

偏極RIビームを用いた 物質科学研究

阪大理 三原基嗣

- Introduction

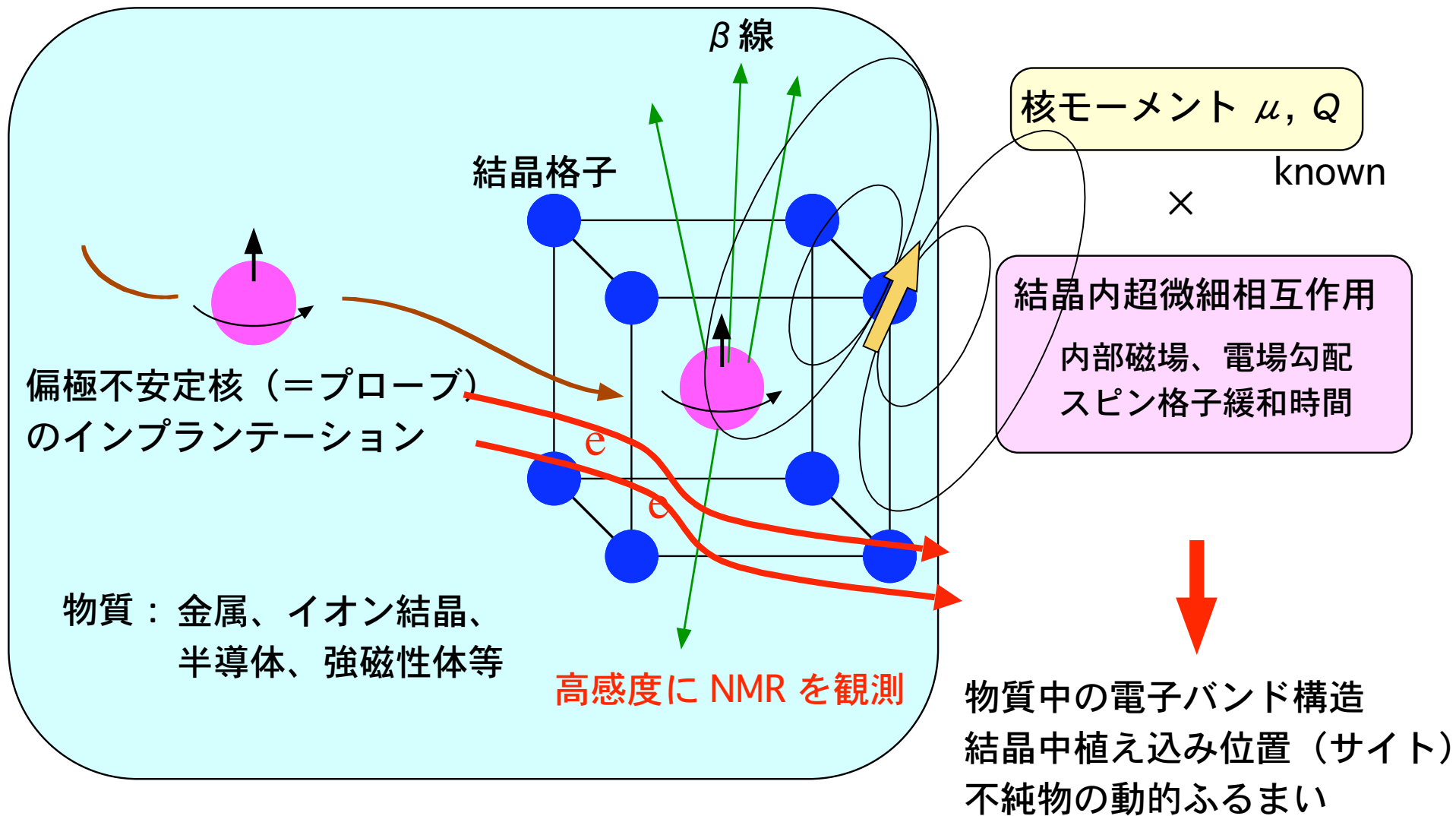
- トピックス

 - 金属中不純物のナイトシフト、 T_1

 - Si 中 ^{12}B の動的挙動

 - TiO_2 中空素不純物の局所電子状態

β -NMR 法を用いた物性研究

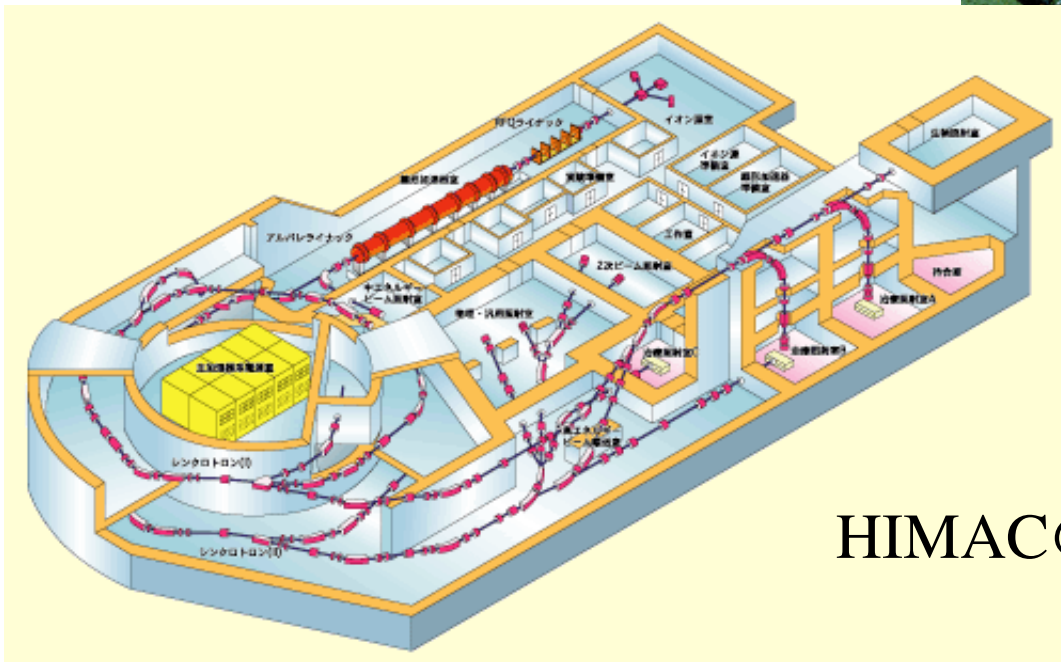


β -NMRの時間スケール: 1 ms ~ 100 s, c.f. ns ~ μ s for PAC

5MV Van de Graaff@Osaka

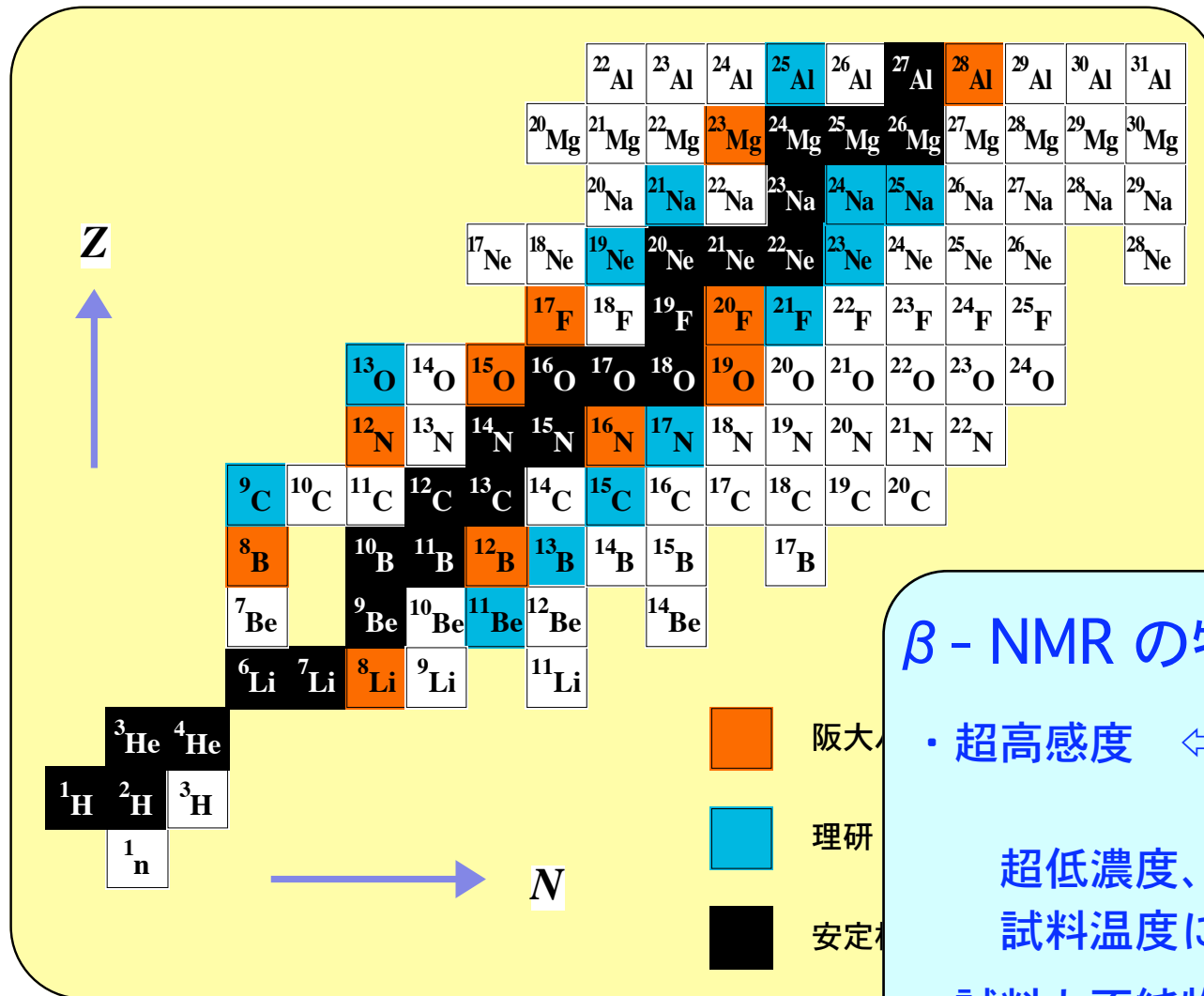


RRC@RIKEN



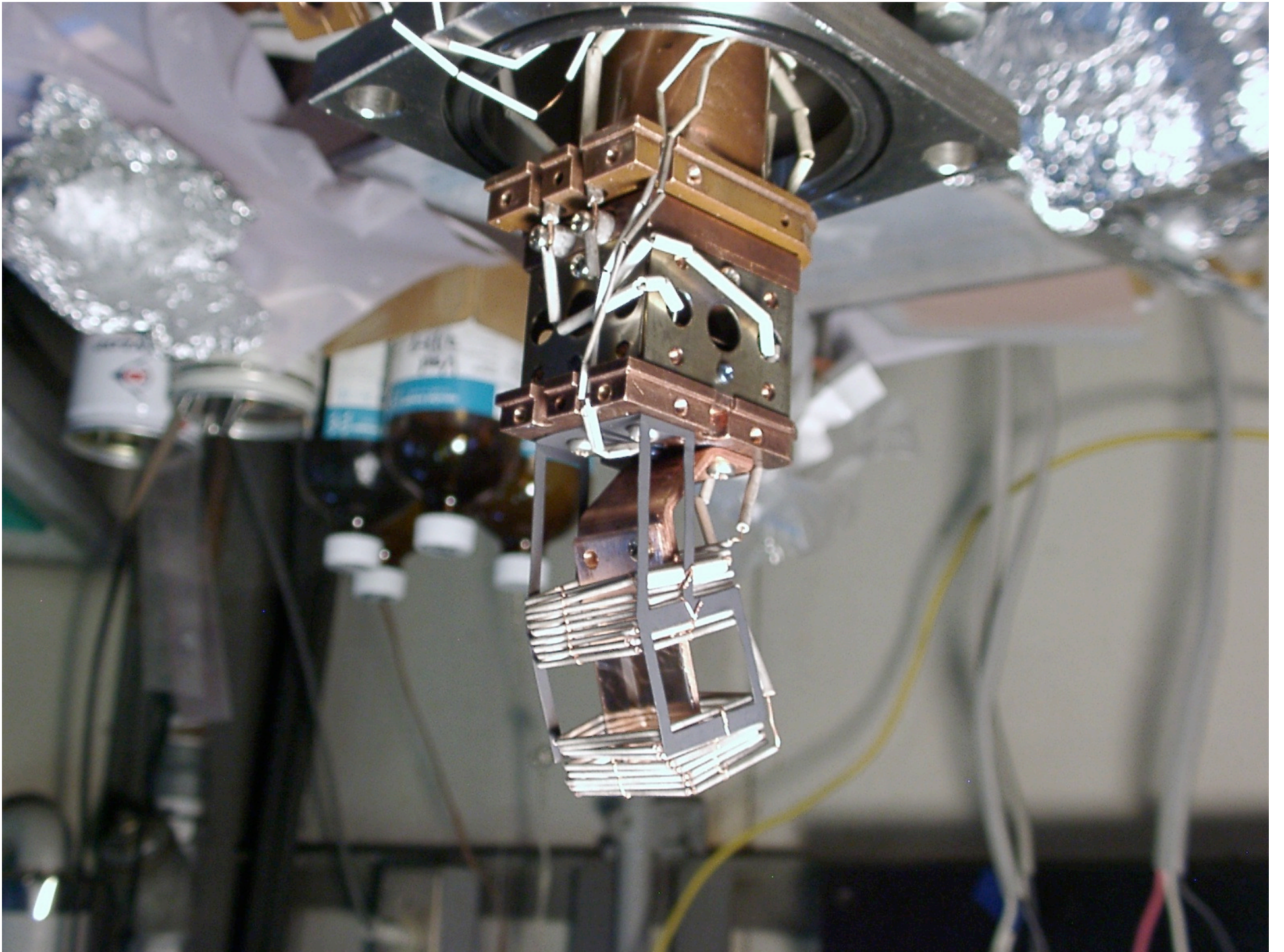
HIMAC@NIRS

偏極不安定核プローブ

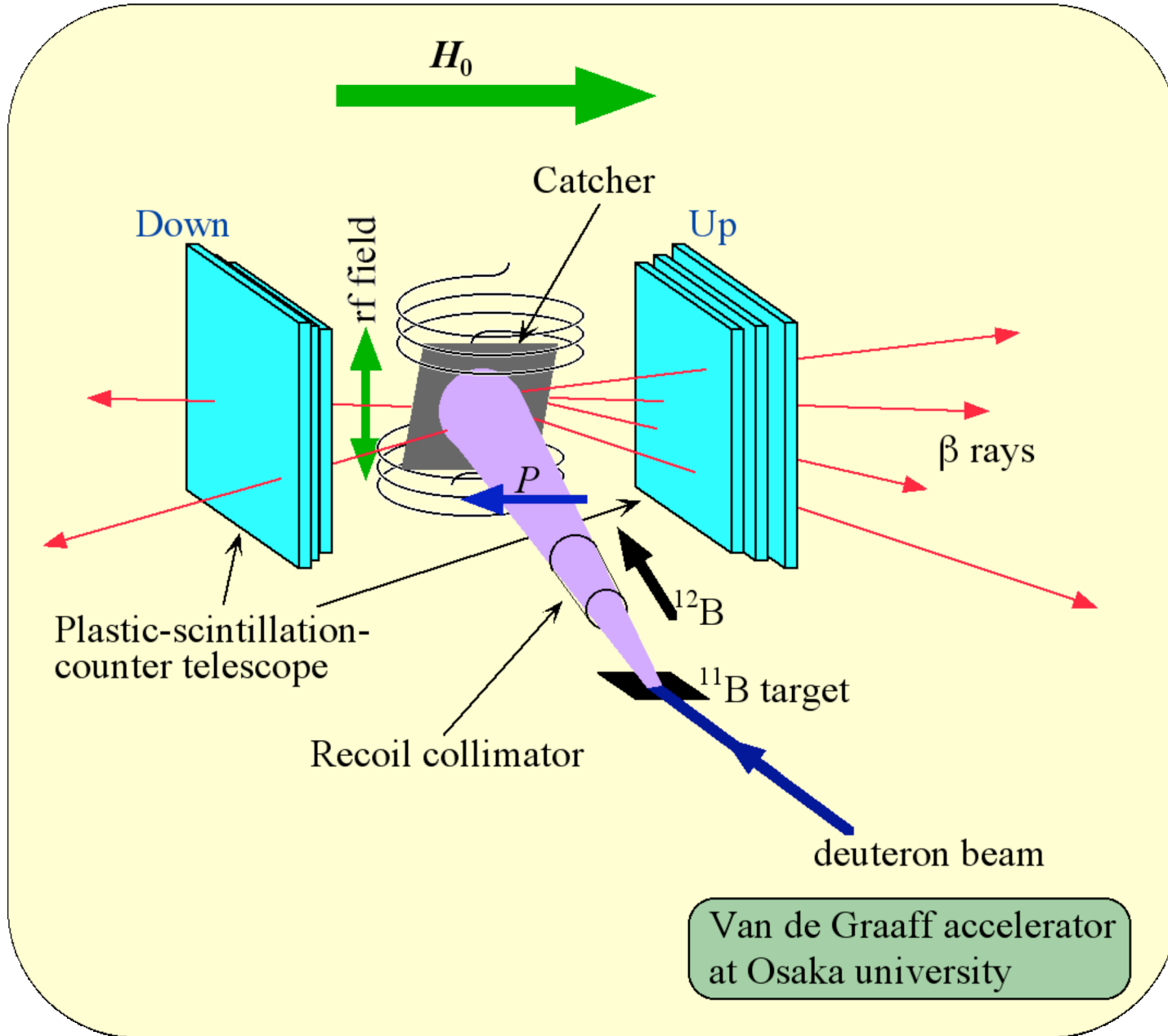


β-NMR の特徴

- ・ 超高感度 ← β線検出
核反応による高偏極
超低濃度、不純物間の相互作用がない
試料温度によらない (10 – 1000 K)
- ・ 試料と不純物の組み合わせが自由
- ・ スピン格子緩和時間 T_1
≥ プローブ核の寿命
(10 ms ~ 100 s)



Setup (阪大 VdG)

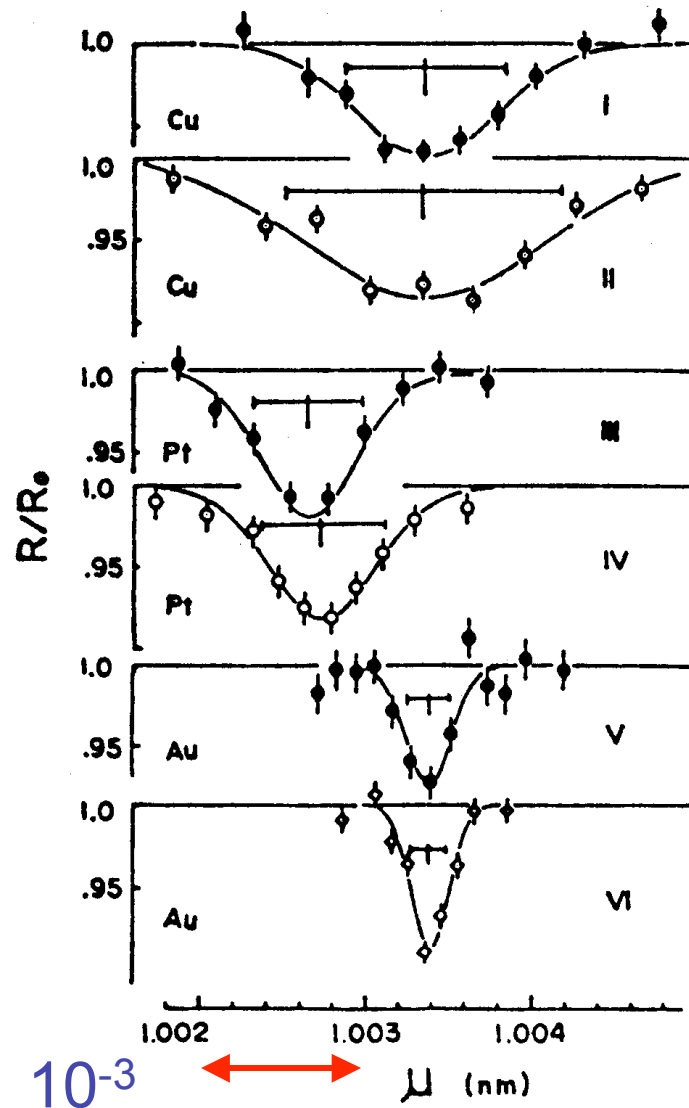


金属中の電子バンド構造

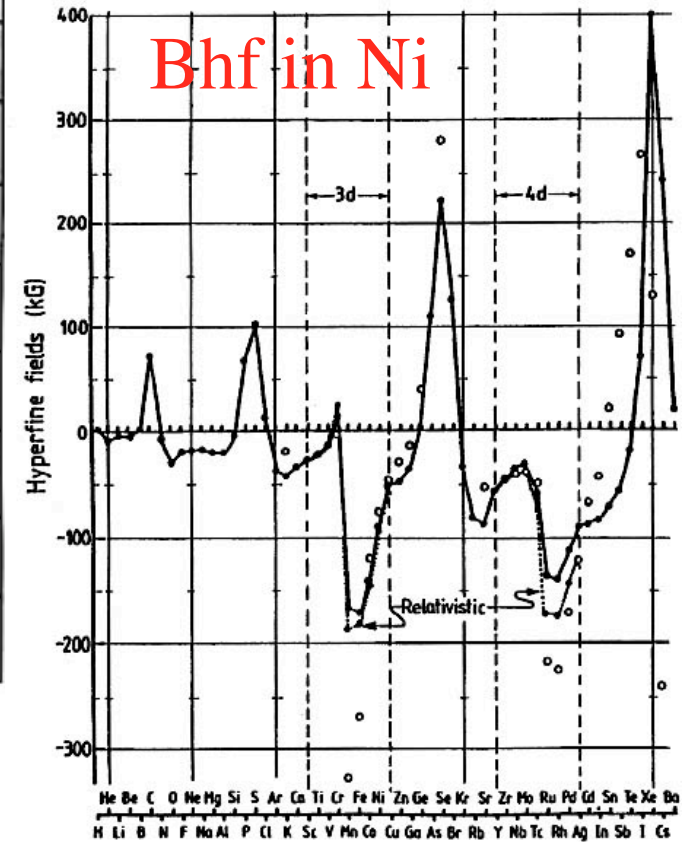
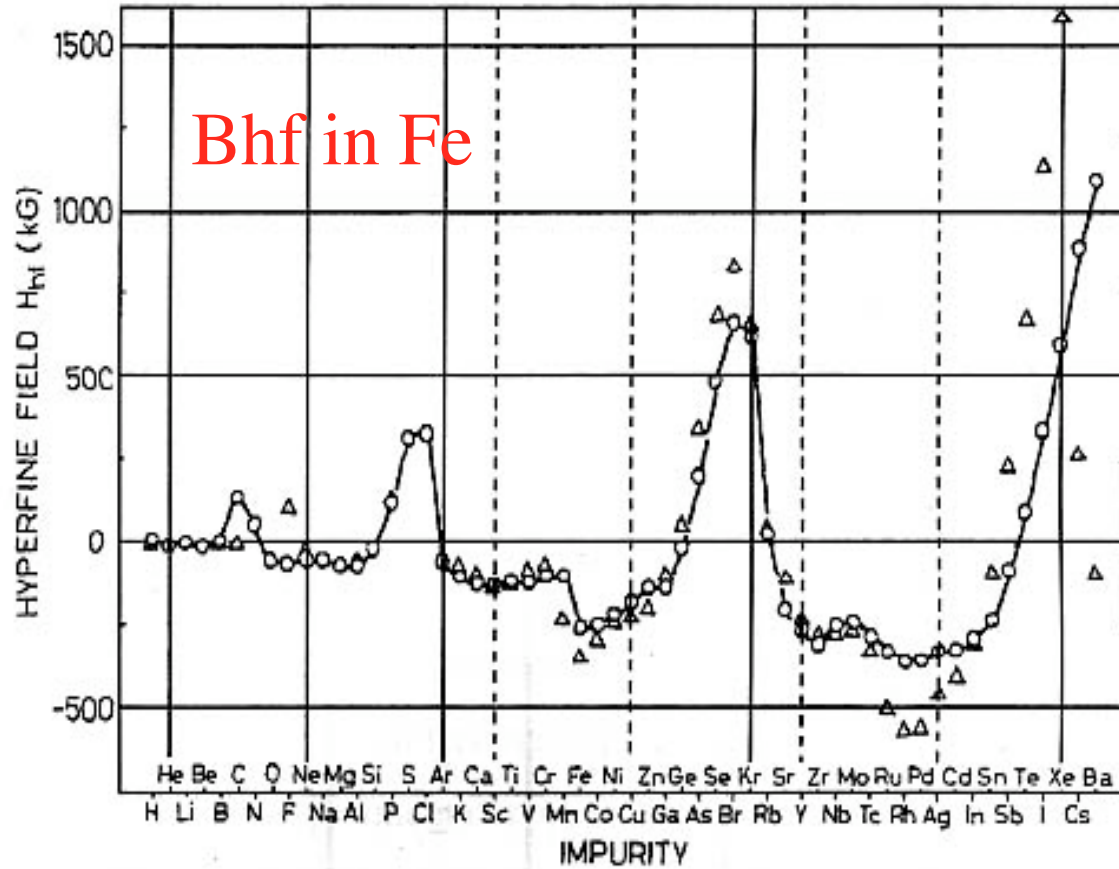
----- NMR スペクトルのシフト -----

NMR spectra
 ^{12}B in various metals

ナイトシフト : K



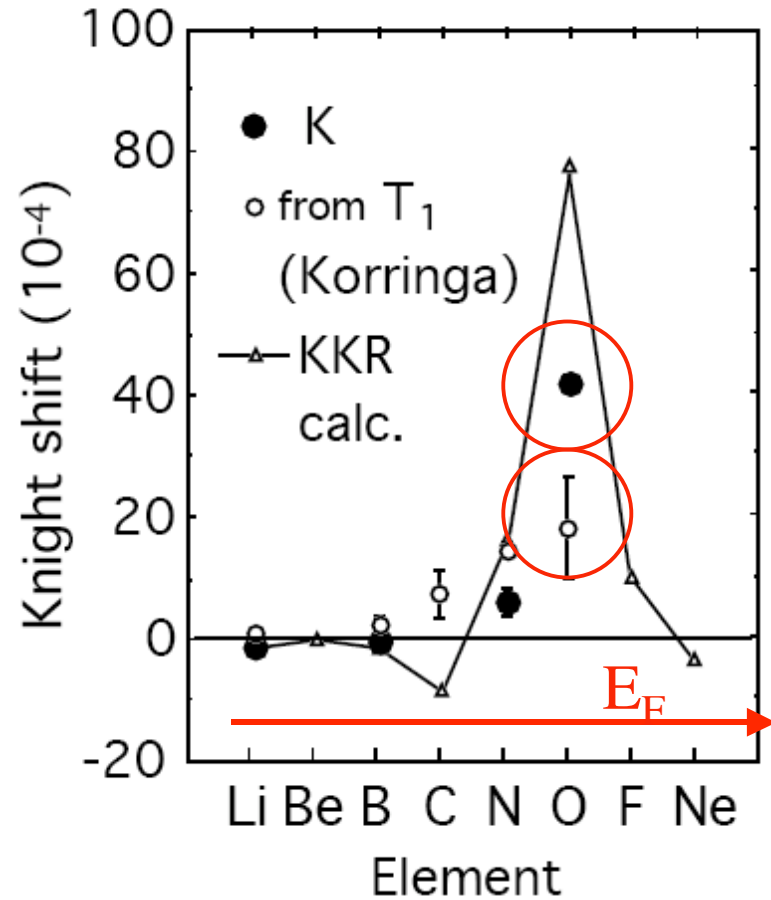
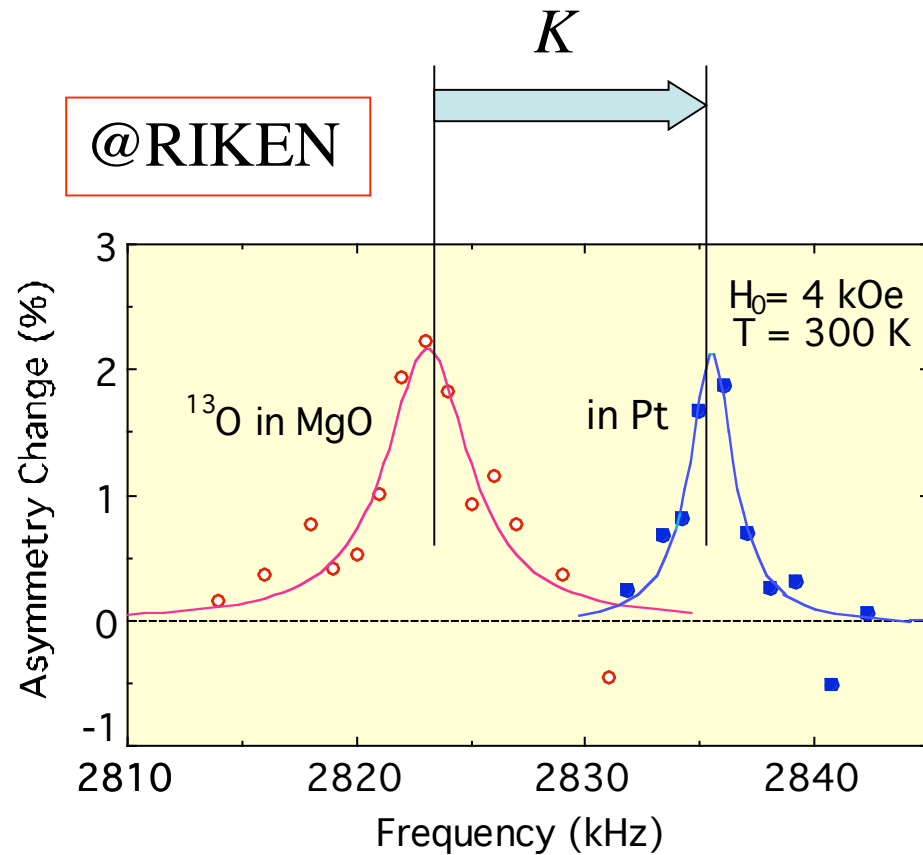
強磁性体中の超微細磁場



$$H_{hf} = \mu_B^2 \int^{EF} \{ \rho_{\uparrow}(0, E) - \rho_{\downarrow}(0, E) \} dE$$

$$(T_1 T)^{-1} = (8/9) h k_B \gamma_n^2 \gamma_e^2 \rho_{\uparrow}(0, E_F) \rho_{\downarrow}(0, E_F)$$

Pt 中不純物のナイトシフト K



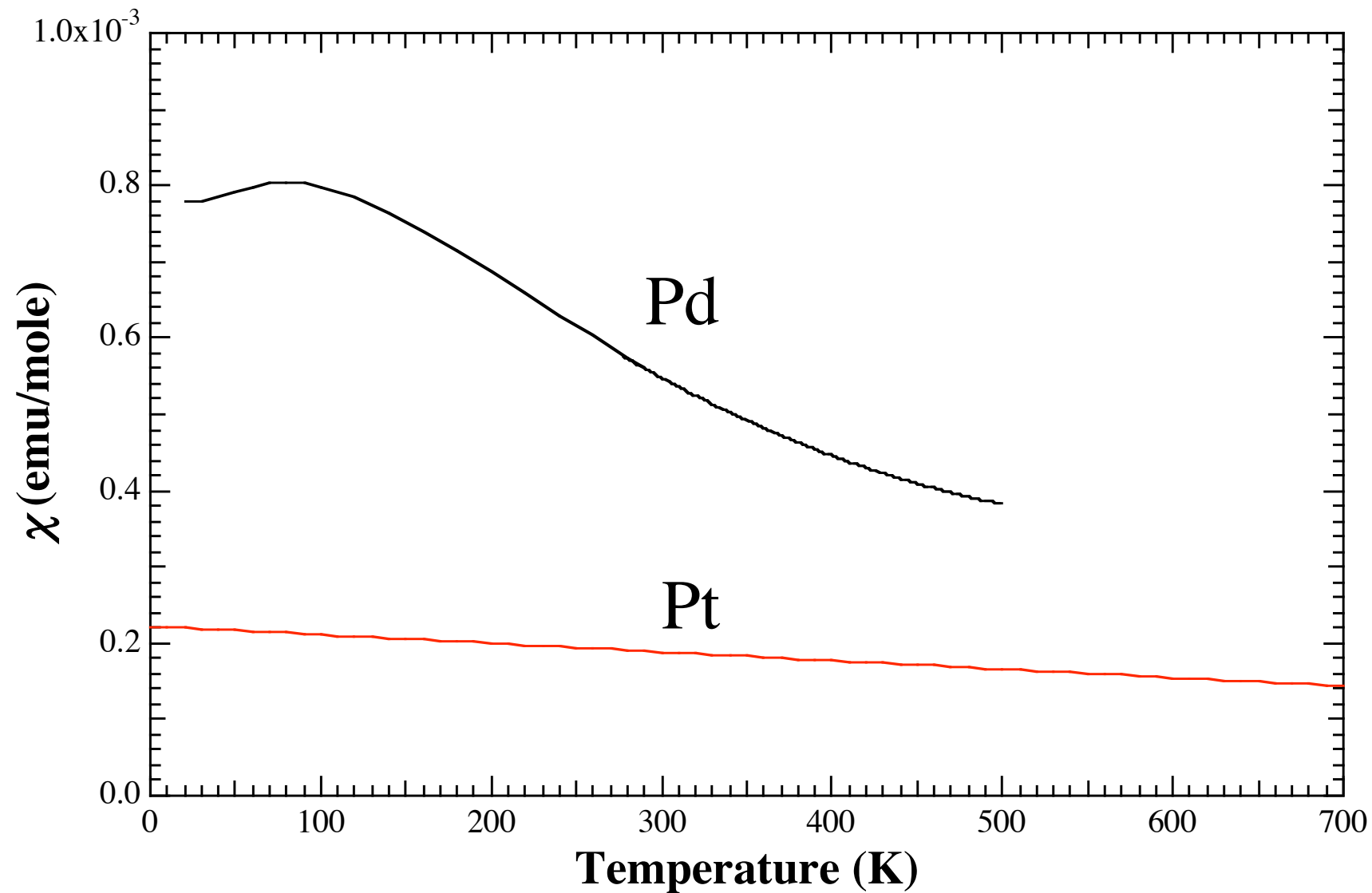
$$K = \Delta H / H_0 = \mu_B^2 \int^{E_F} \{ \rho_{\uparrow}(0, E) - \rho_{\downarrow}(0, E) \} dE / H_0$$

$$(T_1 T)^{-1} = (8/9) h k_B \gamma_n^2 \gamma_e^2 \rho_{\uparrow}(0, E_F) \rho_{\downarrow}(0, E_F)$$

コリンハの関係 : $(T_1 T) K^2 \cdot \gamma_n^2 = \text{一定}$

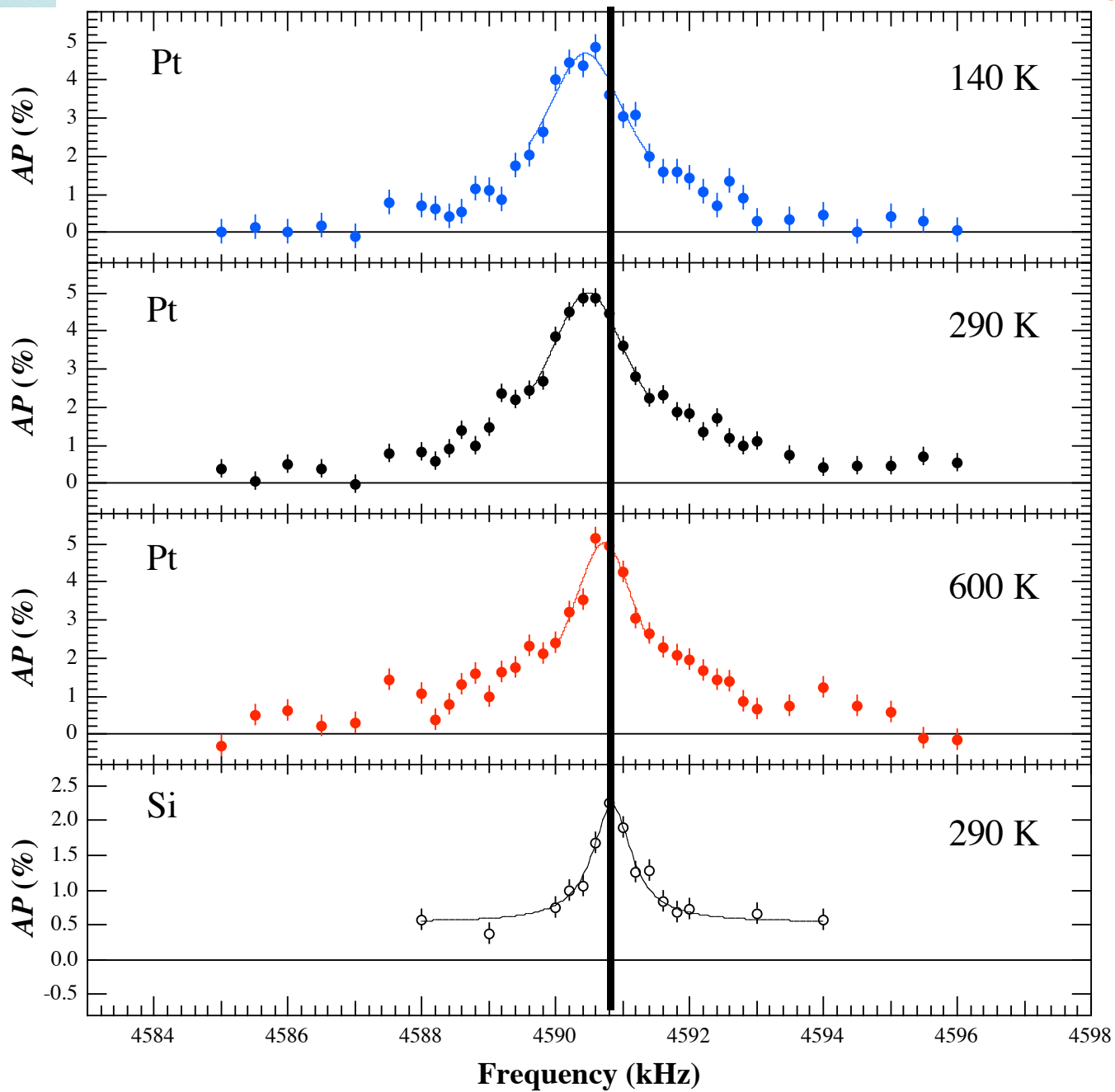


磁化率の温度変化

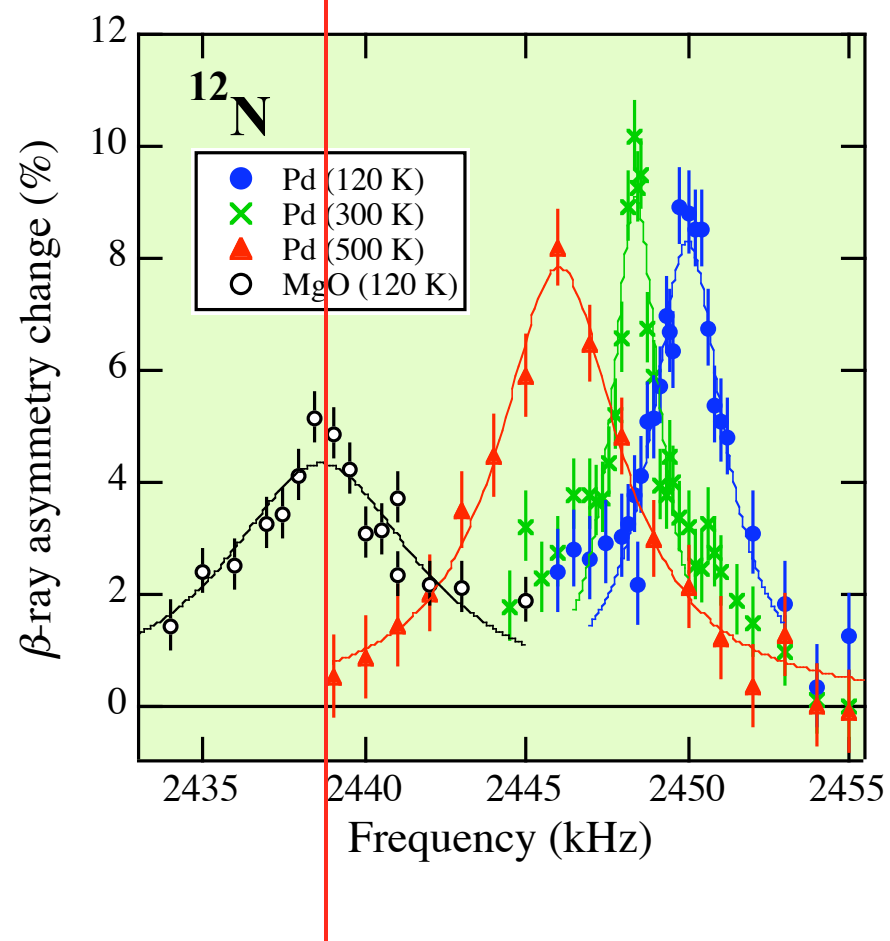
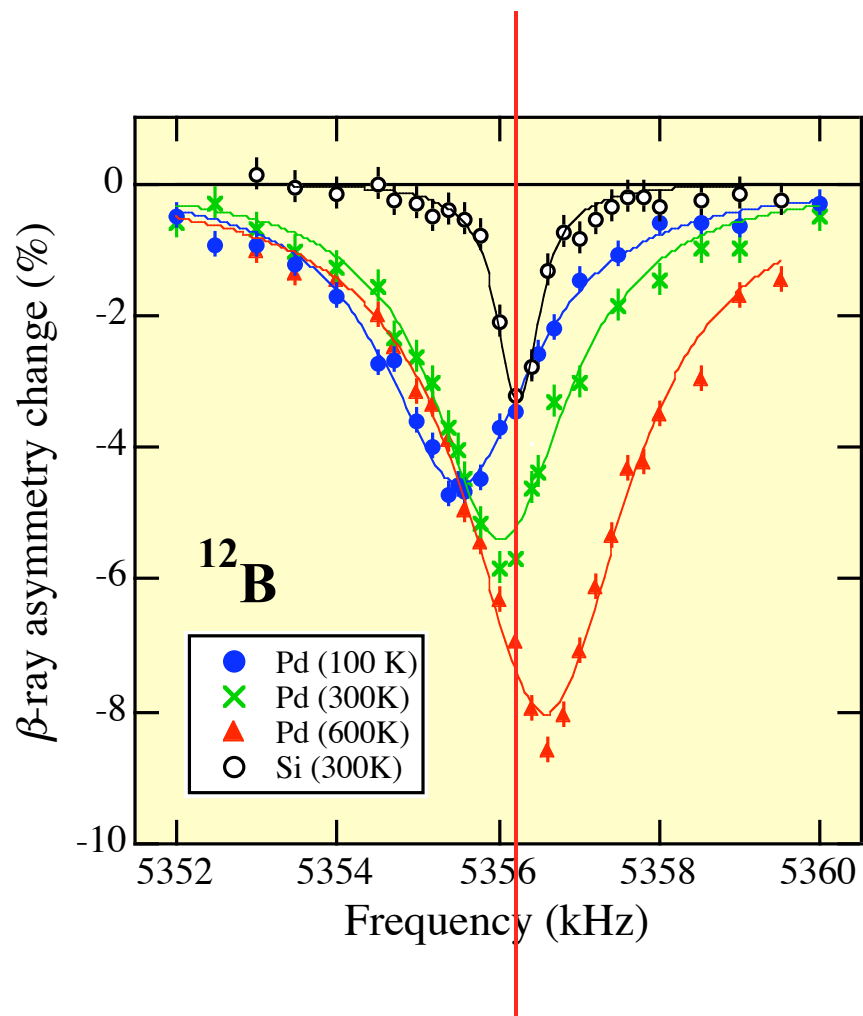


^{12}B in Pt

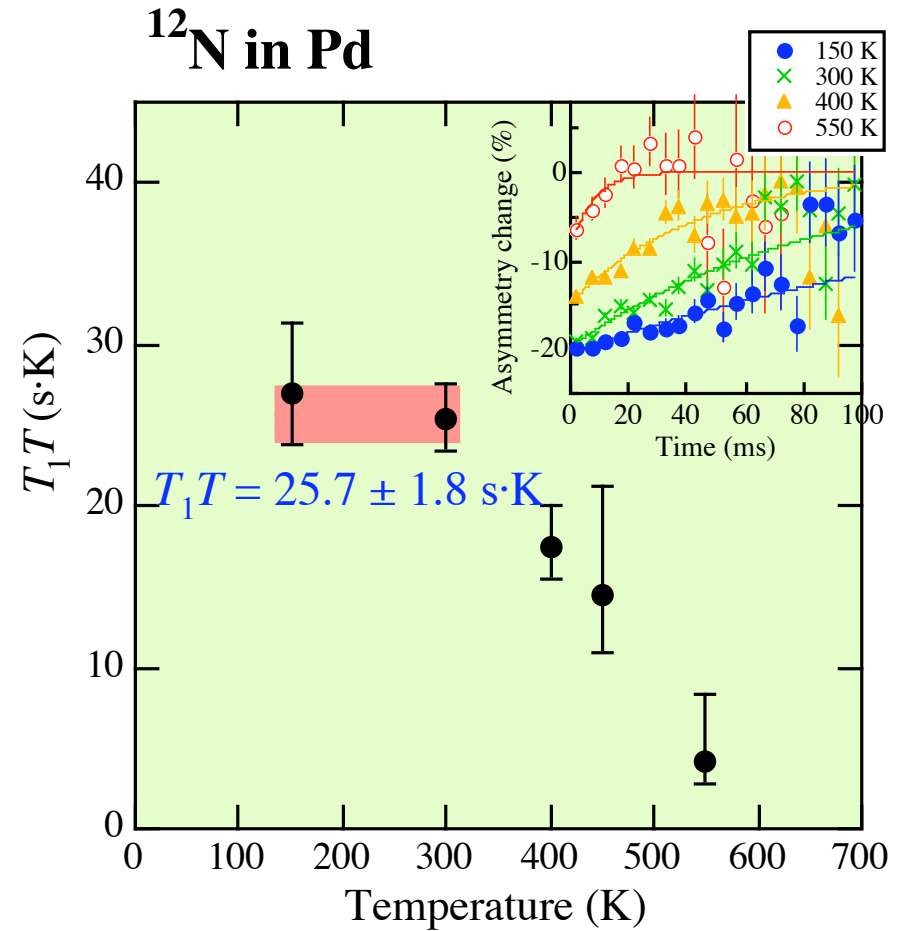
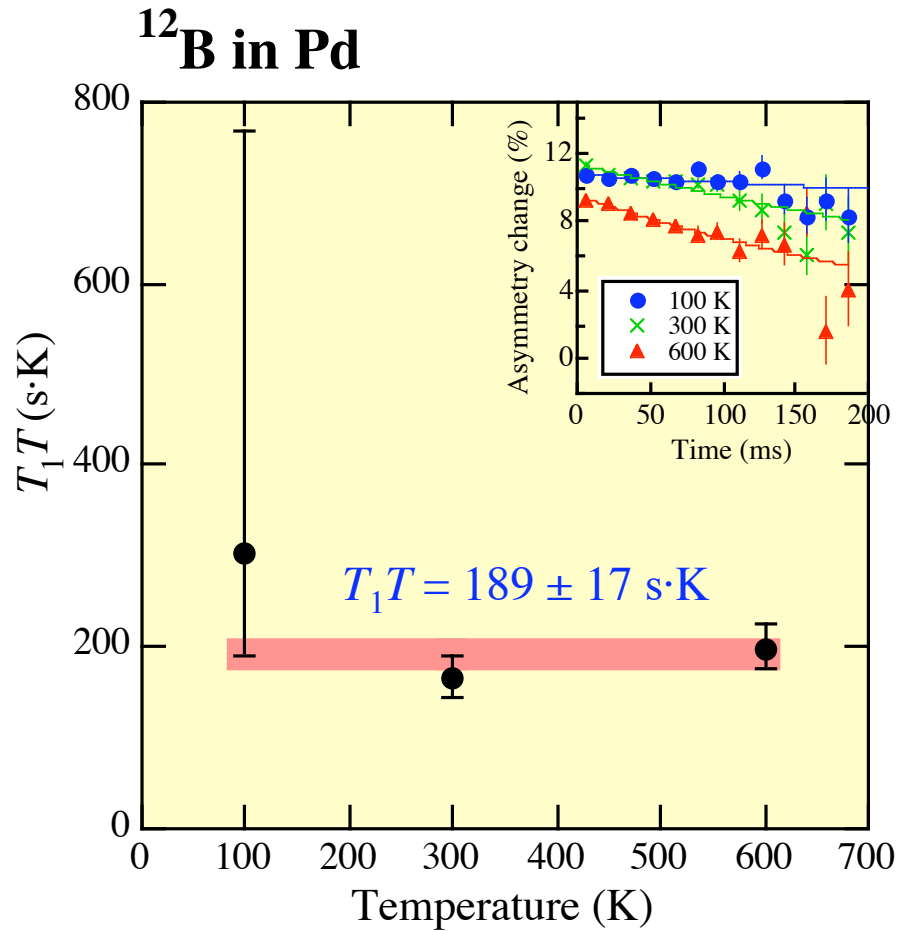
@阪大VdG



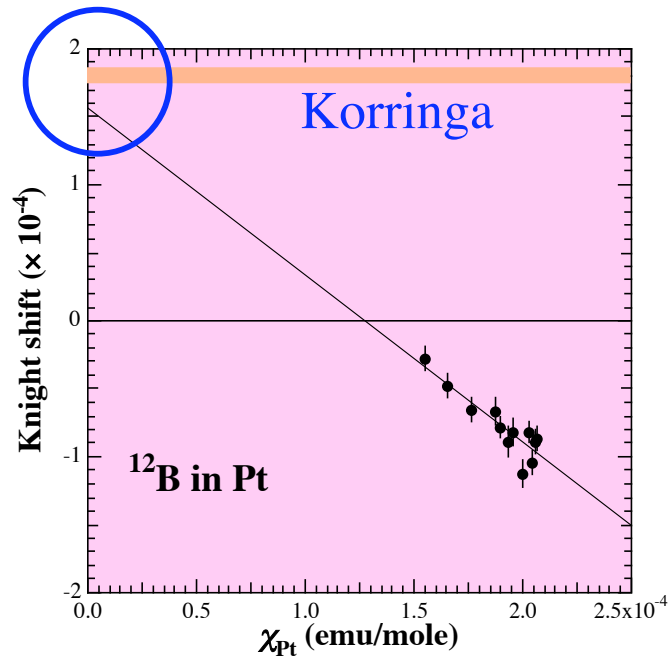
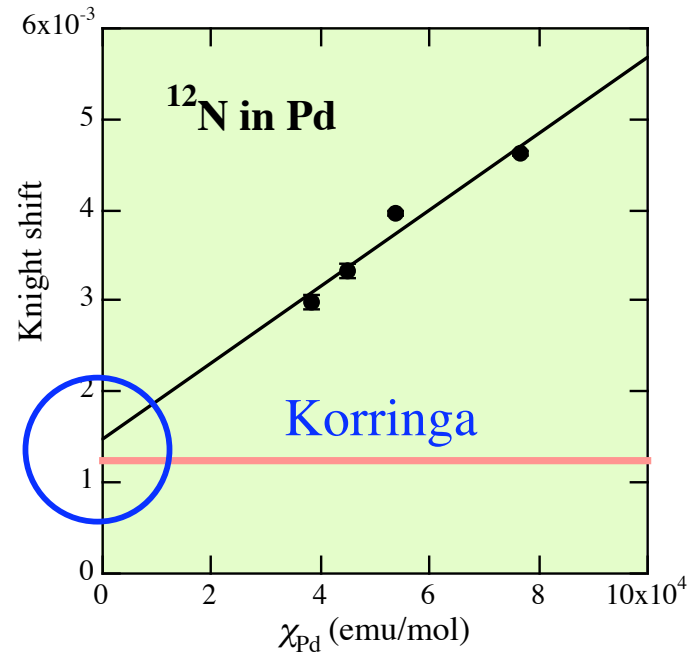
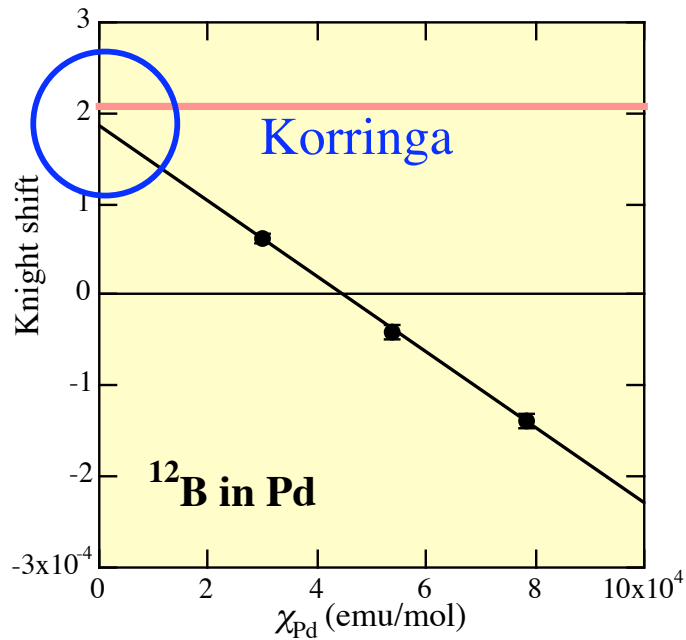
Pd 中 ^{12}B , ^{12}N のナイトシフト



Pd 中 ^{12}B , ^{12}N のスピン格子緩和時間



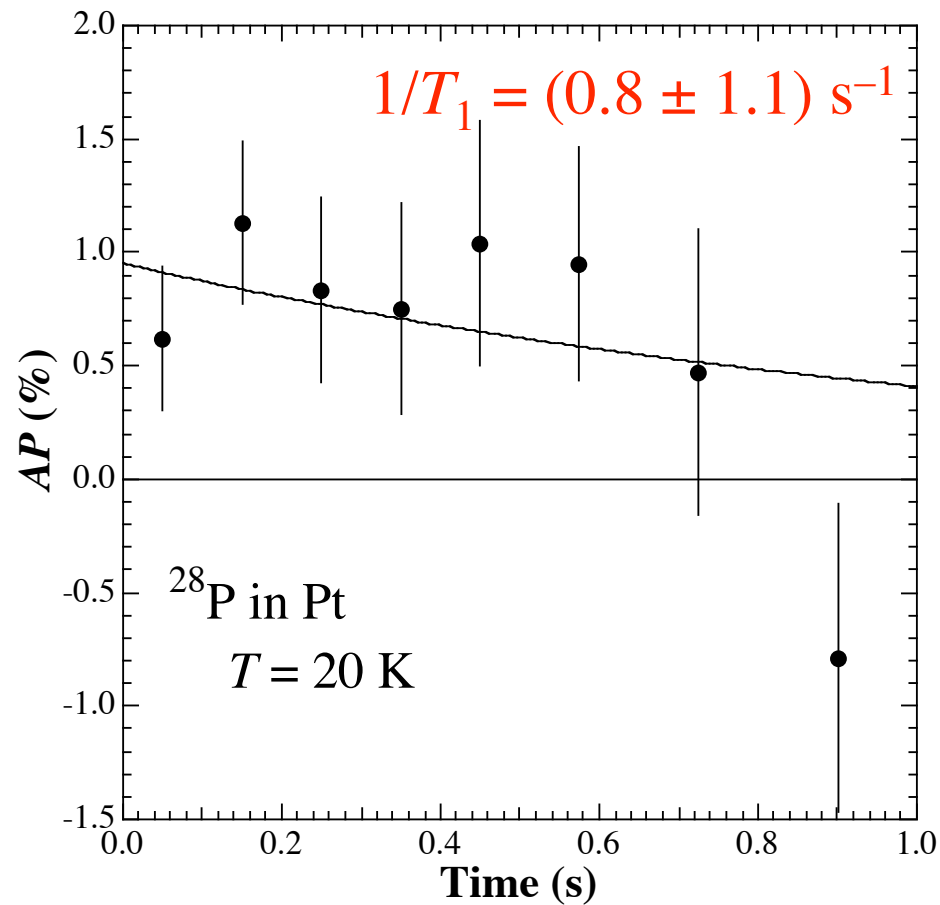
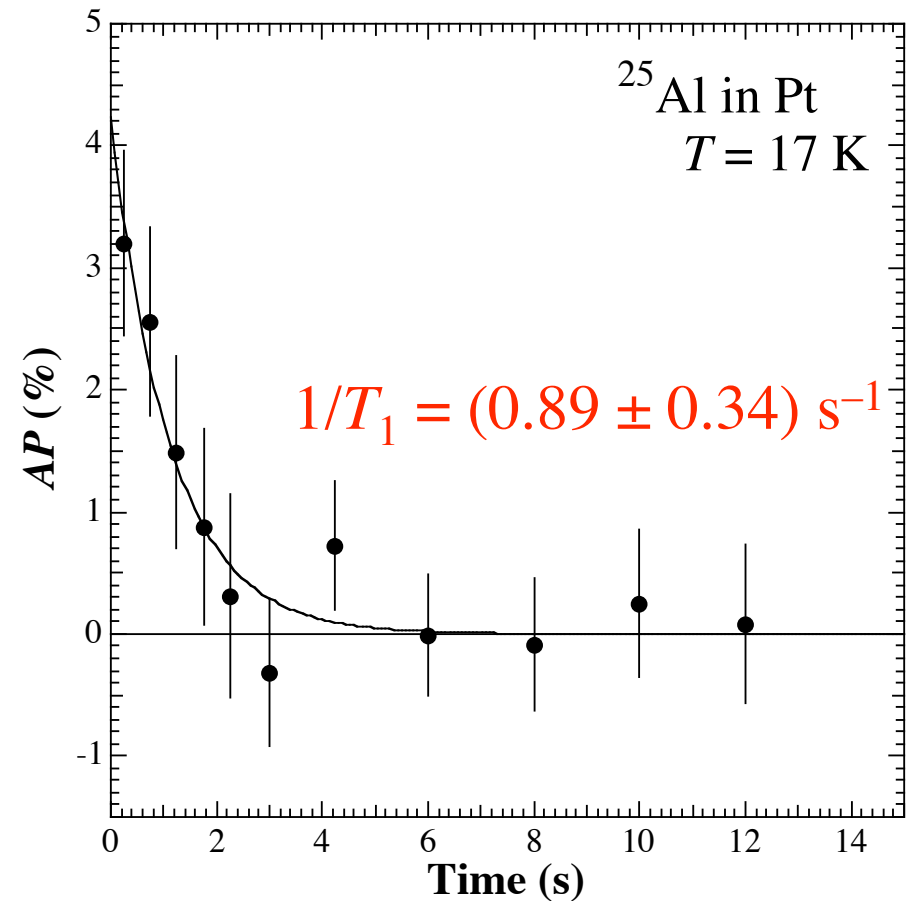
K- χ Plot



$$\chi \rightarrow 0$$

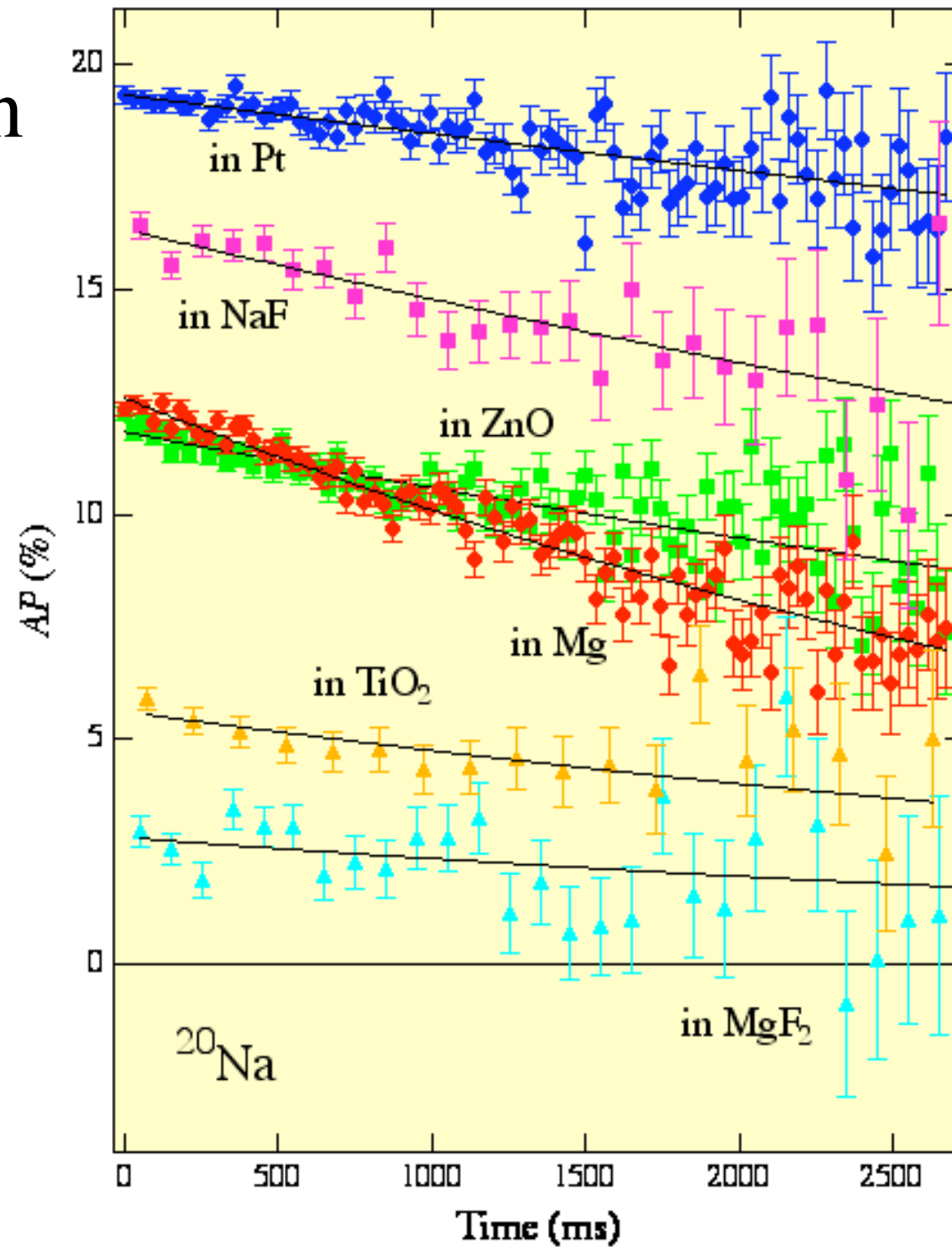
- Korringa の関係が成立つ
 $[(T_1 T)K^2 = \text{一定}]$
- d 電子の寄与が消える ?
- フェルミ接触相互作用のみの寄与が見える

Pt 中短寿命核のスピング子緩和

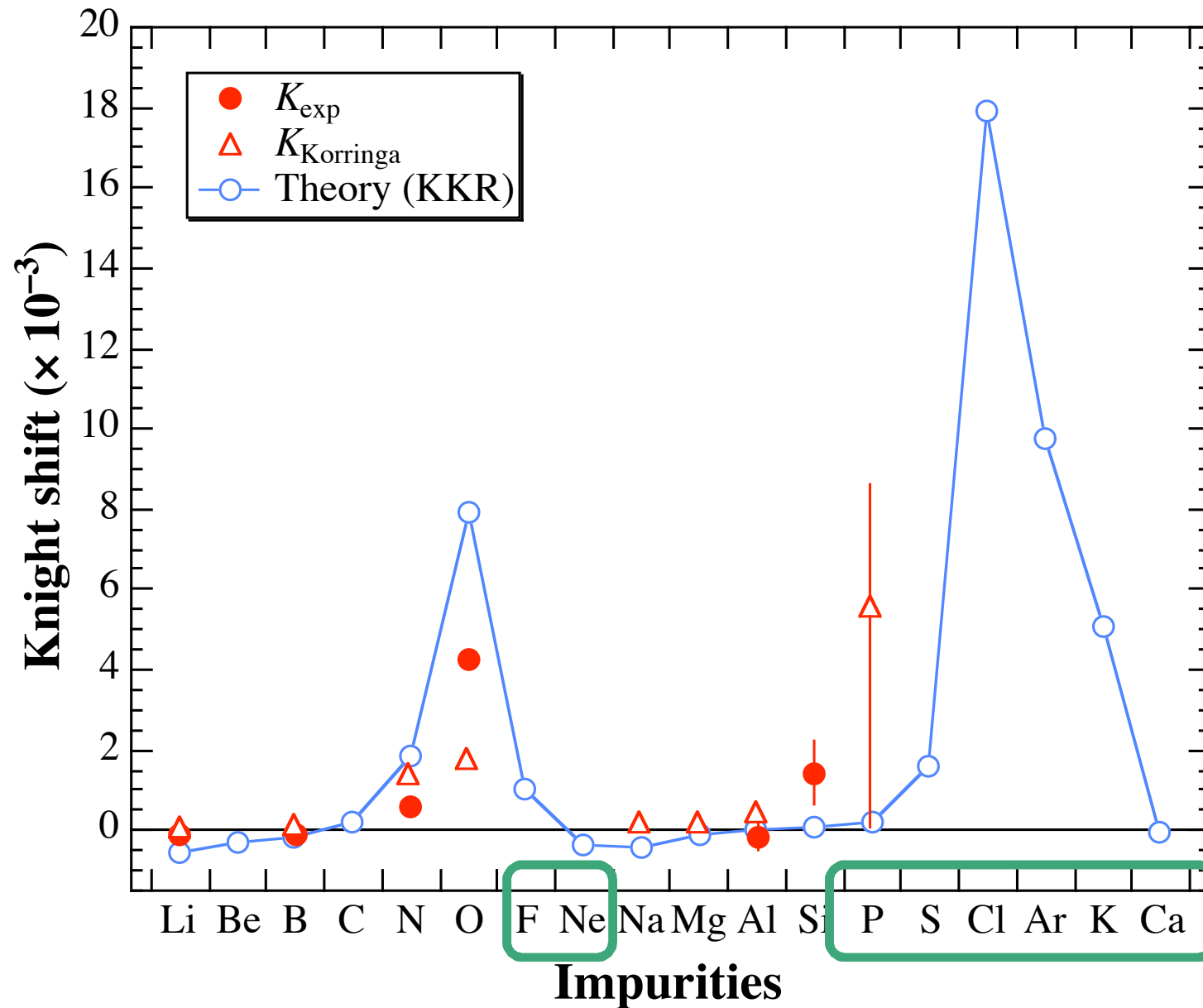
 ^{28}P ($T_{1/2} = 270.3$ ms) ^{25}Al ($T_{1/2} = 7.183$ s)

Polarization relaxation

@TRIUMF

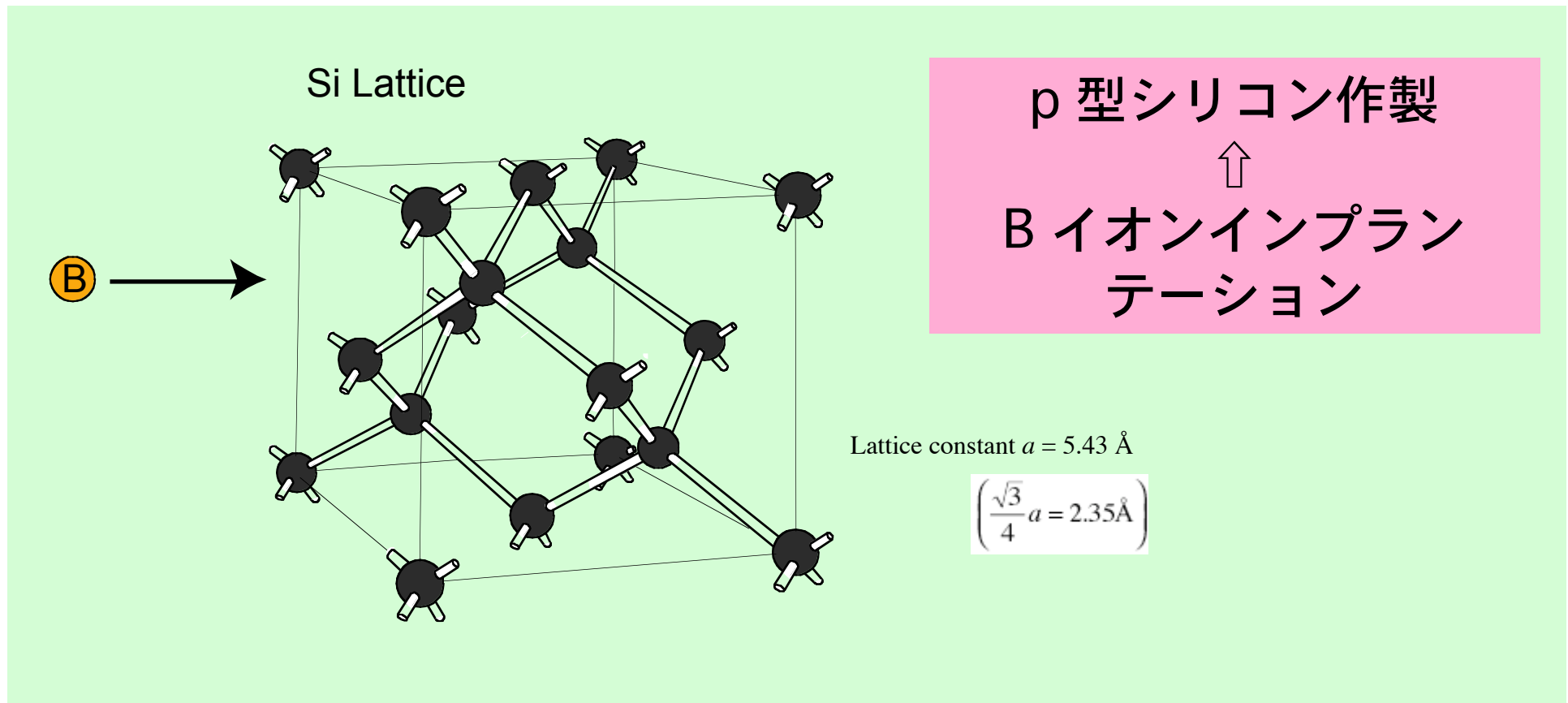


Pt 中不純物のナイトシフト



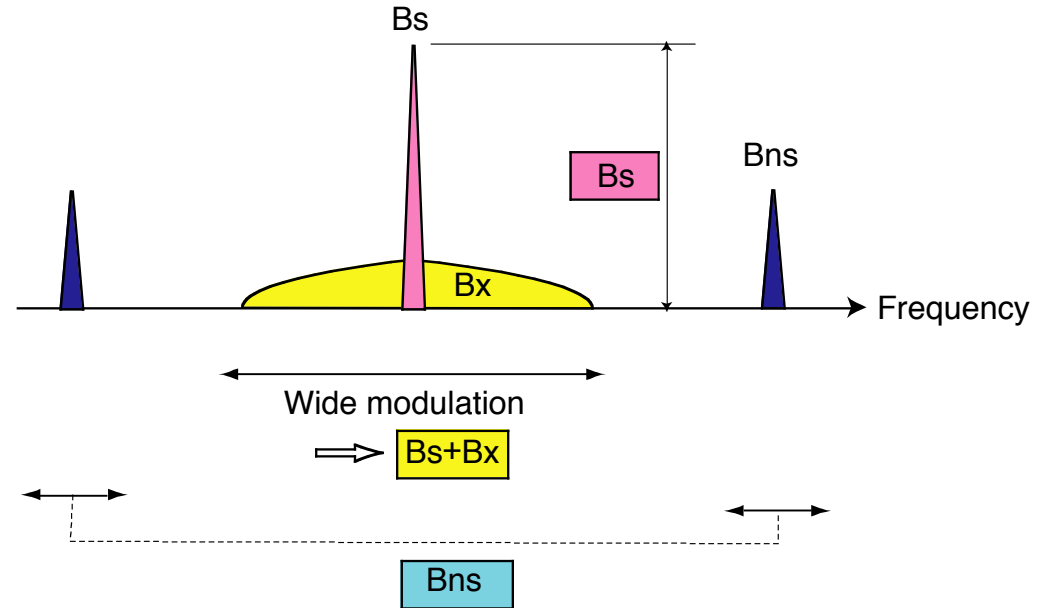
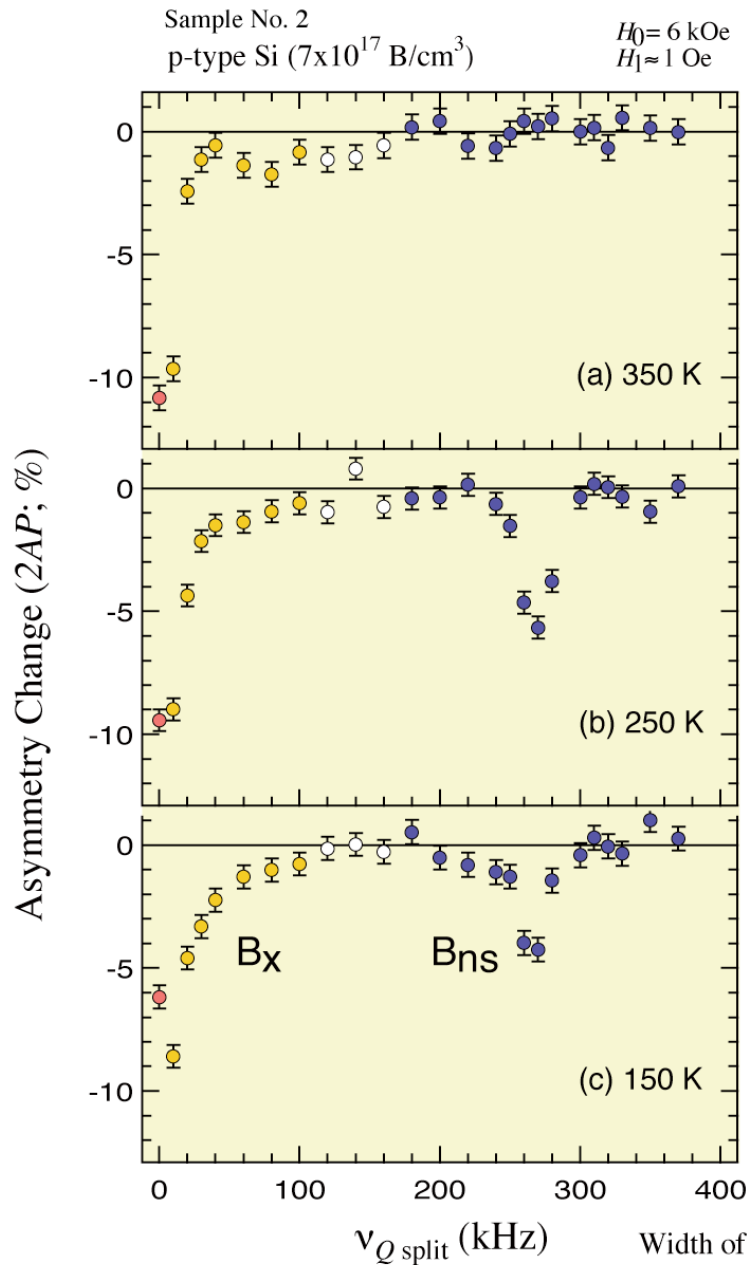
Si 中 B の動的挙動

probe: ^{12}B ($I=1$, $T_{1/2} = 20$ ms)



T. Izumikawa et al., Physica B376-377 (2006) 193.

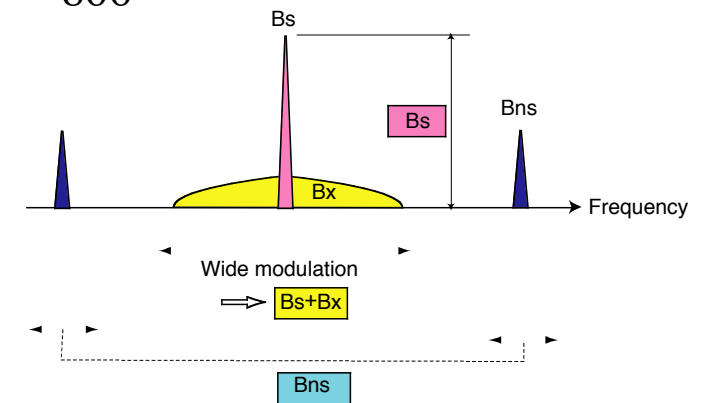
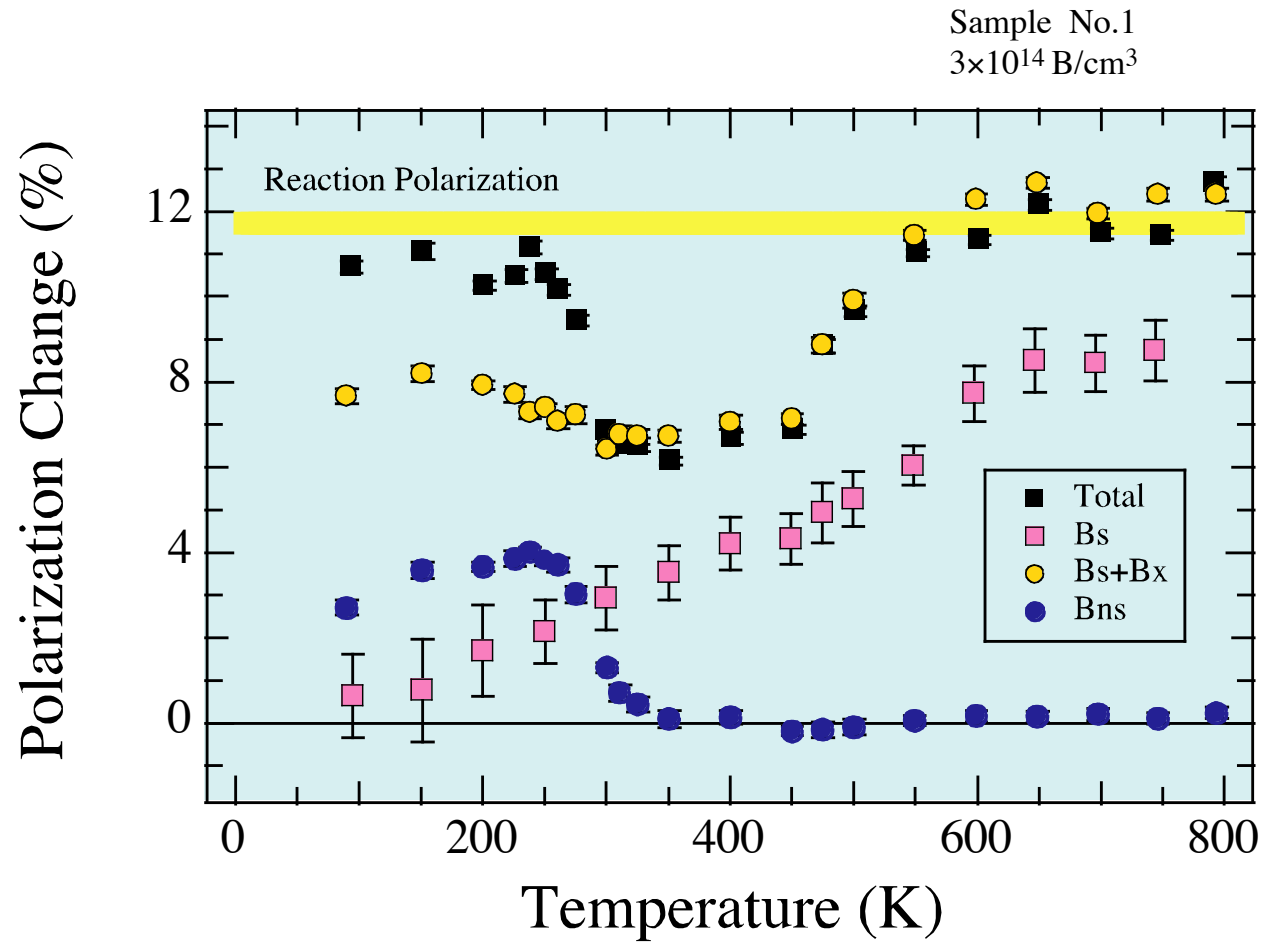
β -NQR Spectrum of ^{12}B in Si



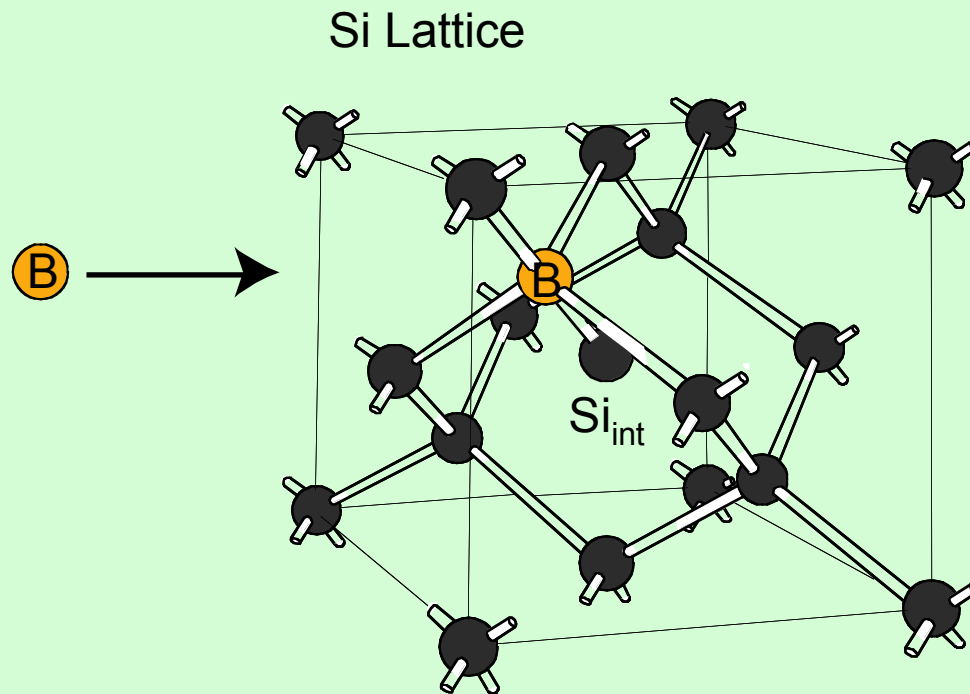
3種類の共鳴線

1. 鋭い共鳴 → 置換位置(Bs)
2. 四重極分裂した共鳴 → $\langle 111 \rangle$ 対称位置(Bns)
 $eqQ/h = 364 \pm 7 \text{ kHz}$
3. ν_L 近傍に広がった共鳴 → Bx

Temperature Dependence of Polarization Change



B(Substitutional)-Si(interstitial) Model



- Bond Center
 - Interstitial
- ではなく
Bs-Si_i pair が安定

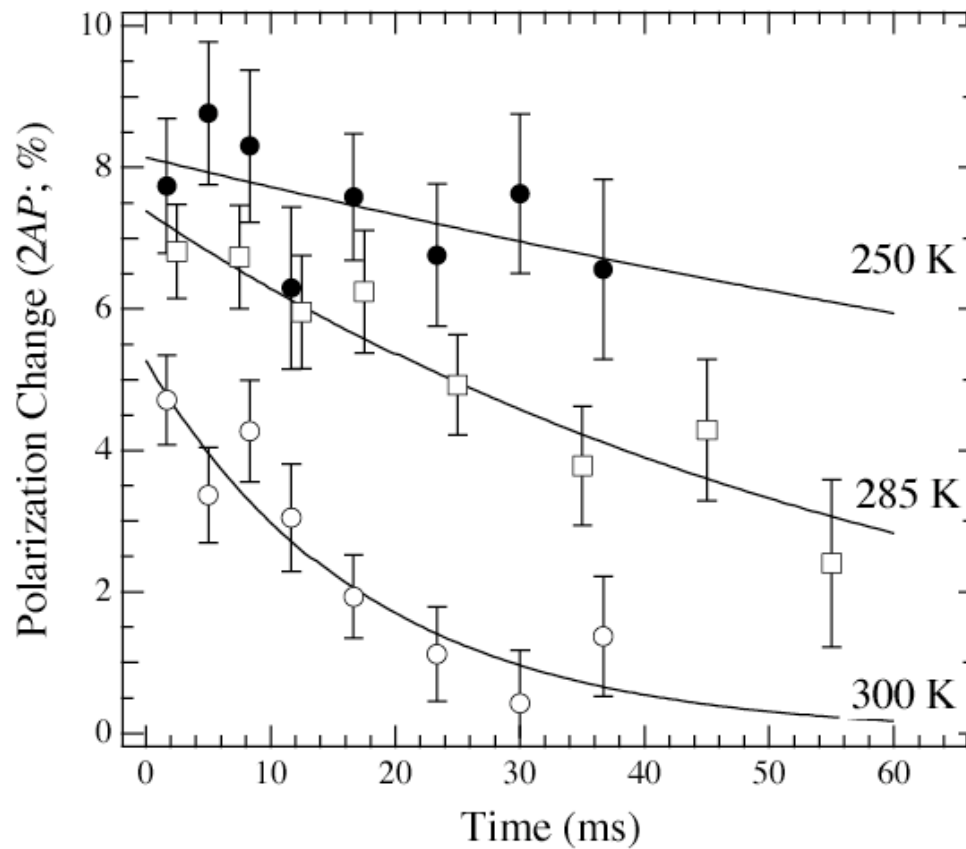
Tarnow, Europhys.Lett.**16**,449(91)

Lattice constant $a = 5.43 \text{ \AA}$

$$\left(\frac{\sqrt{3}}{4} a = 2.35 \text{ \AA} \right)$$

Spin-Lattice Relaxation of Bns

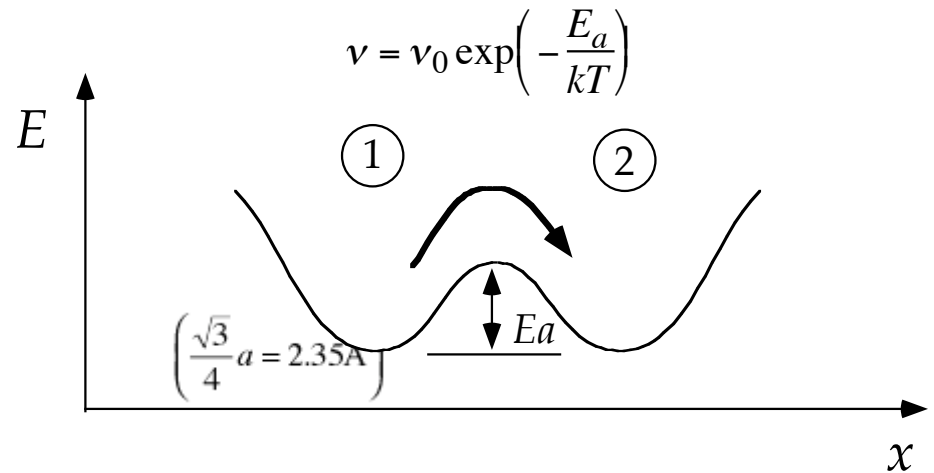
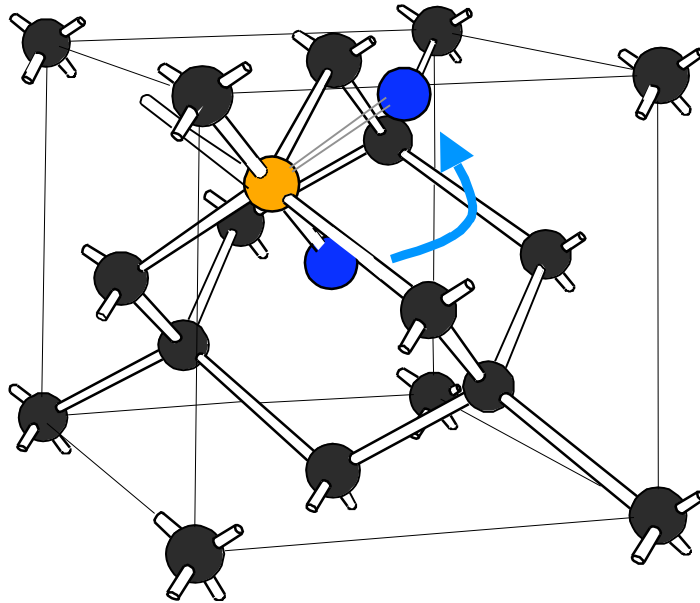
Relaxation of Polarization
p-type Si ($7 \times 10^{17} \text{ B/cm}^3$) sample No.2



室温付近で偏極が観測されなくなっている原因は、速いスピ格子緩和のためとわかる。

Atomic Jump of Bns

局所的原子ジャンプ

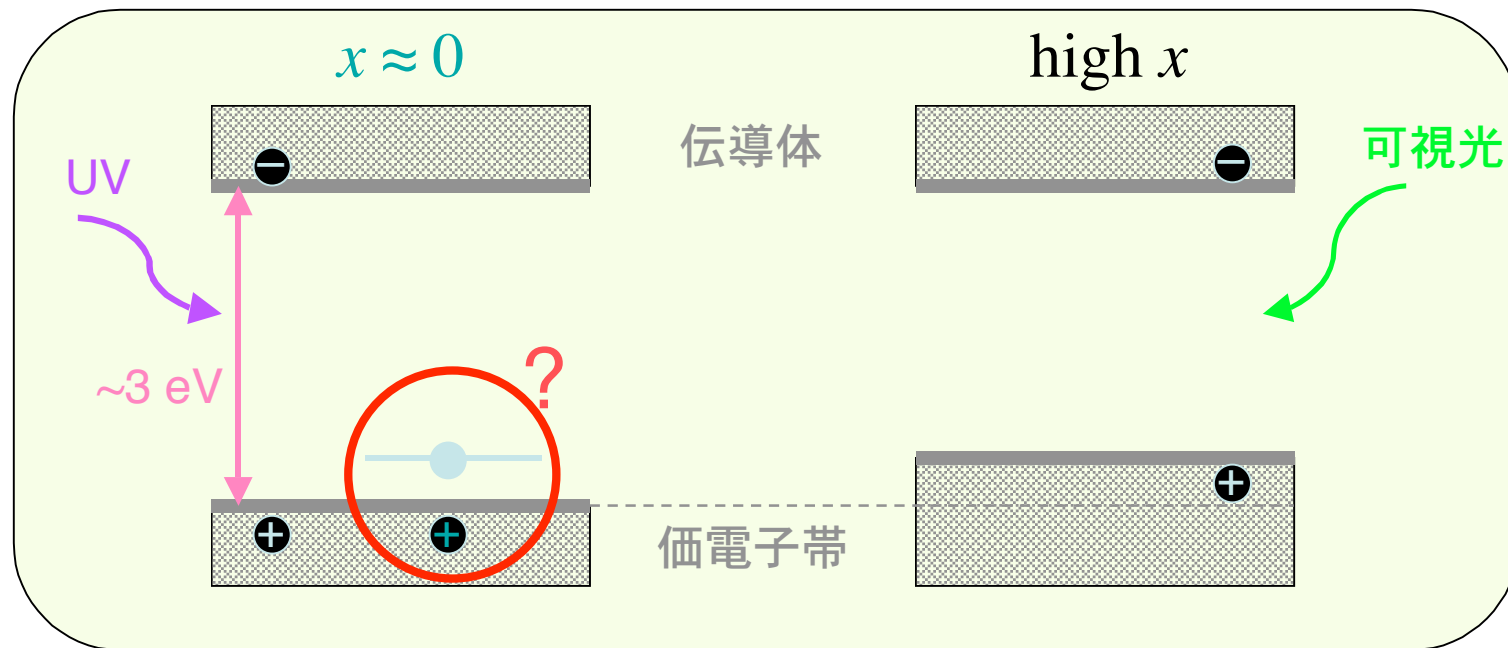


250–450 K: 格子欠陥の等価な位置を熱活性的にジャンプする。

$$E_a = (0.45 \pm 0.09) \text{ eV}$$

450 K ~ : B_s - Si_i 結合が解離

窒素ドーピング酸化チタン $\text{TiO}_{2-x}\text{N}_x$

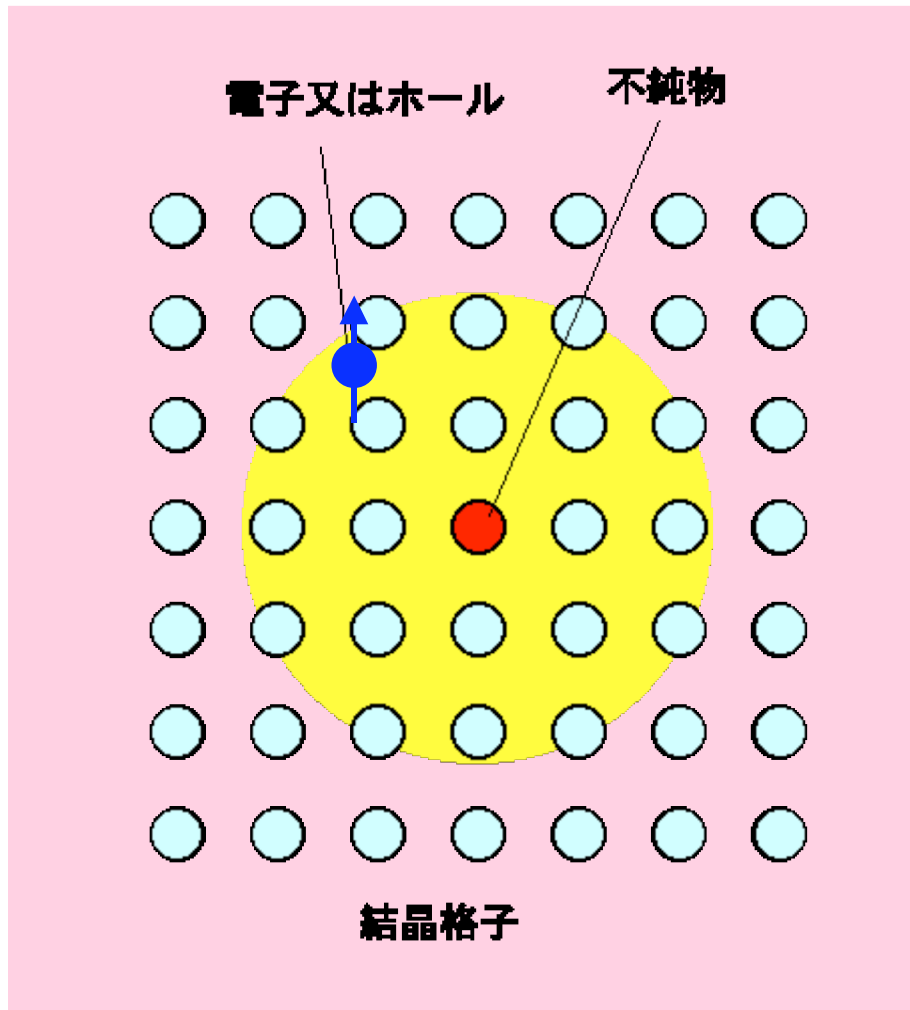


窒素置換（酸素サイト） ⇒ アクセプター準位形成

⇒ バンドギャップの狭窄 ⇒ 可視光応答型光触媒

Asahi et al., Science 293(2001)269 など

半導体中の浅い不純物準位



$$E = \frac{13.6}{\epsilon^2} \frac{m^*}{m} \text{ eV} \quad (\sim \text{meV})$$

$$a = 0.53 \frac{\epsilon}{m^*/m} \text{ \AA} \quad (10 \sim 100 \text{ \AA})$$

TiO₂ (ルチル)

$\epsilon_a \sim 115, \epsilon_c \sim 250 @ 4 \text{ K}$

$m_h^*/m < 1$

超微細相互作用 : $A_{\text{hf}} \propto |\Psi_e(0)|^2$

不純物核位置における超微細磁場 :

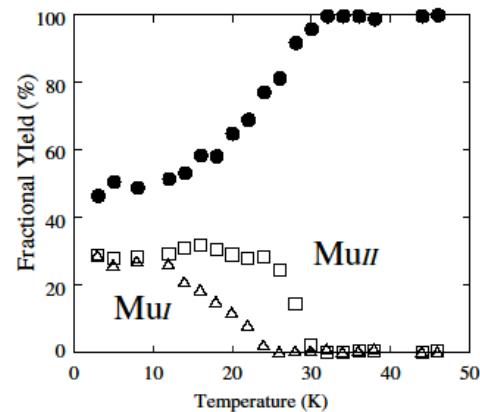
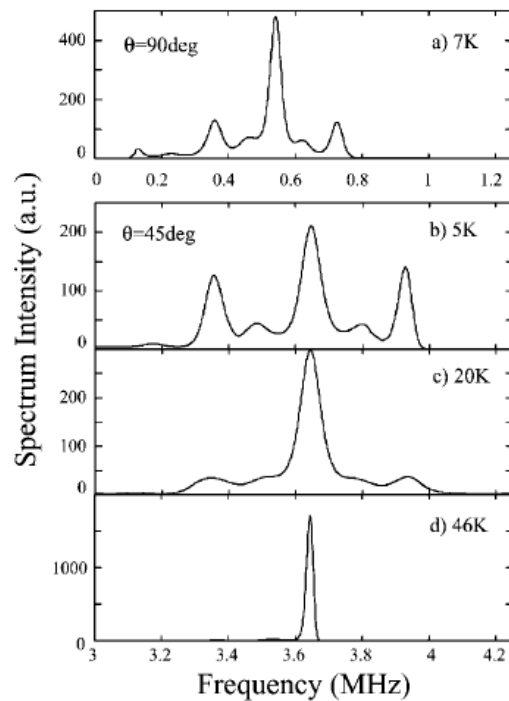
$B_{\text{hf}} \leq \sim \text{mT} ??$

β-NMR

半導体中の浅いミュオニウム

ZnO

Shimomura et al., PRL 89 (2002) 255505

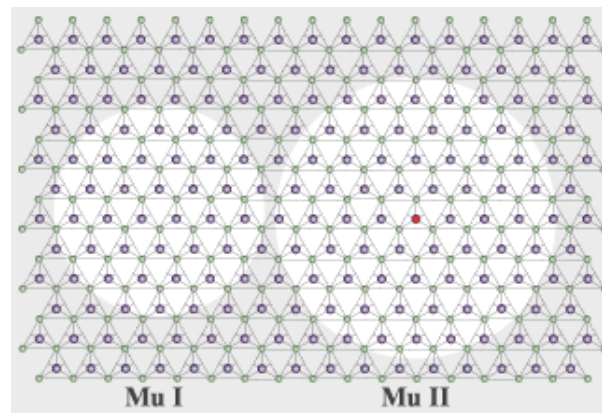


Hyperfine parameter

$$A/A_{\mu} \sim 10^{-4}$$

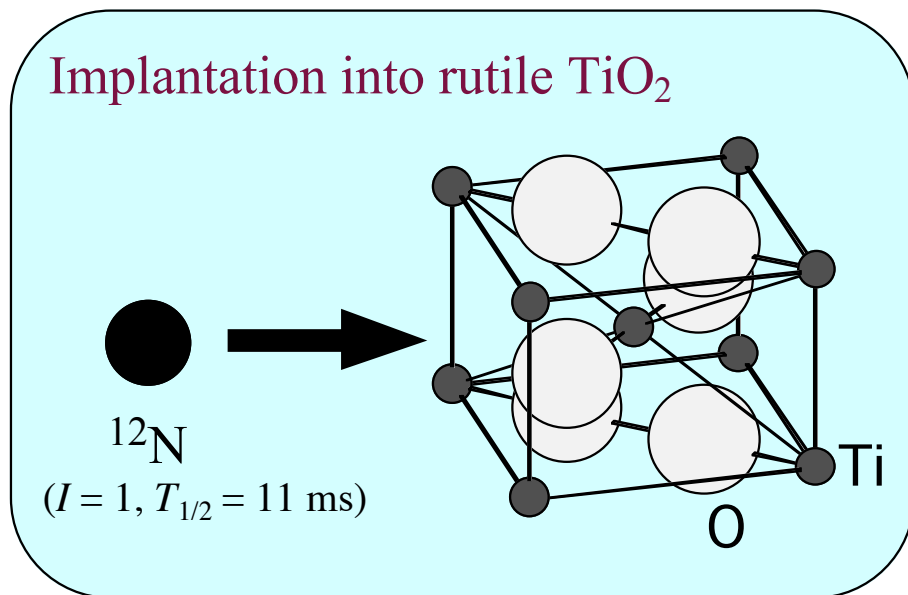
Ionization energy

$$1 \sim 10 \text{ meV}$$



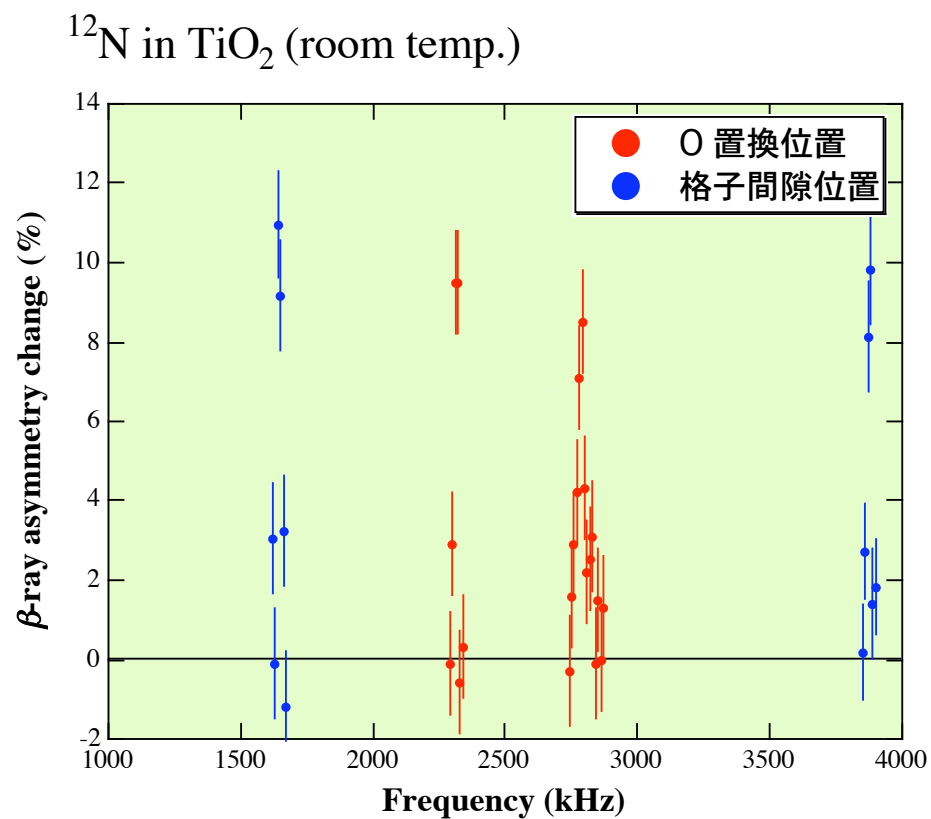
Hydrogen impurity strongly relates with electric conductivity

TiO₂ 中 ¹²N のサイト

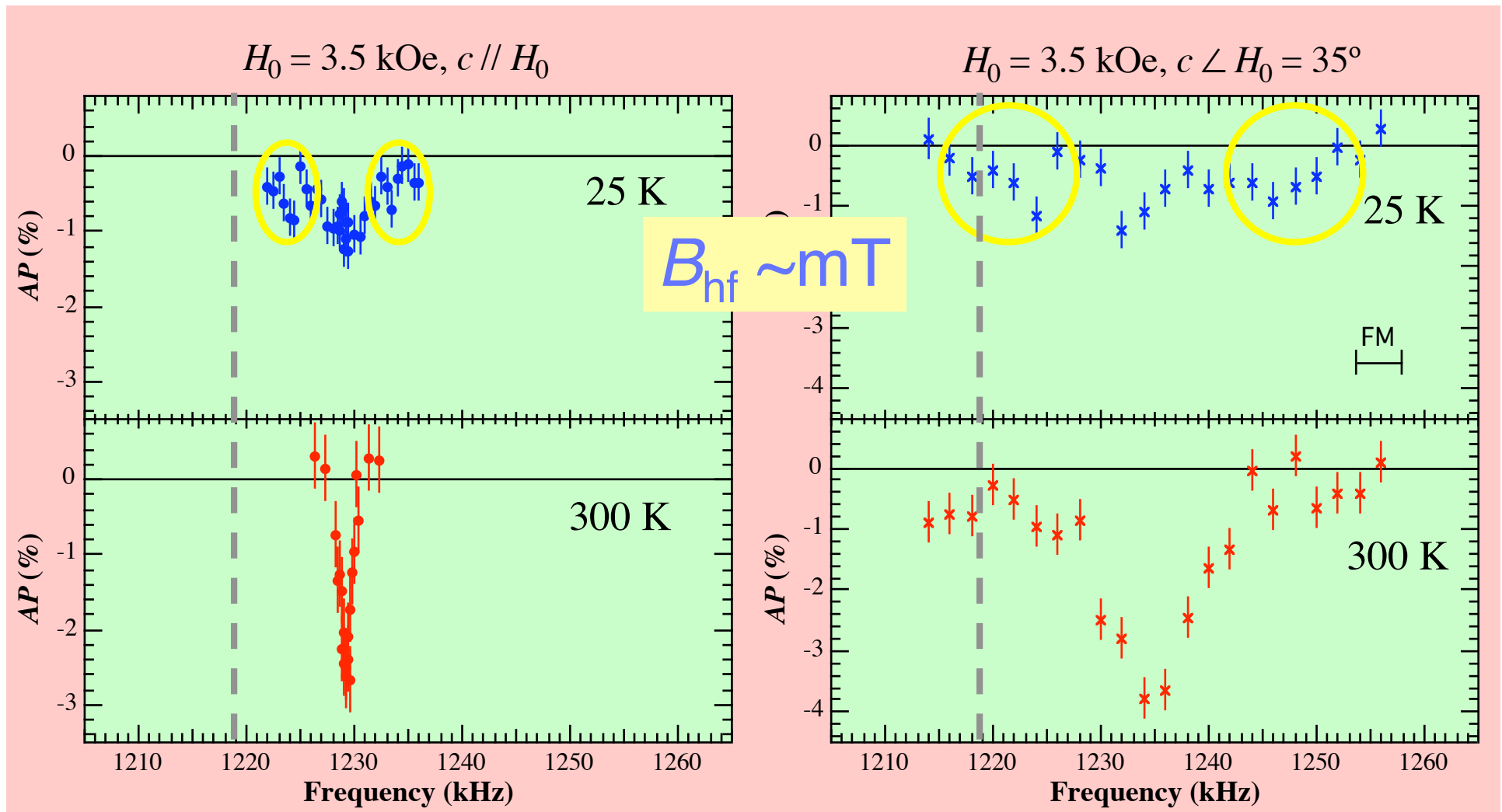


酸素置換位置 : 50%

格子間隙位置 : 50%



$^{12}\text{N}(I = 1)$ in TiO_2 二量子遷移スペクトル



磁気モーメント測定の実況

