

## 論文内容の要旨

論文題目 絶縁体単結晶中の陽電子消滅

氏名 井上耕治

### 1. 序論

陽電子は正の電荷を持つ電子の反粒子である。放射性同位元素の崩壊や加速器によって生成され、反粒子の中では最も身近な半粒子である。そのため、陽電子は、物性研究など幅広い分野で利用されている。

本研究では、これまであまり研究されていない絶縁体の電子運動量分布を、陽電子消滅角相関法を用いて研究を行った。コンプトン散乱法を用いても電子運動量分布の測定を行い、陽電子を用いた測定結果と比較検討した。また第 1 原理計算結果を行い、実験結果と計算結果を比較し、局在系についても第 1 原理計算結果が適応できるかの検証を場を初めて提供した。

アルカリ土類フッ化物中の電子陽電子対の束縛状態であるポジトロニウムの挙動についても詳しく調べた。アルカリハライド中のポジトロニウムについては詳しく調べられているが、アルカリ土類フッ化物中のポジトロニウムについてはあまり詳しく調べられていない。どういう挙動を示すのか、基礎研究の面から非常におもしろいと思われる。

### 2. $\text{TiO}_2$ 単結晶の電子及び陽電子状態の研究

ルチル型  $\text{TiO}_2$  (空間群  $P4_2/mnm$ ) はバンドギャップ 3eV 程度の絶縁体である。格子定

数は a 軸 (<100>, <010> 軸) が 4.5937 Å、c 軸 (<001> 軸) が 2.9619 Å である。このルチル型 TiO<sub>2</sub> 単結晶の運動量分布を <100>, <110>, <001> 方位について陽電子消滅 1 次元角相関法、及び、コンプトン散乱法を用いて運動量分布を測定した。温度は室温であった。運動量分解能は、陽電子消滅 1 次元角相関法では 0.062 a.u.、コンプトン散乱法では 0.16 a.u. である。コンプトン散乱の実験は大型放射光施設 SPring-8 の BL08W にて行った。陽電子消滅 1 次元角相関の実験では、磁気クエンチング効果を利用して TiO<sub>2</sub> 単結晶中にポジトロニウムが存在するかどうかを調べた。第 1 原理計算は FLAPW (Full Potential Linearized Augmented Plane Wave) 法を用いて行った。

磁気クエンチング効果を利用した角相関曲線の結果から TiO<sub>2</sub> 単結晶中にはポジトロニウムは存在しないことがわかった。これにより、陽電子消滅角相関曲線において実験と第 1 原理計算結果との比較が可能である。陽電子消滅角相関測定の結果は、方位によって陽電子電子対の運動量分布が大きく異なるのに対し、コンプトンプロファイルで見た電子運動量分布には小さな異方性しかなかった。この結果、陽電子電子対の運動量分布の大きな異方性は主に陽電子に起因することがわかった。実験結果を FLAPW 法による計算結果と比較した。その結果、陽電子電子相関に異方性があること、そして <100> 方向が相対的に強いことがわかった。また、現在の陽電子電子相関の理論では、この現象を説明するのに不十分であることがわかった。

### 3. BaF<sub>2</sub> 単結晶の電子状態とポジトロニウムの研究

BaF<sub>2</sub> (結晶構造：螢石型、空間群：*Fm3m*、格子定数：6.2001 Å) 単結晶はアルカリ土類フッ化物の一つであり、高速シンチレータとして非常に有名な物質である。BaF<sub>2</sub> 単結晶中ではポジトロニウムが存在するらしいということはわかっているが、詳細についてはまったくわかっていない。BaF<sub>2</sub> 単結晶中の陽電子消滅について 10K~室温まで詳しく測定した。陽電子消滅角相関曲線の磁気クエンチングの結果、BaF<sub>2</sub> 単結晶中ではポジトロニウムが存在することを確認した。このポジトロニウムは格子間の非常に狭い空間に局在していることがわかった。陽電子寿命スペクトルの温度依存性の結果は、90K から 100K の間で急激な大きな変化が見られた。88K と 110K の角相関曲線の比率曲線の結果からも、この温度領域で陽電子電子対の運動量分布が変化していることが確認できた。陽電子消滅法での測定結果の温度依存性の原因が、電子状態の変化なのかポジトロニウムの変化なのかを調べるために、この温度領域でコンプトン散乱法を使って電子運動量分布についての測定を行った。コンプトン散乱法を用いて、イオン結晶の電子運動量分布の温度依存性を測定したのは、本実験が初めてである。TiO<sub>2</sub> が半導体に近い絶縁体であるのに対し、BaF<sub>2</sub> は完全イオン結晶に近い。より局在した電子系に対しバンド計算がどこまで通用するのかの検証の場も提供した。規格化したコンプトンプロファイルの 88K と 110K の差分を見ると、±2 a.u. 付近より内側では波打ったような構造らしきものが見えるが、このデータから 88K

と 110K で電子状態が変化していると断言することはできない。もう少しカウントを貯める必要がある。

実験と計算のコンプトンプロファイルの比較すると、かなりの不一致が見られた。実験のプロファイルには、Ba の 6s 軌道と思われる幅の狭い運動量分布を持つ電子からの寄与がかなり存在する。イオン結晶である BaF<sub>2</sub> の基底状態は、LCAO 的な見方をすると、Ba の 6s 軌道に電子はほとんど存在しないので、バンド計算に問題があるということではない。これは、コンプトン散乱測定の新しい可能性を示唆するものであると思われる。

#### 4. SrF<sub>2</sub> 単結晶中のポジトロニウムの研究

SrF<sub>2</sub> (結晶構造：螢石型、空間群：*Fm3m*、格子定数：5.7996 Å) は BaF<sub>2</sub> と同じアルカリ土類フッ化物の一つである。この SrF<sub>2</sub> 単結晶において、陽電子消滅寿命スペクトル、ドップラー広がりスペクトル、1 次元角相関曲線から、ポジトロニウムの挙動 (10K~室温) について調べた。陽電子寿命スペクトルを 2 成分解析した結果、温度に大きく依存することがわかった。またドップラースペクトルから得られる S-パラメータ (トータルカウントに対する中央部分のカウントの割合) も温度によって非常に大きな変化を示した。(S-パラメータの大きい温度と小さい温度では、ドップラースペクトルの形が明らかに異なった。) 1 次元角相関で、磁気クエンチング効果を利用してポジトロニウム成分のみを取り出した結果、低温では幅広い運動量分布を持つ局在ポジトロニウムが存在しているが、温度が高くなるにつれてその強度が減少し、180K 以上では狭い運動量分布を持つポジトロニウム成分が出現し、その強度が増加していった。室温の角相関曲線では逆格子点付近がわずかに膨らんでいるように見える。このことから、この狭い成分は非局在ポジトロニウムであり、SrF<sub>2</sub> 単結晶中では、ポジトロニウムの局在-非局在転移が起っているものと思われる。いくつかのアルカリハライド (NaF, NaCl, KI, KCl, KBr, RbCl) においては非局在-局在転移が起ることが知られているが、今回の現象はその逆の現象であり、いままでに報告されたことのない現象である。低温でのポジトロニウムの局在状態は、自己束縛状態ではないと予想される。自己束縛状態であれば、単位格子の数だけトラップサイトが存在するため、デトラップしても、またすぐにトラップすると考えられるからである。つまり、局在サイトの数が少ないことが条件である。また 10K と室温の角相関曲線では、ポジトロニウムの自己消滅成分以外からの運動量分布が変化していることなどから、低温では不純物にトラップされていたポジトロニウムが室温付近では非局在ポジトロニウムに変化するものと思われる。