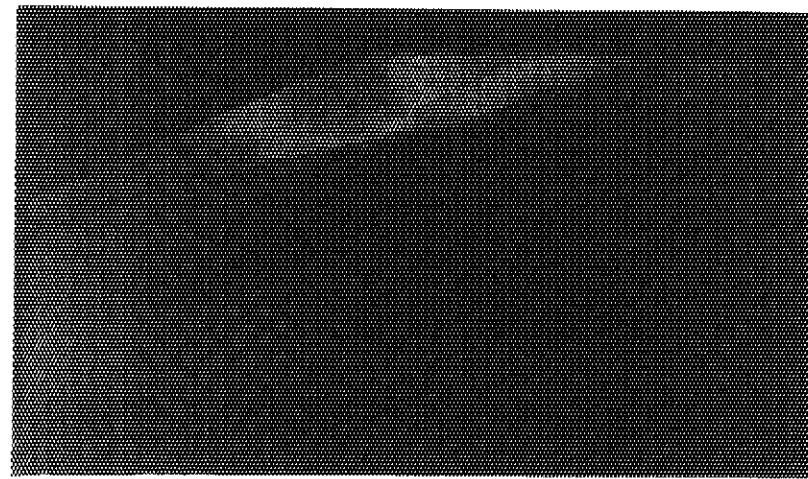
図7 LiTaO₃結晶(44・0)面のロッキングカーブ
 $\lambda = 1.135 \text{ \AA} (E = 10.92 \text{ keV})$, Si非対称結晶(800面回折)への入射角1.993°



(a) メインピーク位置, 露光: 30分



(b) メインピークから35秒の位置, 露光: 40分



(c) メインピークから85秒の位置, 露光: 40分

図8 LiTaO₃結晶(44・0)面のトポグラフ写真

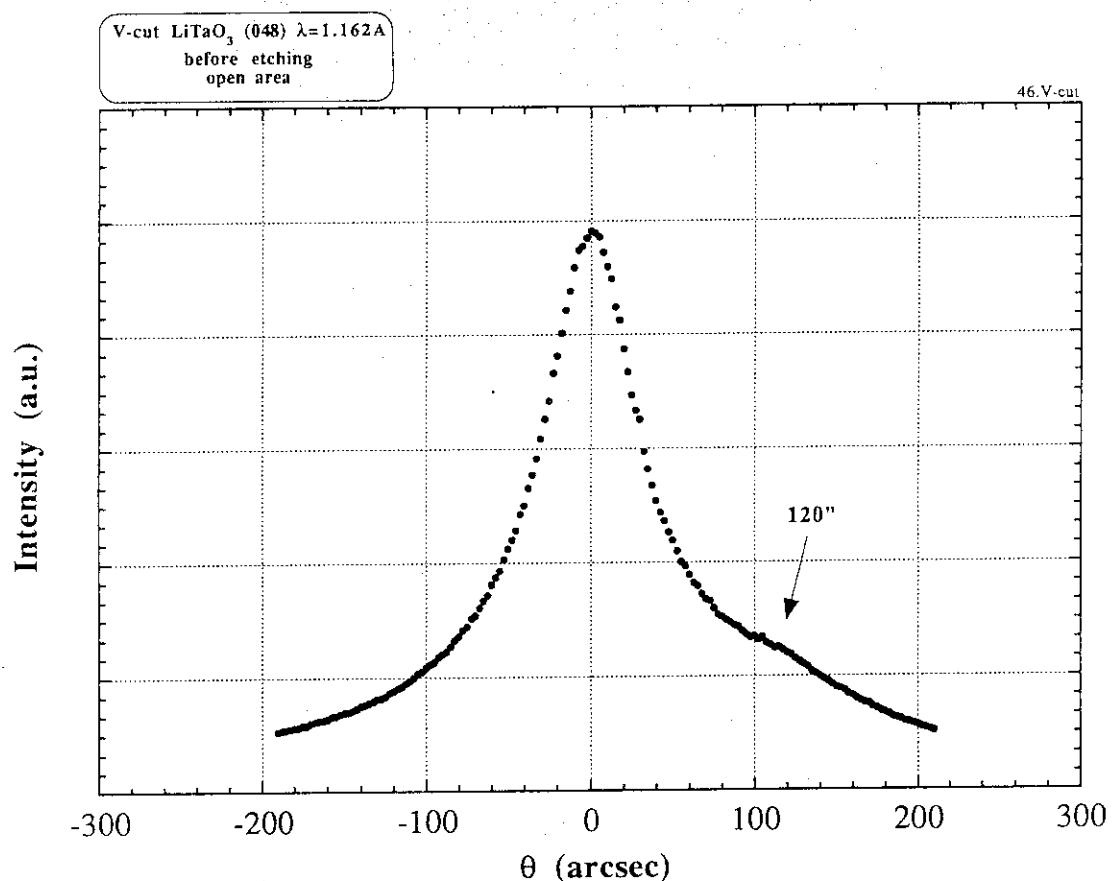
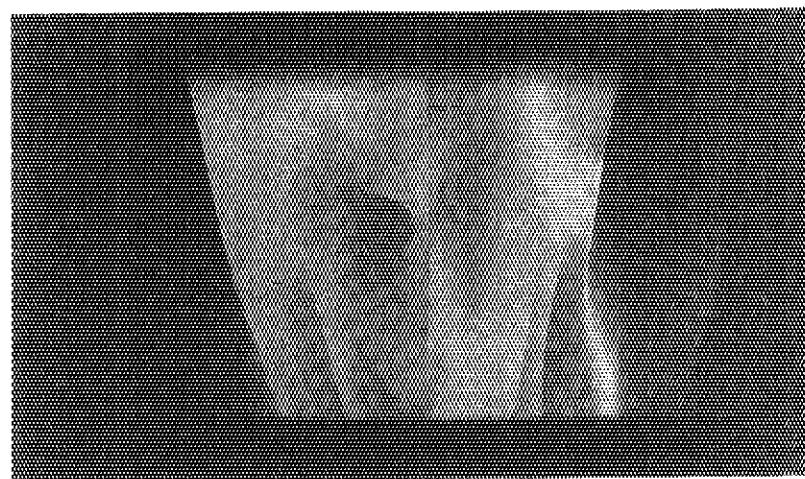


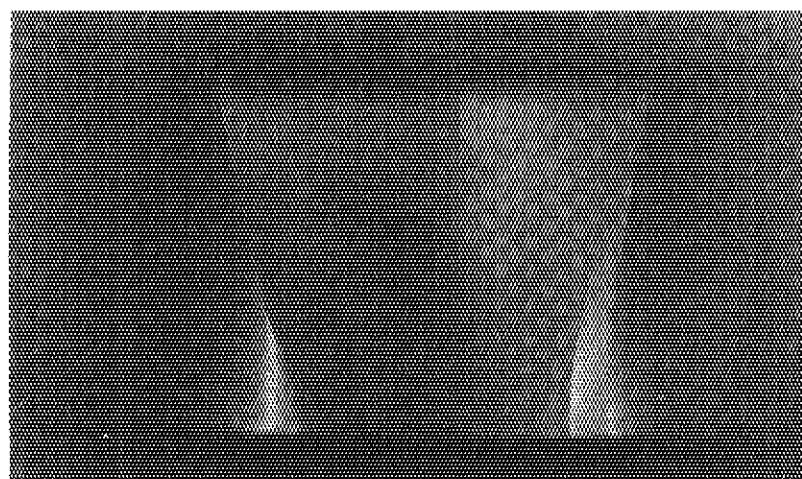
図9 LiTaO₃結晶(04・8)面のロッキングカーブ
 $\lambda = 1.162\text{ \AA}$ ($E = 10.67\text{ keV}$), Si非対称結晶(440面回折)への入射角 1.983°



(a) メインピークから-40秒の位置, 露光: 7.5 分

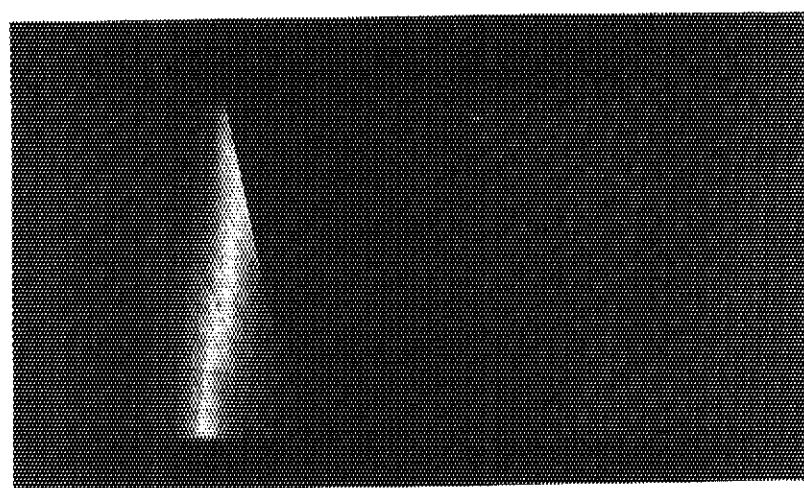


(b) メインピーク位置, 露光: 10分



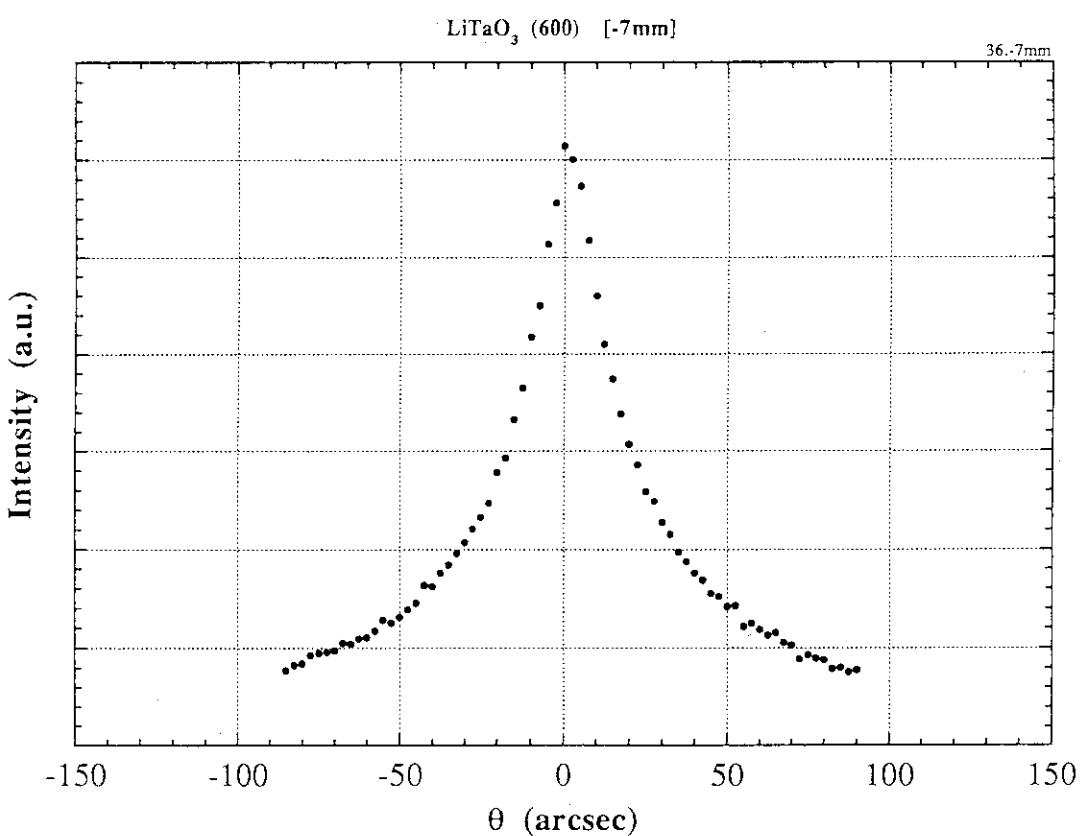
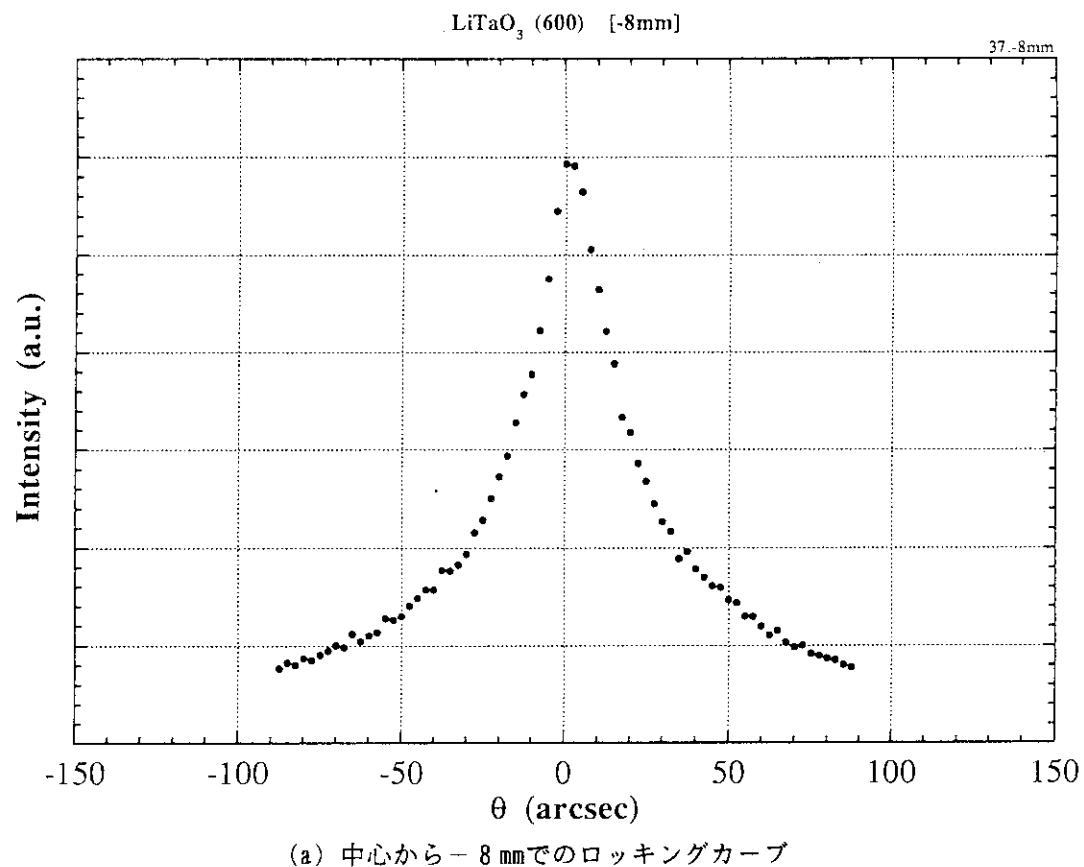
(c) メインピークから23秒の位置, 露光: 10分

図10 LiTaO₃結晶(04·8)面のトポグラフ写真



(d) メインピークから90秒の位置、露光：10分

図10 LiTaO₃結晶(04·8)面のトポグラフ写真

図11 LiTaO_3 結晶(60・0)面の微少領域のロッキングカーブ測定ビームの大きさは $1\text{mm} \times 1\text{mm}$

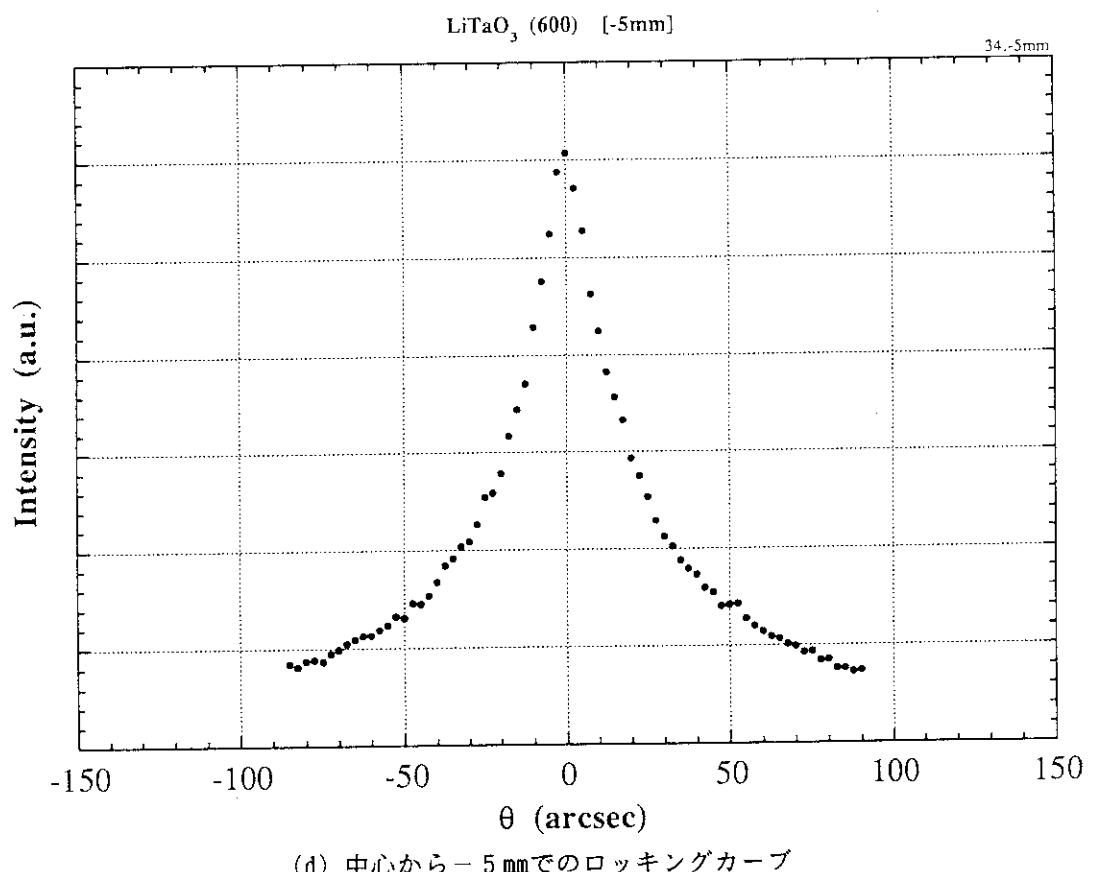
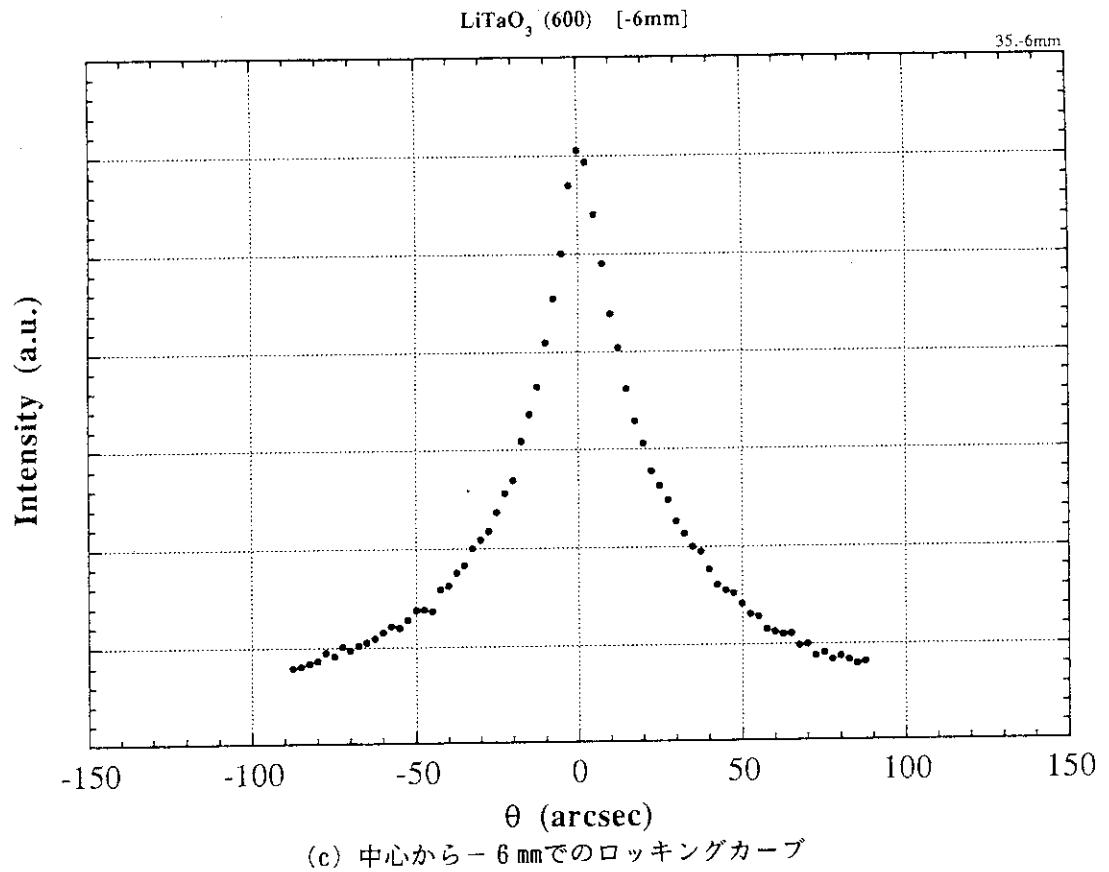


図11 LiTaO_3 結晶(60・0)面の微少領域のロッキングカーブ
測定ビームの大きさは $1\text{mm} \times 1\text{mm}$

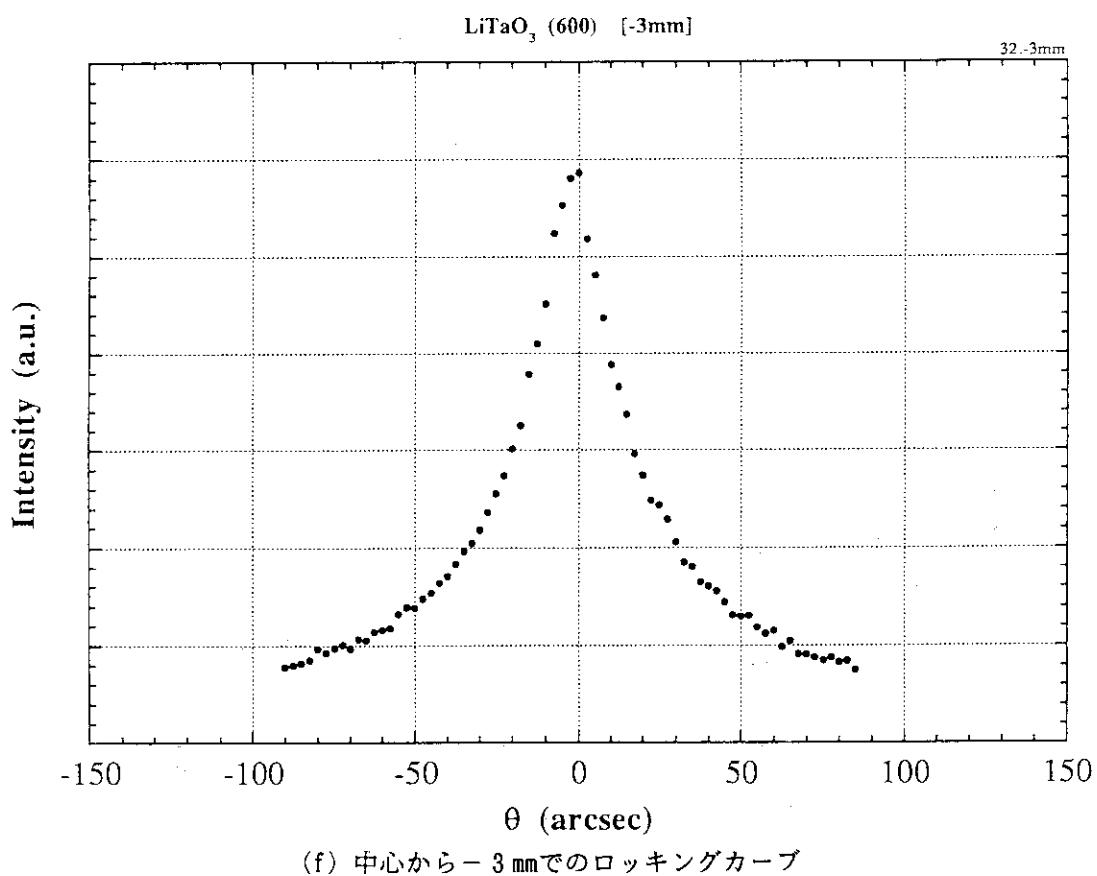
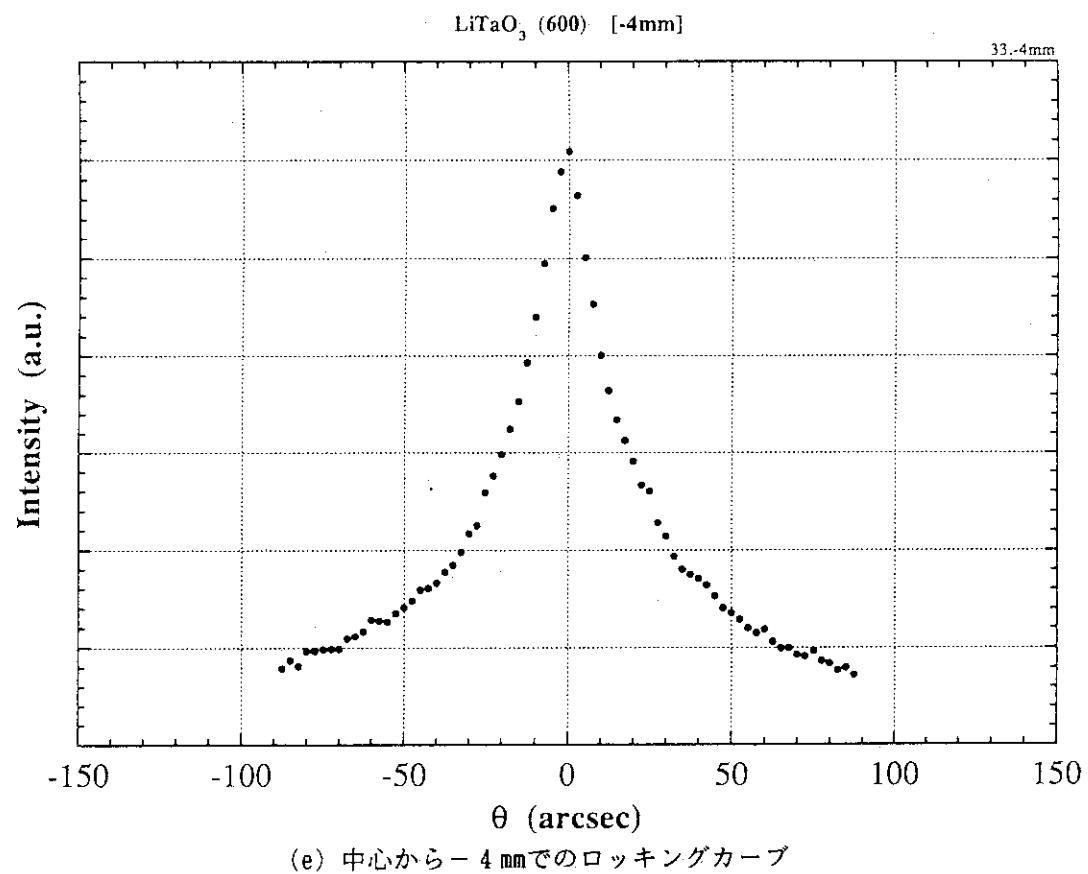


図11 LiTaO_3 結晶(60・0)面の微少領域のロッキングカーブ
測定ビームの大きさは $1\text{mm} \times 1\text{mm}$

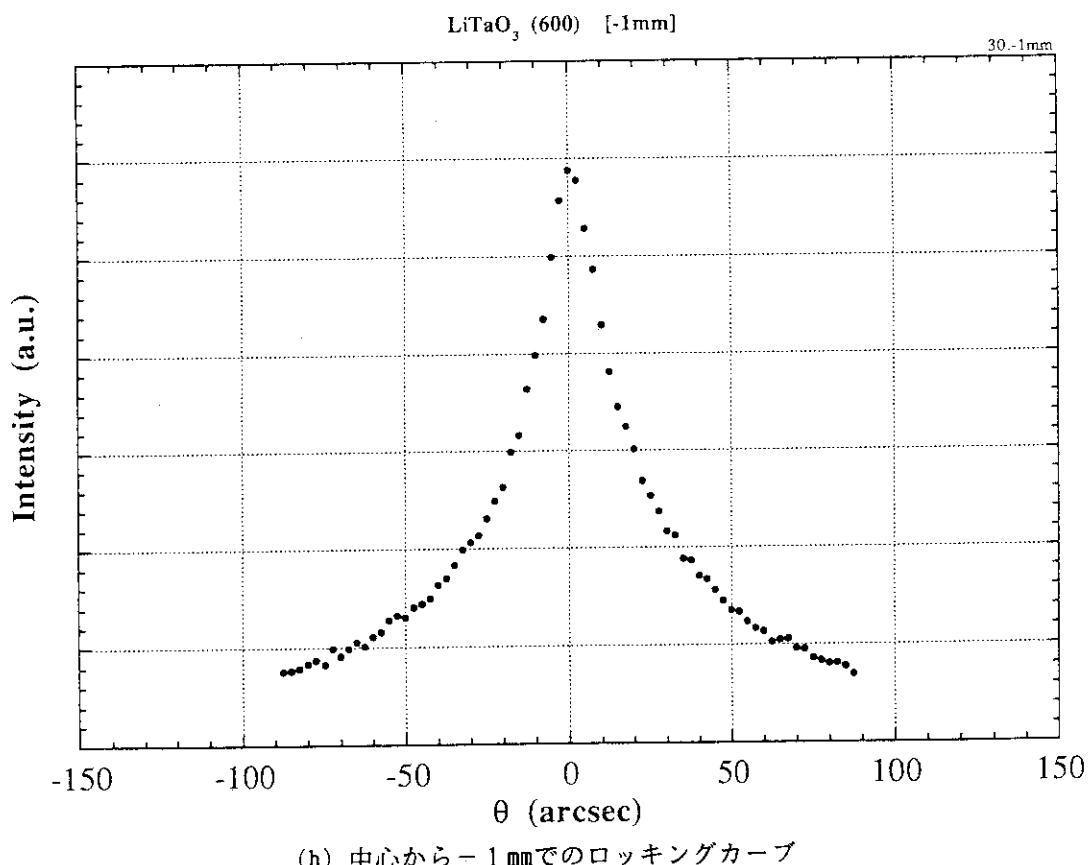
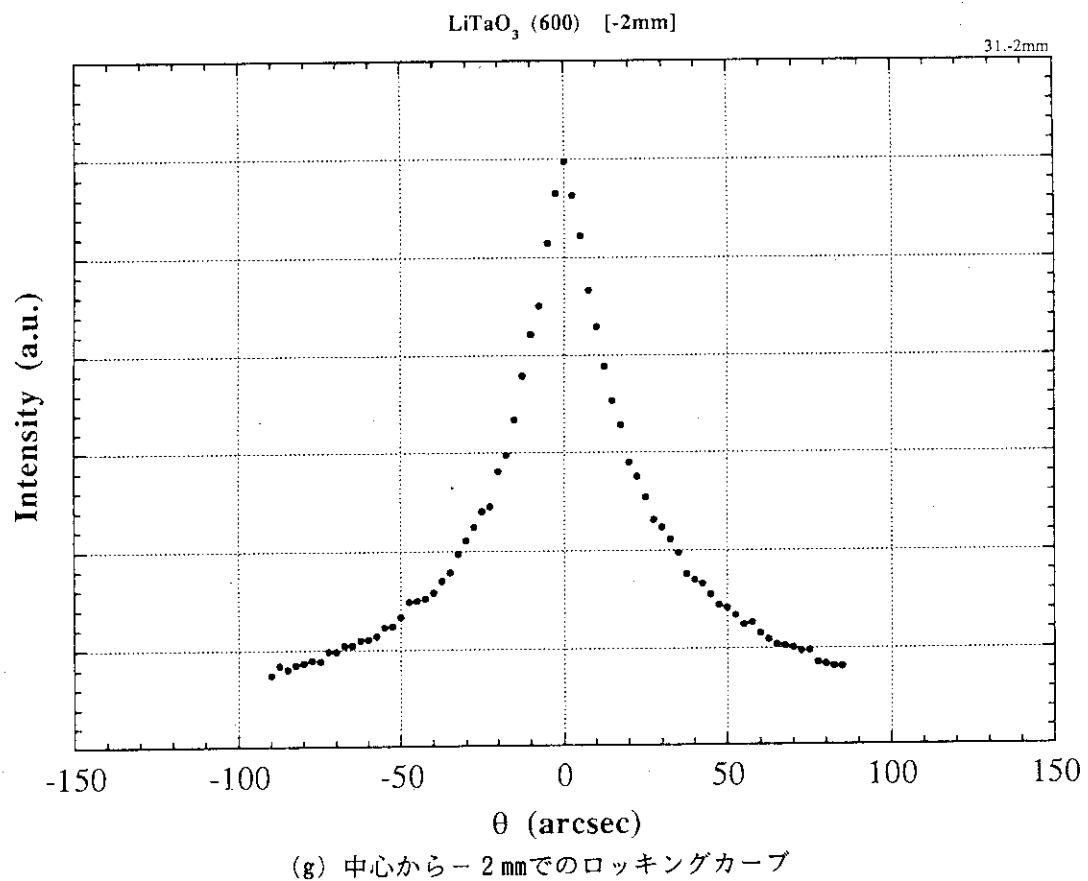


図11 LiTaO_3 結晶(60・0)面の微少領域のロッキングカーブ
測定ビームの大きさは $1\text{mm} \times 1\text{mm}$

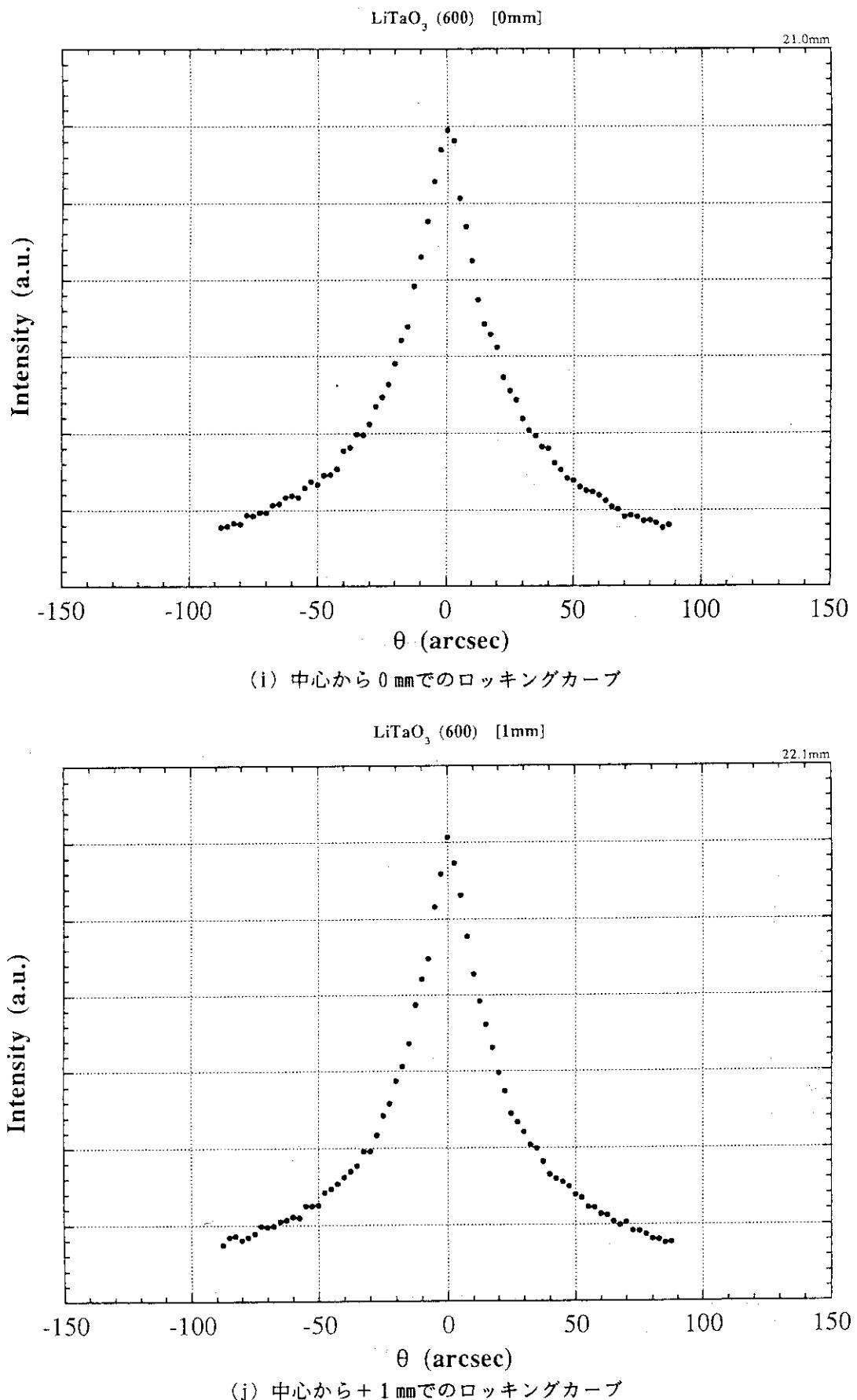
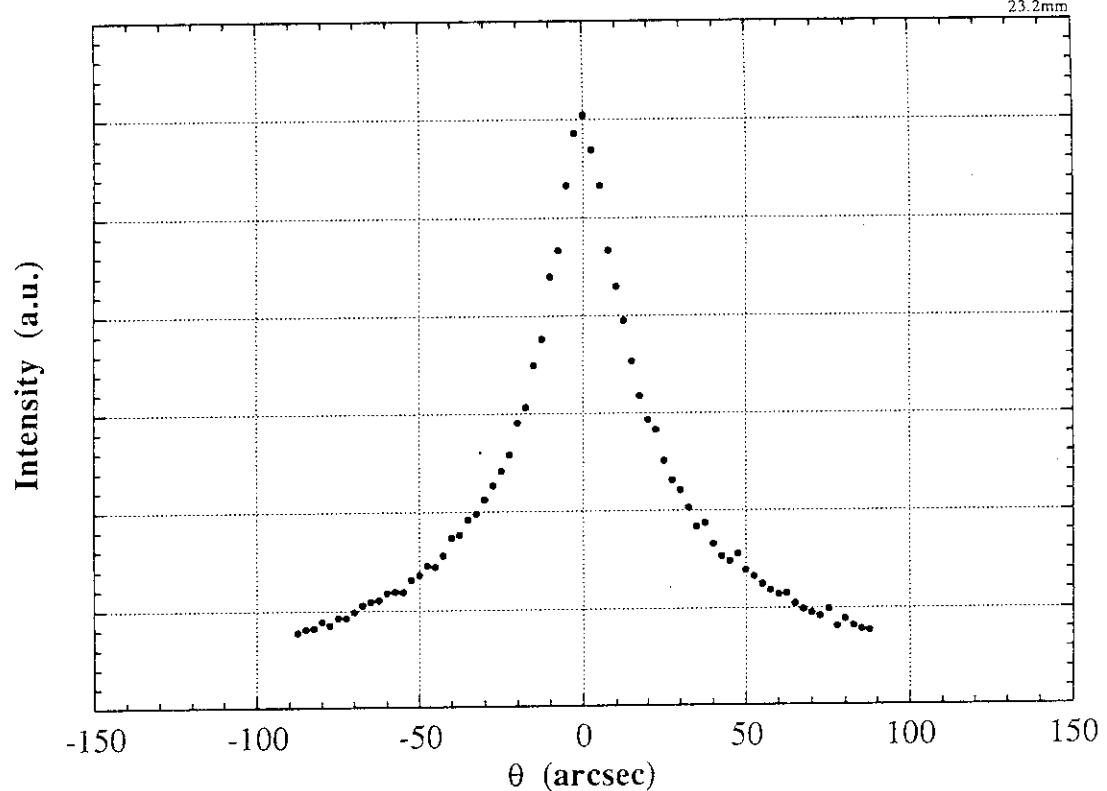


図11 LiTaO_3 結晶(60・0)面の微少領域のロッキングカーブ
測定ビームの大きさは $1\text{mm} \times 1\text{mm}$

LiTaO₃ (600) [2mm]

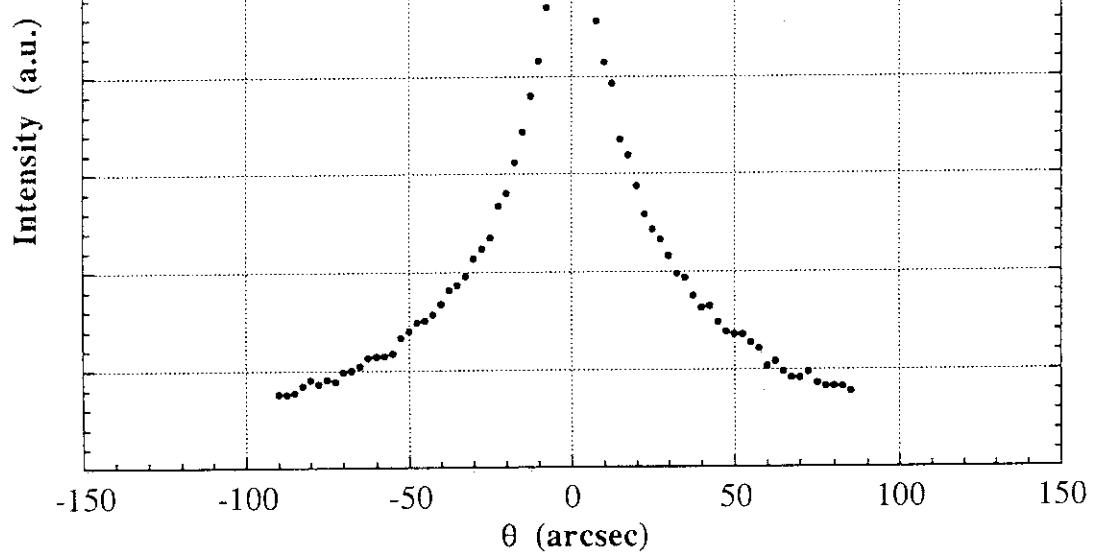
23.2mm



(k) 中心から + 2 mmでのロッキングカーブ

LiTaO₃ (600) [3mm]

24.3mm



(1) 中心から + 3 mmでのロッキングカーブ

図11 LiTaO_3 結晶(60・0)面の微少領域のロッキングカーブ測定ビームの大きさは $1\text{mm} \times 1\text{mm}$

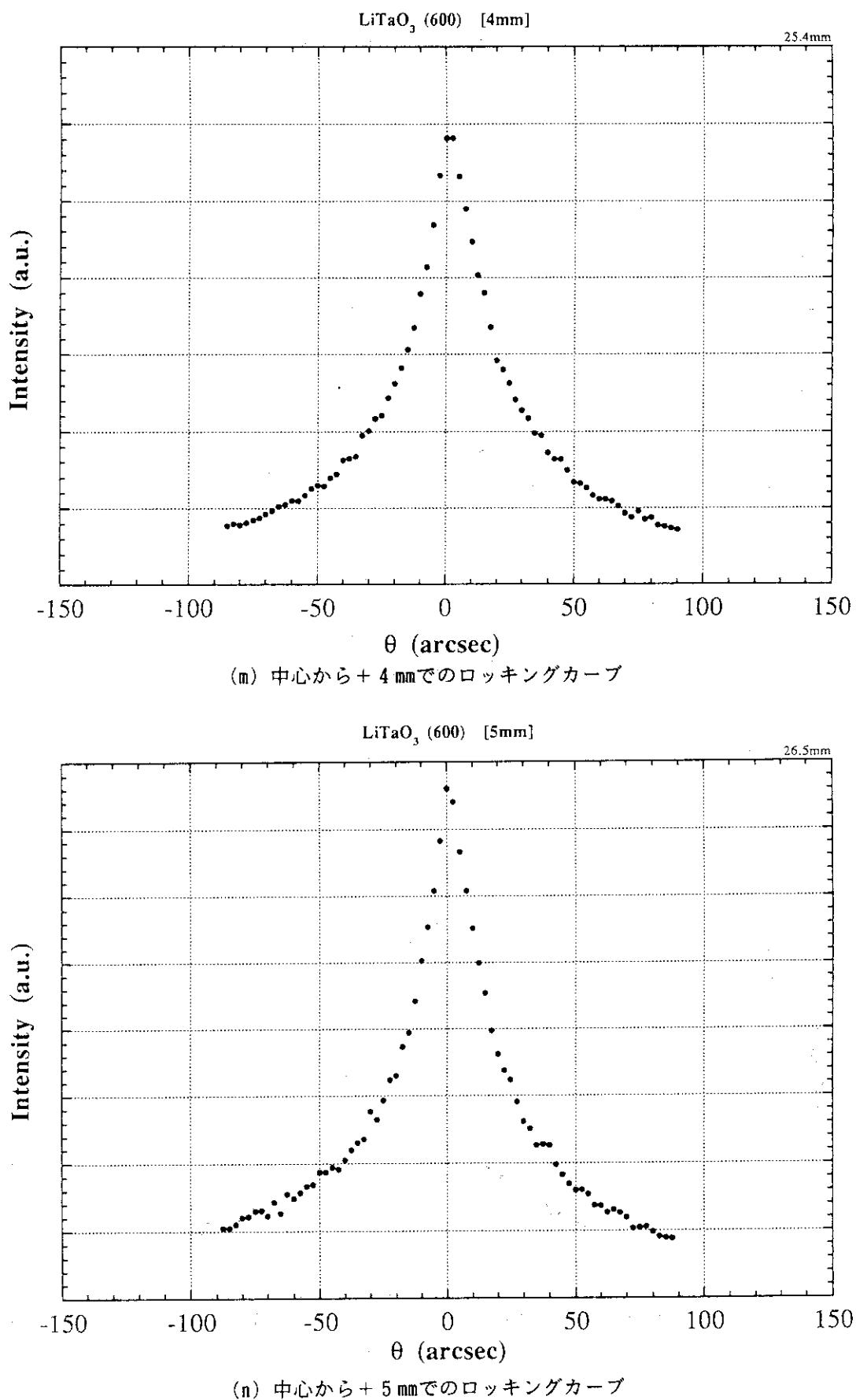
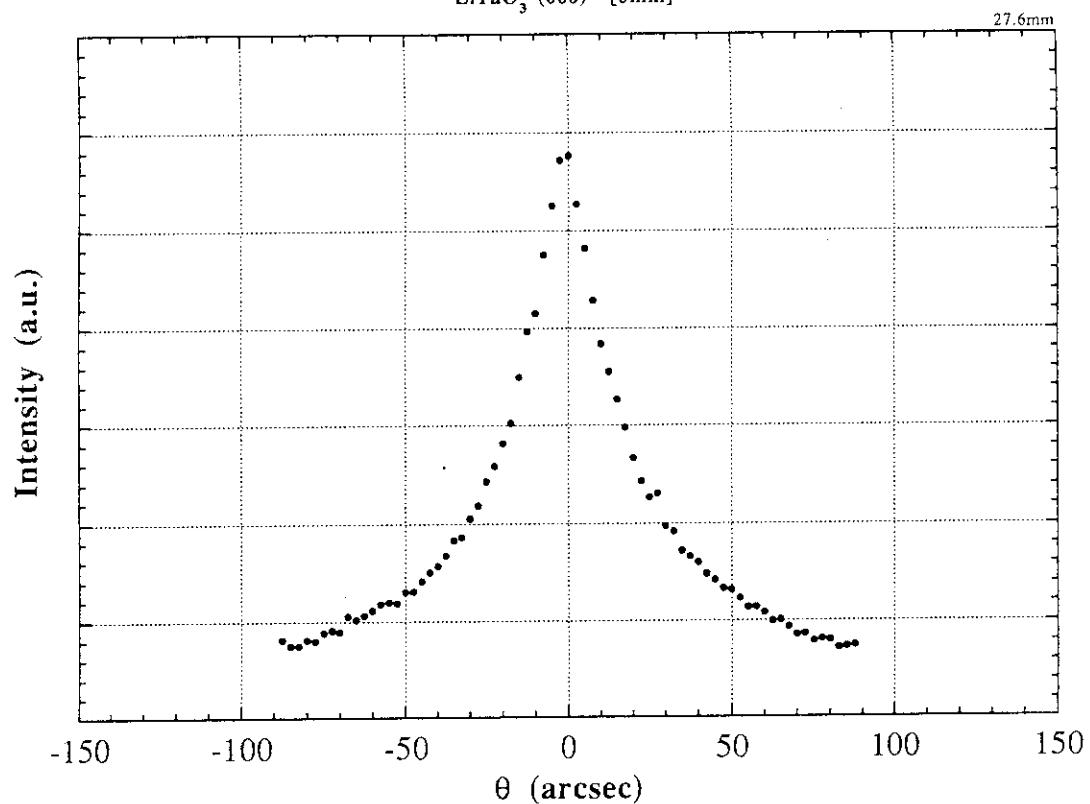
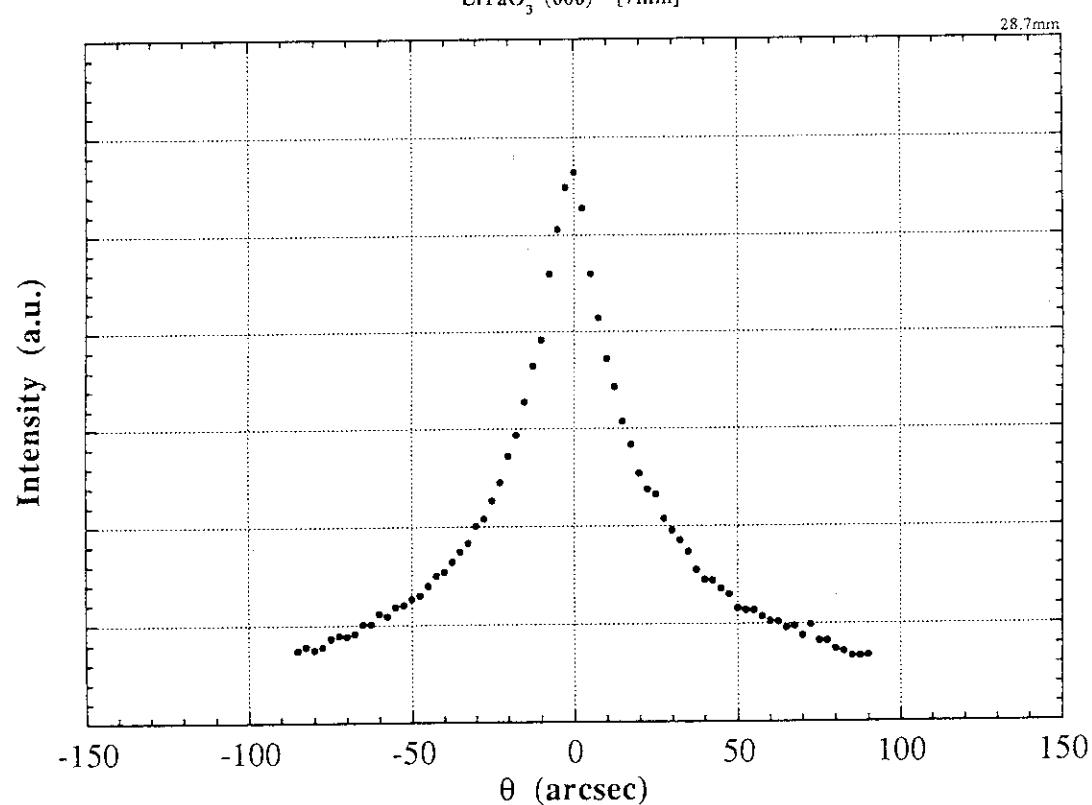


図11 LiTaO_3 結晶(60・0)面の微少領域のロッキングカーブ
測定ビームの大きさは $1\text{mm} \times 1\text{mm}$

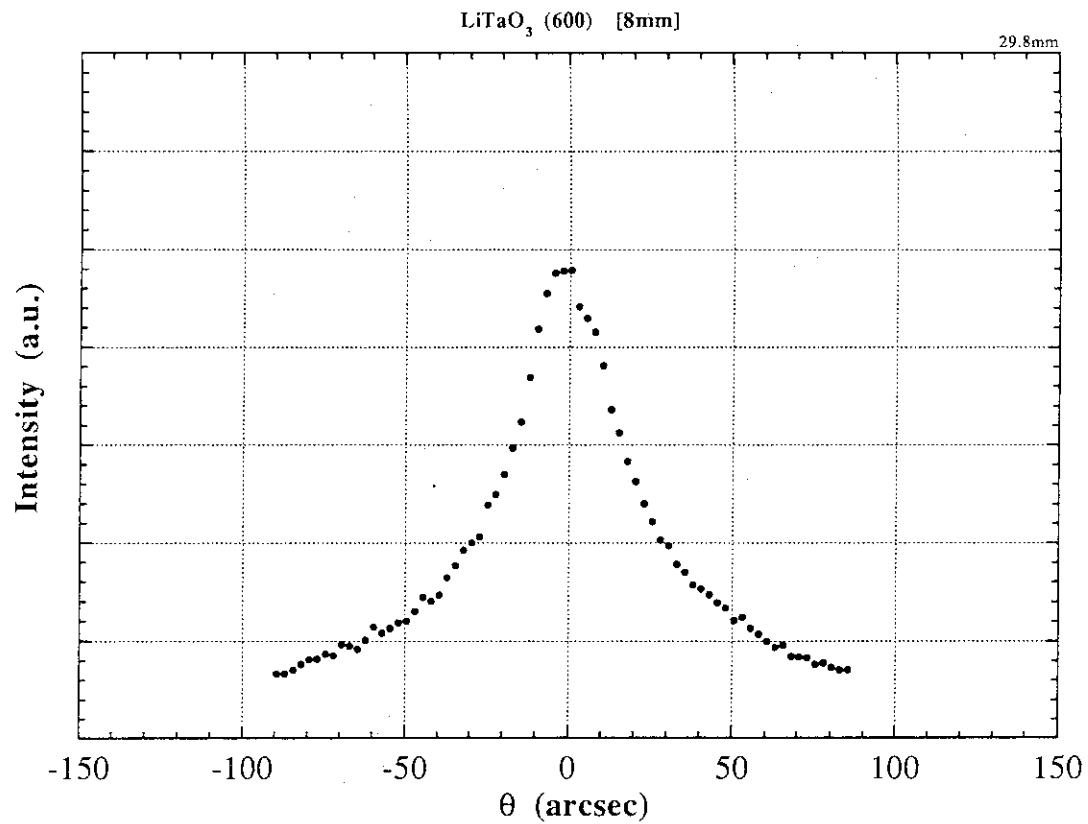
LiTaO_3 (600) [6mm]

(o) 中心から+ 6 mmでのロッキングカーブ

 LiTaO_3 (600) [7mm]

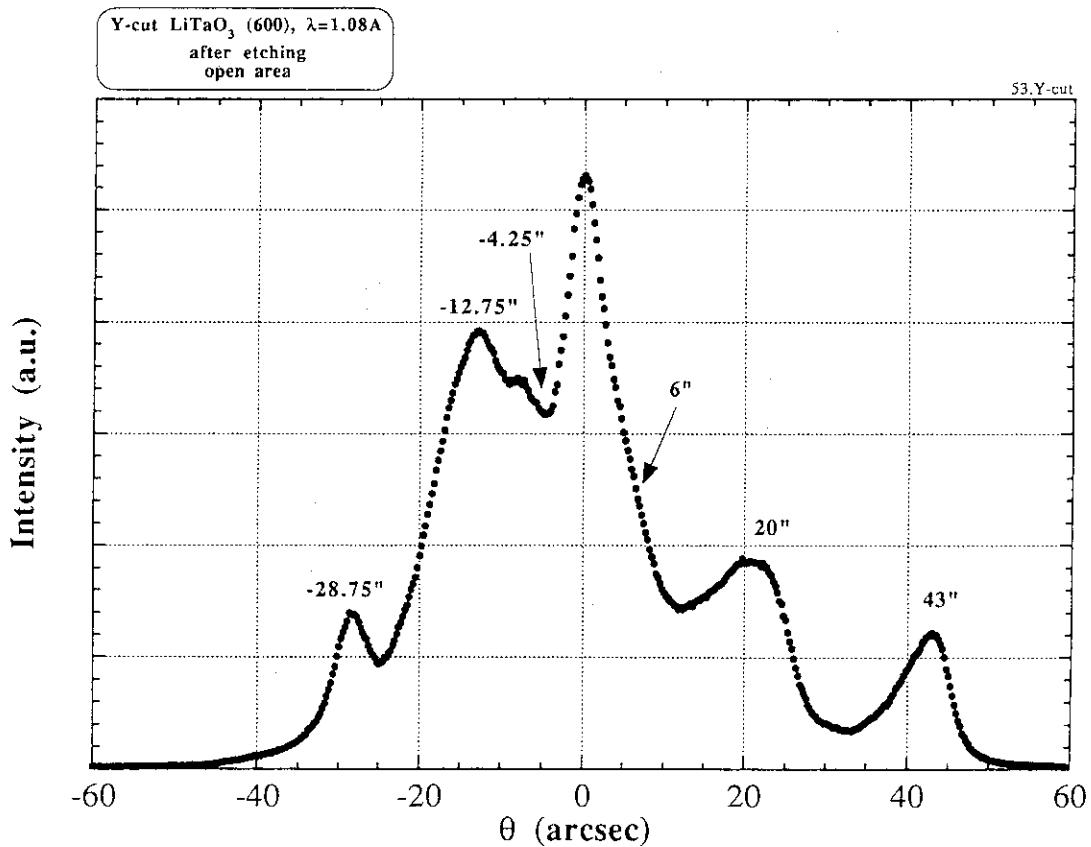
(p) 中心から+ 7 mmでのロッキングカーブ

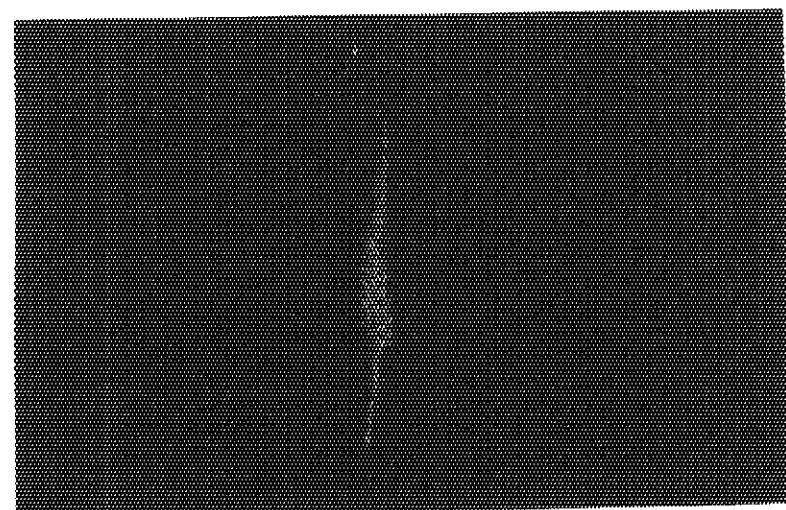
図11 LiTaO_3 結晶(60・0)面の微少領域のロッキングカーブ
測定ビームの大きさは 1mm×1mm



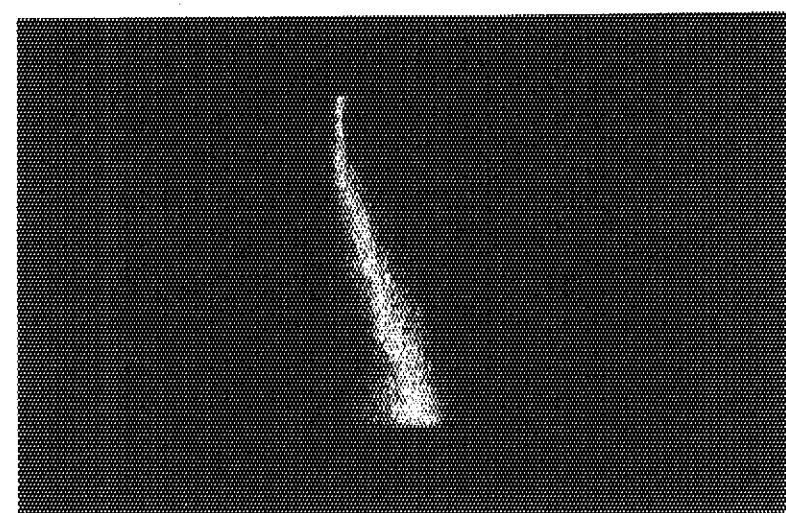
(q) 中心から + 8 mmでのロッキングカーブ

図11 LiTaO_3 結晶(60・0)面の微少領域のロッキングカーブ
測定ビームの大きさは 1mm×1mm

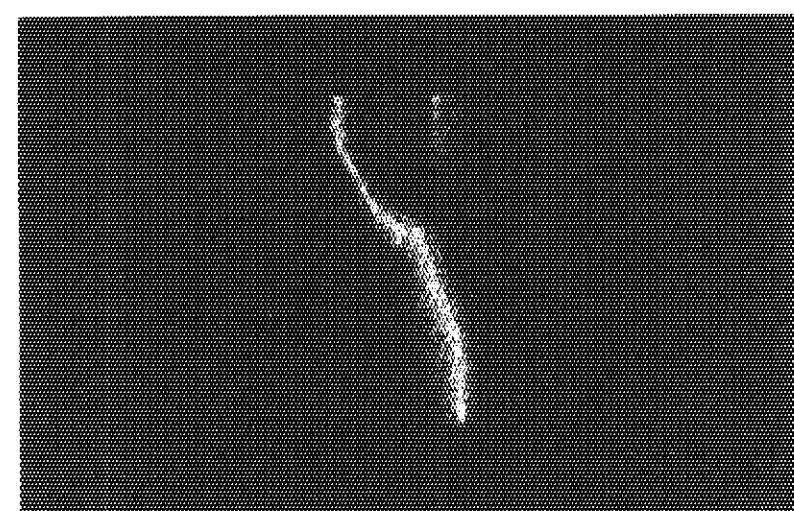
図12 エッティングをした LiTaO_3 結晶(60・0)面のロッキングカーブ（解放視野）



(a) メインピークから-28.8秒の位置, 露光: 10分

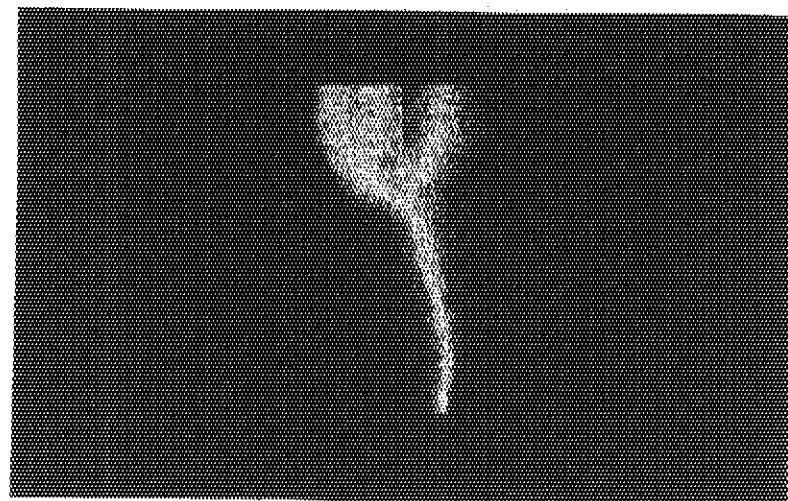


(b) メインピークから-12.8秒の位置, 露光: 10分

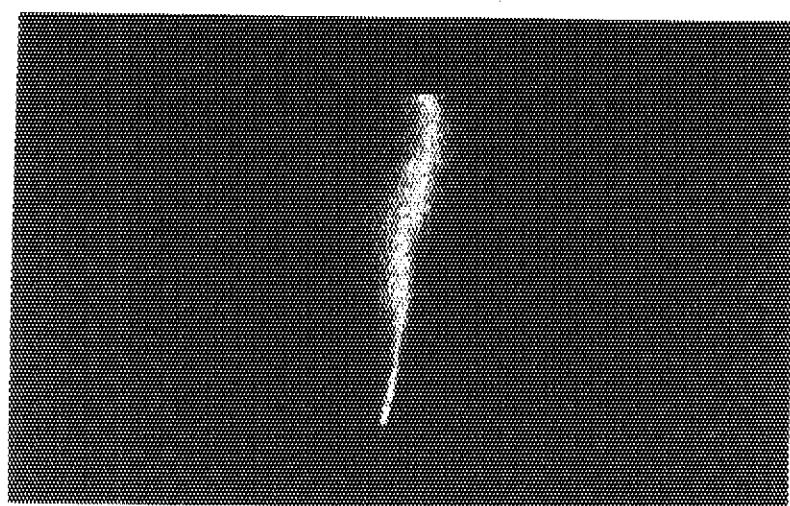


(c) メインピークから-4.3秒の位置, 露光: 10分

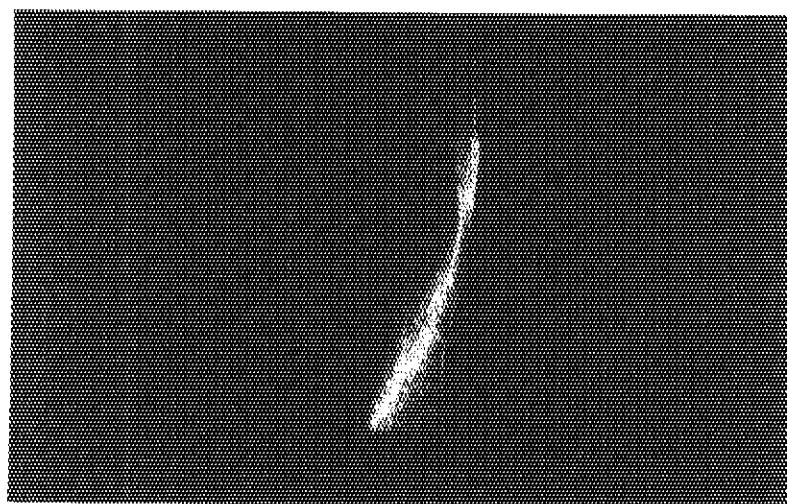
図13 エッティングをしたLiTaO₃結晶(60°0')面のトポグラフ



(d) メインピーク位置, 露光 : 10分

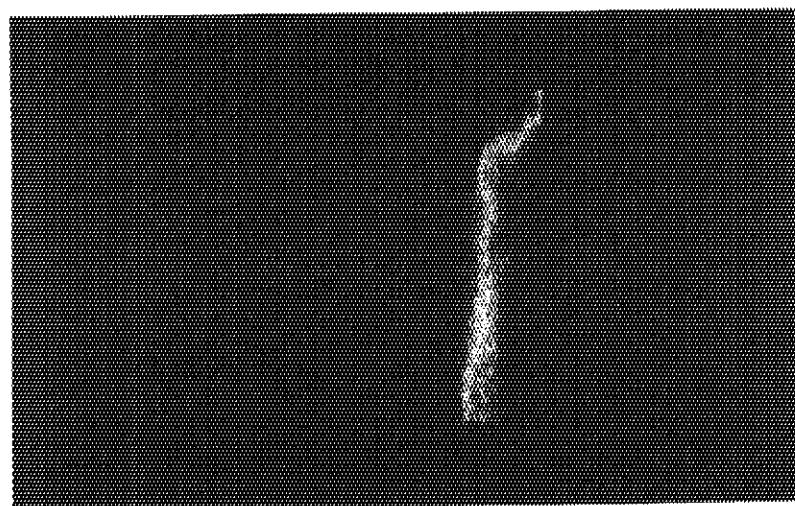


(e) メインピークから 6 秒の位置, 露光 : 10分



(f) メインピークから20秒の位置, 露光 : 10分

図13 エッティングをしたLiTaO₃結晶(60°0')面のトポグラフ



(g) メインピークから43秒の位置、露光：10分

図13 エッティングをしたLiTaO₃結晶(60°0)面のトポグラフ

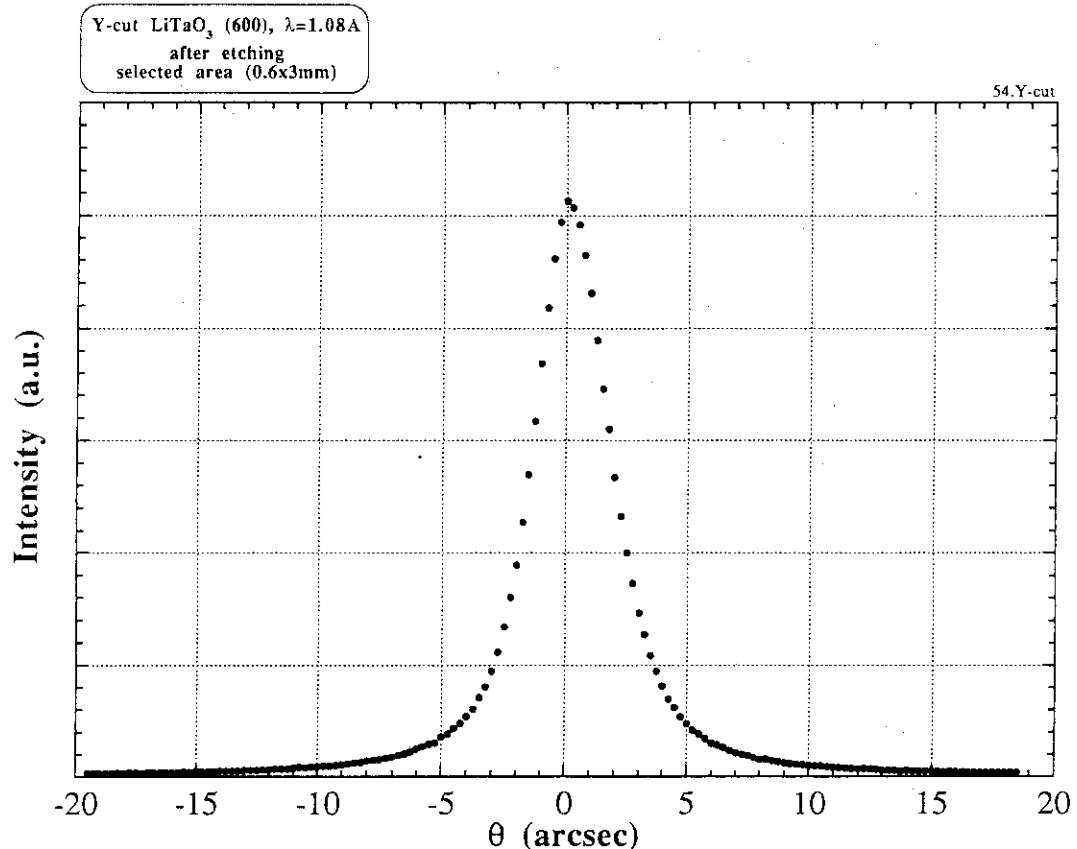


図14 エッティングをしたLiTaO₃結晶(60・0)面のロッキングカーブ（制限視野）
ビームサイズ：0.6mm×3mm

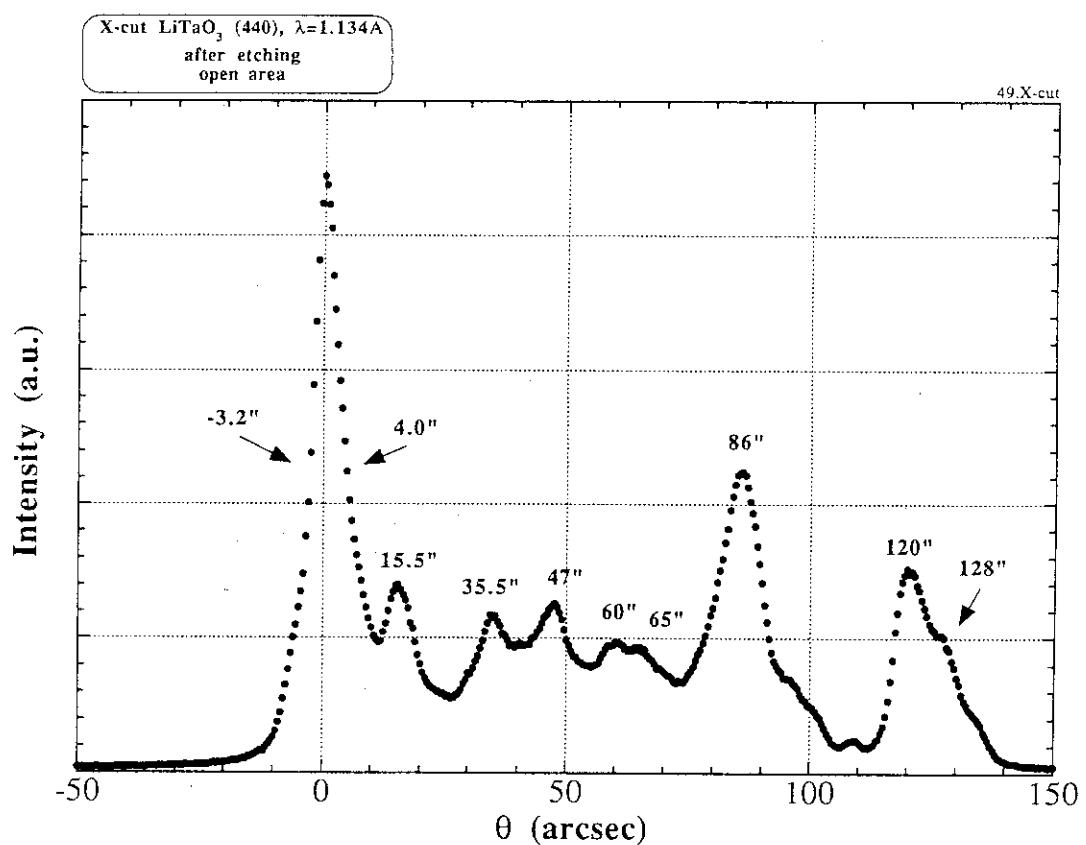
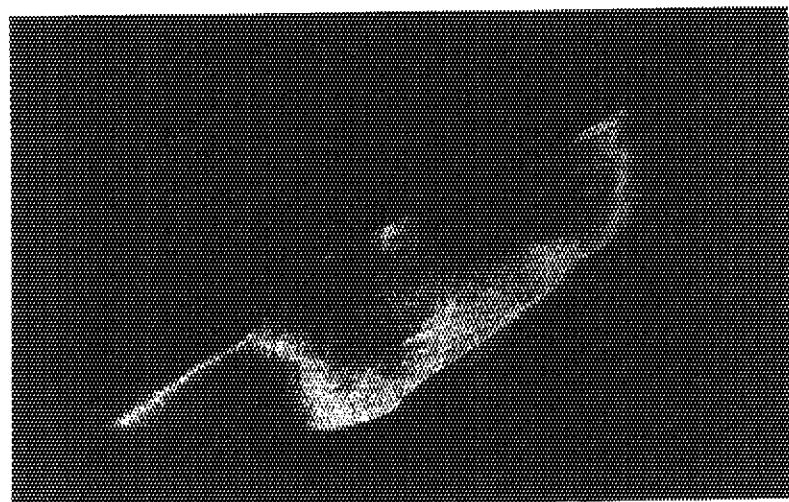
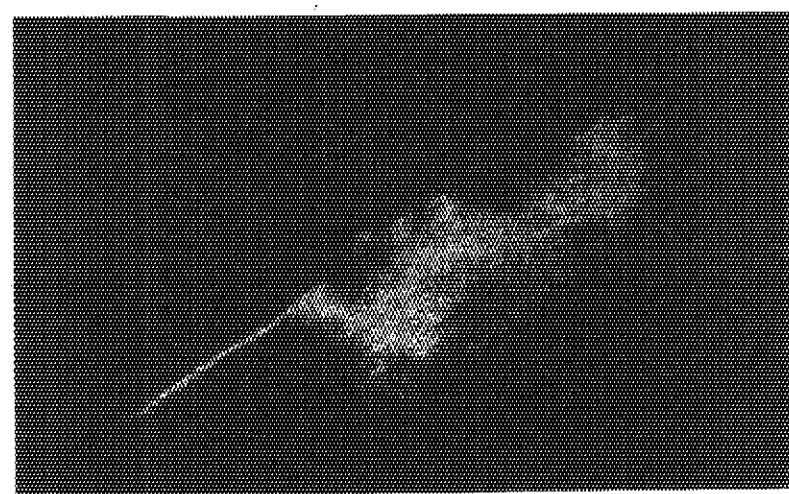


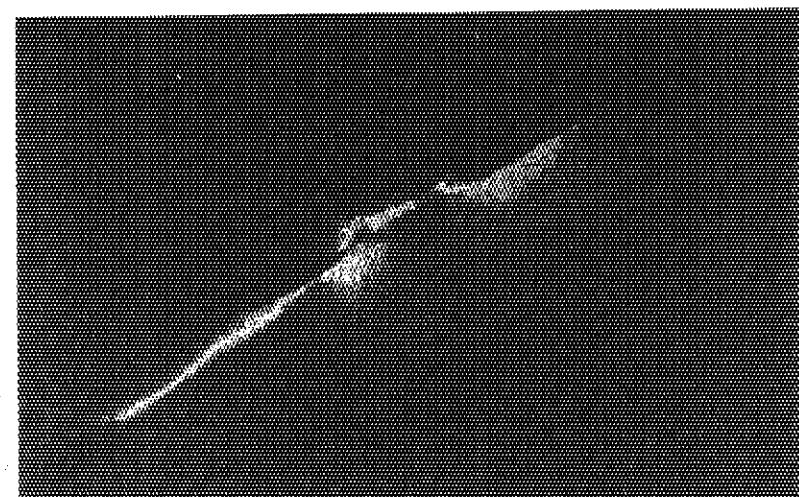
図15 エッティングをしたLiTaO₃結晶(44・0)面のロッキングカーブ（解放視野）



(a) メインピークから-3.2秒の位置, 露光:10分

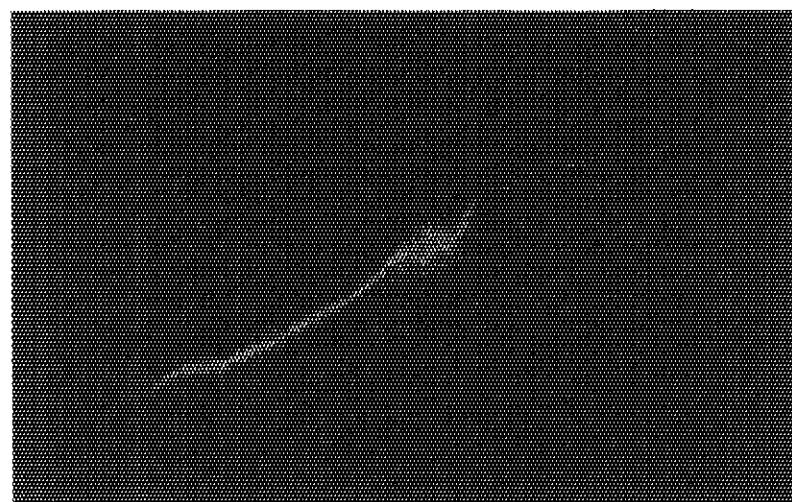


(b) メインピーク位置, 露光:10分



(c) メインピークから4秒の位置, 露光:10分

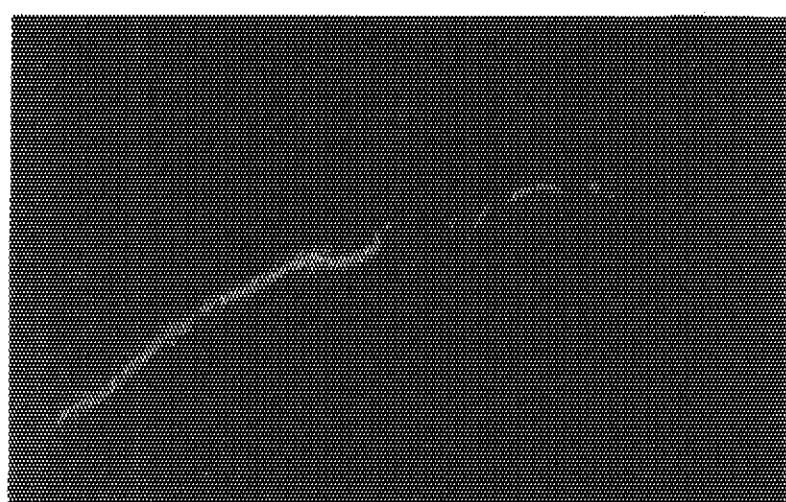
図16 エッティングをしたLiTaO₃結晶(44・0)面のトポグラフ



(d) メインピークから15.5秒の位置, 露光: 10分

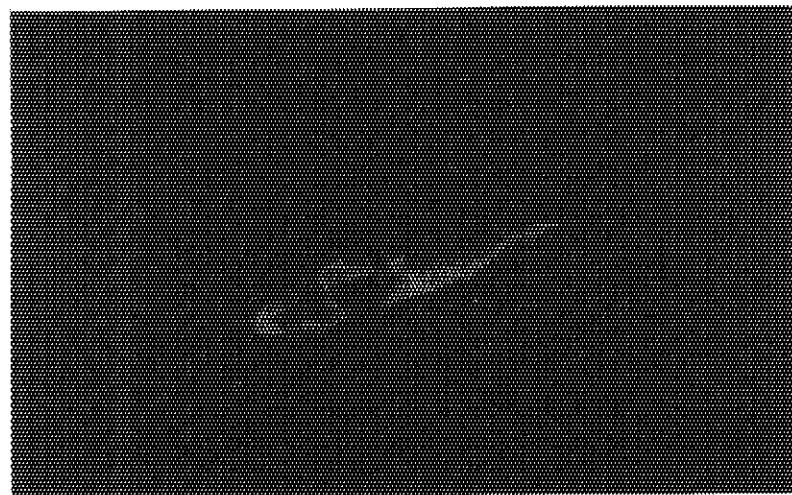


(e) メインピークから35.5秒の位置, 露光: 10分

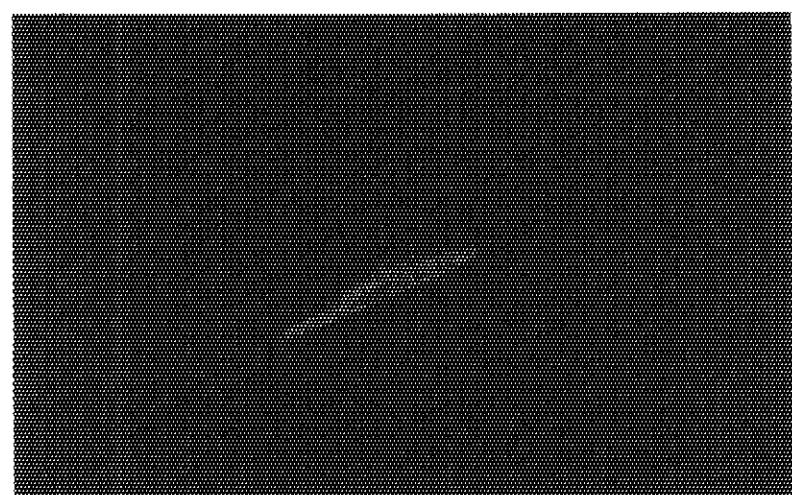


(f) メインピークから47秒の位置, 露光: 10分

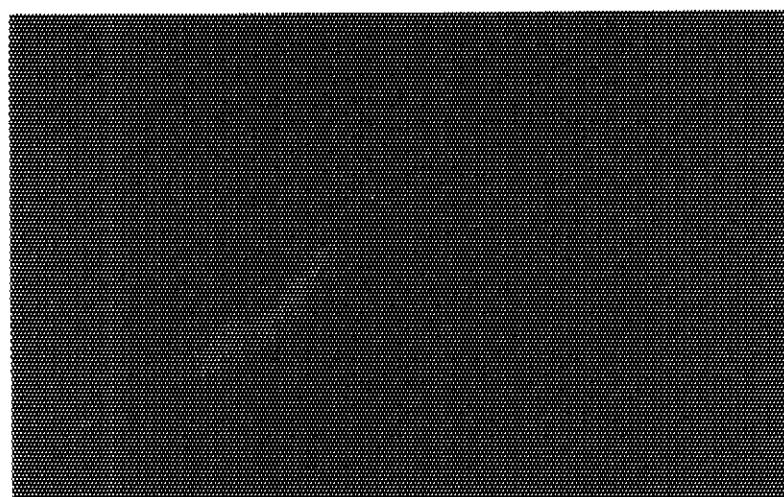
図16 エッチングをしたLiTaO₃結晶(44°0')面のトポグラフ



(g) メインピークから60秒の位置, 露光: 10分



(h) メインピークから86秒の位置, 露光: 10分



(i) メインピークから120秒の位置, 露光: 10分

図16 エッティングをしたLiTaO₃結晶(44°0')面のトポグラフ

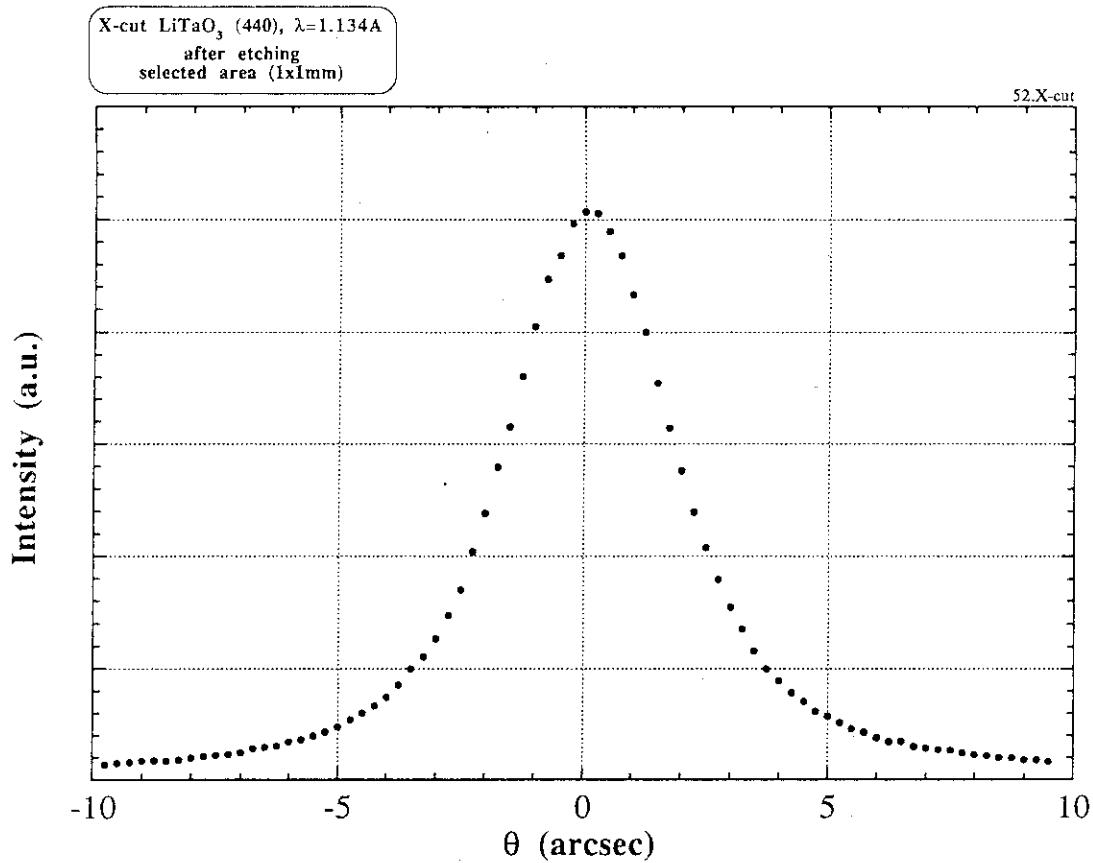


図17 エッティングをしたLiTaO₃結晶(44・0)面のロッキングカーブ（制限視野）
ビームサイズ：0.6mm×3mm

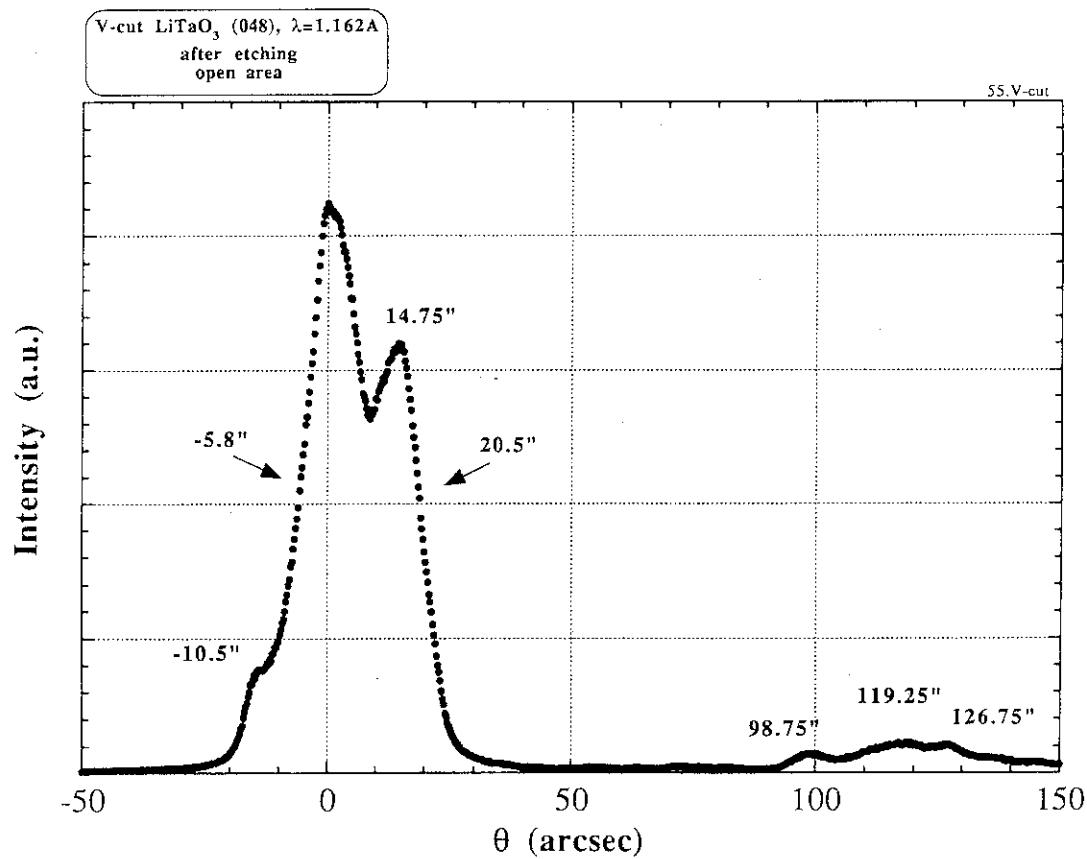
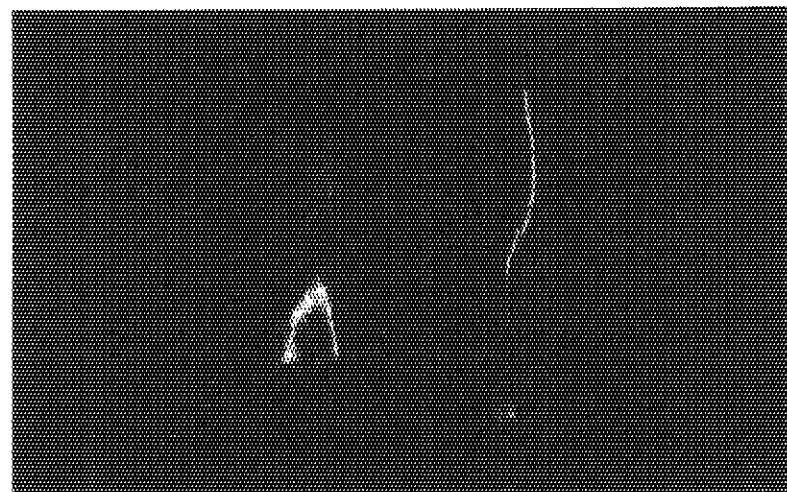
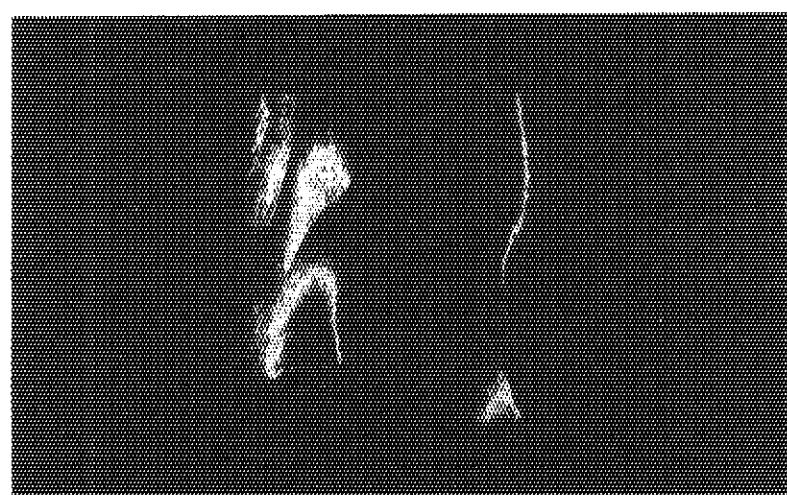


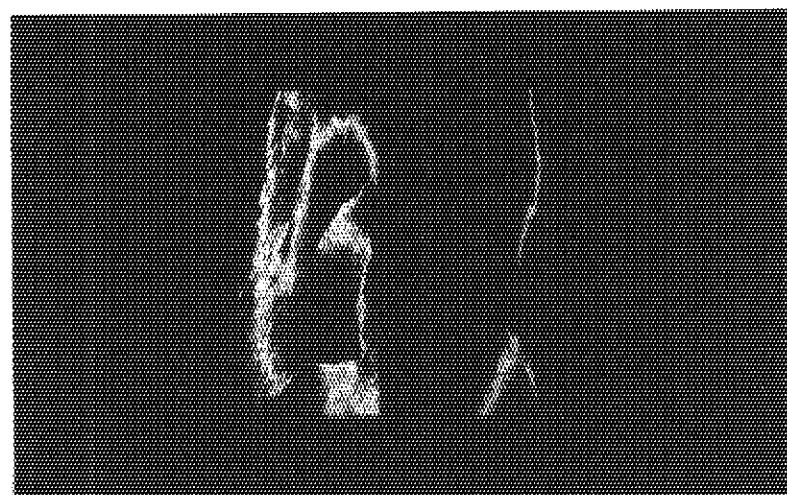
図18 エッティングをしたLiTaO₃結晶(04・8)面のロッキングカーブ（解放視野）



(a) メインピークから-10.5秒の位置, 露光: 10分

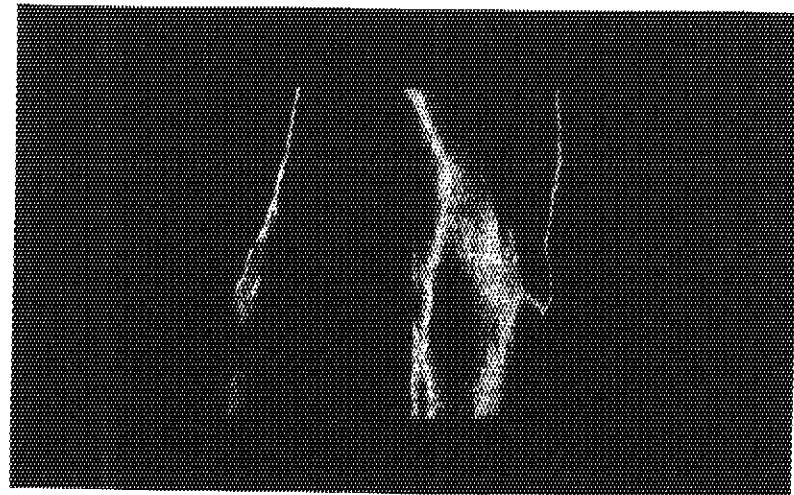


(b) メインピークから-5.8秒の位置, 露光: 10分

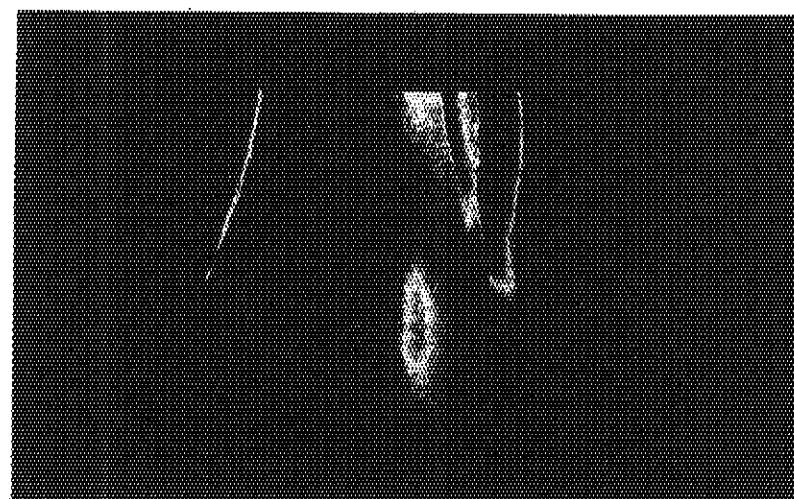


(c) メインピーク位置, 露光: 10分

図19 エッティングをしたLiTaO₃結晶(04・8)面のトポグラフ



(d) メインピークから14.8秒の位置, 露光: 10分



(e) メインピークから20.5秒の位置, 露光: 10分

図19 エッティングをしたLiTaO₃結晶(04・8)面のトポグラフ

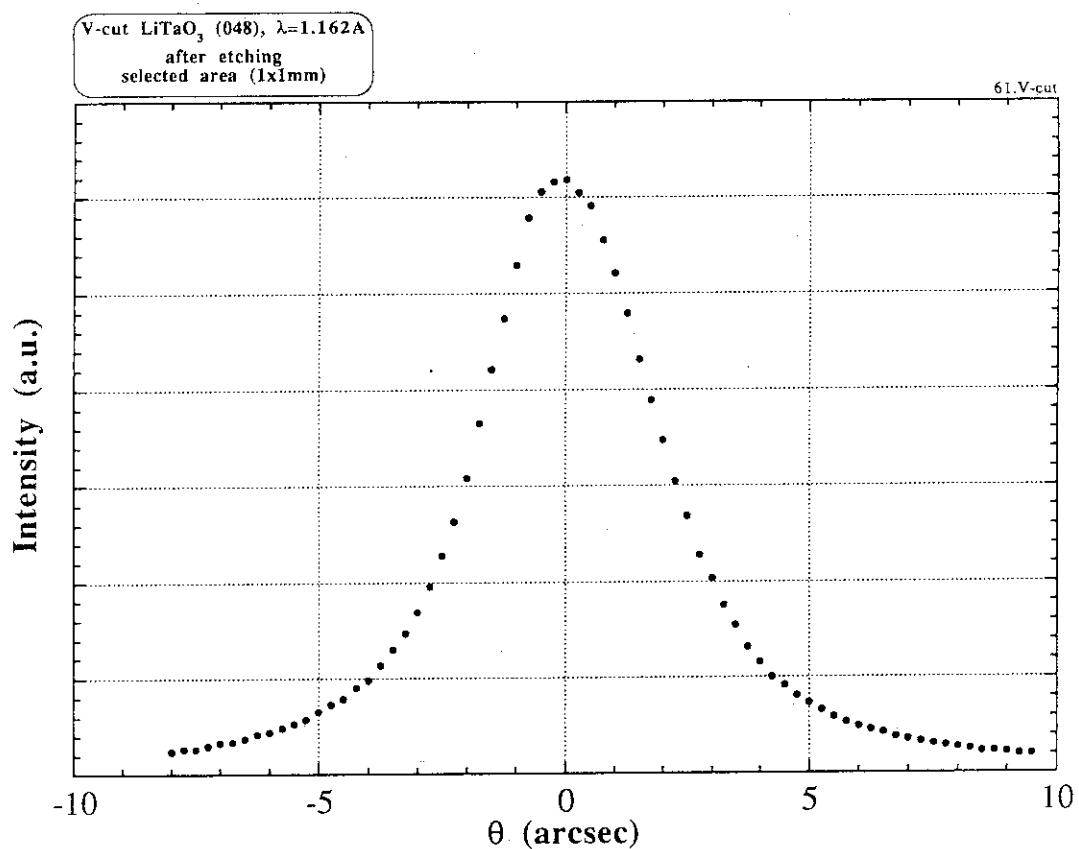


図20 エッティングをしたLiTaO₃結晶(04・8)面のロッキングカーブ（制限視野）
ビームサイズ：0.6mm×3mm