The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	Electric Field Gradients of Impurities in Solids
Author(s)	Sato, Kazunori
Citation	大阪大学, 1999, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.11501/3155121
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

The University of Osaka

【15】

氏　　名	佐藤和則（さとう かずのり）
博士の専攻分野の名称	博　士（理　学）
学位記番号	第　14369　号
学位授与年月日	平成11年3月25日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当 理学研究科物理学専攻
学位論文名	Electric Field Gradients of Impurities in Solids （固体中不純物の電場勾配）
論文審査委員	（主査） 教　授　南園　忠則 （副査） 教　授　髙橋　憲明　　教　授　赤井　久純　　助教授　下田　　正 助教授　松多　健策

論文内容の要旨

本研究では，固体中の不純物位置の電場勾配を実験的，理論的に研究した。電場勾配は原子核のまわりの電荷分布の球対称からのずれを敏感に反映し，固体中の不純物の電子構造を研究する上で重要である。また，原子核物理学の立場からは，核構造の研究に重要な核電気四重極モーメントを決定するために電場勾配の研究は不可欠である。

本研究では固体中の不純物位置の電場勾配を系統的に研究するために，ホスト結晶としてイオン結晶である TiO_2（正方晶系，ルチル構造）を選んだ。イオン結晶を選んだのは，過去にイオン結晶中での不純物の電場勾配の系統的研究が少ないからである。まず，TiO_2 単結晶中に単寿命ベータ放射性核 $^{12}N(I^{\pi}=1^{-},T_{1/2}=11ms)$ と $^{19}O(I^{\pi}=5/2^{+},T_{1/2}=27s)$ を植え込み，それらのベータ NMR を観測した。結果として N，O 不純物それぞれについて，TiO_2 中に2つのことなる植え込み位置が発見され，それぞれの位置での電場勾配が精度良く決定された。さらに，系統的な議論を進めるために，安定核である $^{17}O(I=5/2)$,$^{45}Sc(I=7/2)$,$^{49}Ti(I=7/2)$,$^{93}Nb(I=9/2)$ の TiO_2 でのフーリエ変換 NMR を観測した。解析においてケミカルシフトの異方性を考慮して精度の良い電場勾配と電場勾配の非対称パラメータを導き出すことができた。

つぎに，今回の実験で得られた電場勾配の起源を理解するために TiO_2 中の不純物位置の電場勾配を赤井らによって開発された KKR 法によるバンド計算法を応用して第一原理から計算した。遷移金属である Sc,Ti,Nb,Cd,Ta について Ti 置換位置での電場勾配を計算した。Cd,Ta については PAC による実験が過去に報告されている。理論計算の結果は実験値の傾向を良く再現し，だいたい±20% 程度の信頼性で電場勾配を予言できることがわかった。この計算においては不純物をスーパーセル法でシミュレートしているので不純物まわりの格子緩和を取り入れることができた。また，実験値を良く再現するためには不純物の TiO_2 中での価数を正しく考慮することが必要であることが認識された。

このようにして，イオン結晶中の不純物位置の電場勾配を計算することが可能となったので，TiO_2 中の N,O についていくつかの植え込み位置を仮定しその位置での電場勾配を計算して，今回の実験で得られた電場勾配と比較し N,O 不純物の植え込み位置について議論することができる。その結果，N不純物について，実験で発見された2つの植え込み位置は酸素置換位置と格子間位置で N^{1+} となったものであると結論された。一方，O不純物については2つの植え込み位置のうち一方が酸素置換位置であることは推定できたが，もう一方については位置を確定するにはいたらなかった。

さらに，今回の TiO_2 の電場勾配の研究からいくつかの原子核について電気四重極モーメントを決定することもできた。実験的に電場勾配を決定した結果として，$|Q(^{19}O)| = 3.7\pm0.4$mb,$|Q(^{13}O)| = 11\pm1$mb,$|Q(^{41}Sc)| = 156\pm3$mb が求められた。特に陽子過剰核である $^{13}O(I^{\pi} = 3/2^{-}, T_{1/2} = 8.6$ms) や二重閉核 + 1 核子核である $^{41}Sc(I^{\pi} = 7/2^{-}, T_{1/2} = 0.56$s) の電気四重極モーメントが求められたのは原子核物理学への大きな寄与である。また，過去の我々の研究室において，Al_2O_3 中の $^{27}Si(I^{\pi} = 5/2^{+}, T_{1/2} = 4.1$s) と $CaCO_3$ 中の $^{39}Ca(I^{\pi} = 3/2^{+}, T_{1/2} = 0.86$s) の電気四重極結合定数が決定されているが電場勾配の値は実験的に知られていない。そこで，今回開発した電場勾配の計算法を応用して理論の予測する電場勾配を用いて ^{27}Si,^{39}Ca の電気四重極モーメントをそれぞれ $|Q(^{27}Si)| = 61\pm14$mb,$|Q(^{39}Ca)| = 36\pm4$mb と決定した。

論文審査の結果の要旨

β 線検出核四重共鳴法を用いて不安定核 ^{12}N,^{13}O,^{19}O イオンの結晶中四重極結合定数を精度良く決め，結晶中の植込み位置と電場勾配を決めた。実験値を *ab initio* KKR バンド計算値と比較して，計算にはスーパーセル法や，植込み位置での格子緩和を取り入れ，又，不純物には charge neutrarity を初めて取り入れた。又，電場勾配の実験的決定法がない ^{27}Si,^{39}Ca 原子核の結晶中四重極結合定数を決め，電場勾配に理論値を用いて，これらの核四重極モーメントを初めて決定した。核理論との比較から殻構造モデルの検証を行った。よって博士（理学）の学位論文として十分価値あるものと認める。