解説

ミュオン(中間子)を用いた物性研究

永嶺 謙忠

高エネルギー加速器研究機構・物質構造科学研究所中間子科学研究施設*

理化学研究所ミュオン科学研究室

Condensed Matter Studies with Muons (Mesons)

Kanetada NAGAMINE

Meson Science Laboratory, Institute of Materials Structure Science High Energy Accelerator Research Organization (KEK–MSL) and Muon Science Laboratory, Institute of Physical and Chemical Research (RIKEN–MUON)

The paper describes briefly the principle of muon spin rotation/relaxaion/resonance studies of condensed matter, along with highlights of present research activities. Possible future directions are also outlined.

1. はじめに

ここでは中間子とはパイ中間子が崩壊してできるレプト ンであるミュオンのことであり、物性研究手法の一つとし て確立しているミュエスアール(µSR)法を用いた物質 研究を対象とする。

誕生後4半世紀がすぎているミュエスアール法の原理 は次の通りである。加速器で寿命が2.2マイクロ秒の素粒 子ミュオンを大量につくり物質中の原子結晶中に止める。 スピン偏極現象というミュオンが生まれながらにして持っ ている磁針によって,周囲から徴視的な磁場を受けてミュ オンのスピンが回転したりゆらいだりする。ミュオンスピ ンの運動はミュオンが寿命ののちにスピンの方向に放出す る高エネルギーの電子や陽電子を外に置いたカウンターで とらえることによって知ることができる。かくして,物質 内部の徴視的な磁場を高感度にプローブすることができ る。

以下に原理をやや詳しく説明すると共に,研究の現状と 今後の展望と課題について述べてみよう。

- 2. ミュオンとミュエスアール法
- 2.1 素粒子ミュオン

ミュオンによる物性研究を述べる前に, ミュオンとは何 であるか簡単に説明する。

ミュオンは、不安定素粒子の1つであり、正と負の電

荷を持つ $\mu^+ \ge \mu^- \ge \delta$ がある。基本的性質は表1の通りで あるが、周囲の原子分子との相互作用が電磁相互作用のみ によっているために、物性研究の立場からは μ^+ を軽い陽 子(質量:陽子の約1/9) μ^- を重い電子(質量:電子207 倍)と考えて大半の現象を理解することができる。物性実 験に使われる強度の高いミュオンは、加速器を用いて得ら れる。500 MeV 以上の高エネルギー陽子の核反応でパイ オンを発生させ、そのパイオンの崩壊によって生まれる。 素粒子崩壊の性質によってミュオンは進行方向に100%ス ピン偏極していて(図1a)、そのスピン偏極性は、 μ^+ の 場合には物質中に止まるまで保持され、 μ^- の場合には、 後に示すように、ミュオン原子生成によって減偏極する。

パイオンを大立体角でとりこみ運動量選別をした後長い 距離を飛行させて,偏極した高強度ミュオンが得られる。

表1 ミュオンの基本的性質

	μ+	μ-
質量 (MeV)	105.65956(24)	105.659(1)
スピン	1/2	1/2
磁気能率 (陽子との比)	3.183346(11)	
磁気因子/2	1.001165910(12)	1.001165936(12)
真空寿命(秒)	$2.19711(8) imes 10^{-6}$	$2.19948(10) imes 10^{-6}$
崩壊様式 (µ ⁺ のみ表示)	$e^+ + \bar{v}_{\mu} + v_e(100\%)$	

* 高エネルギー加速器研究機構・物質構造科学研究所中間子科学実験施設 〒305-0801 つくば市大穂 1-1 TEL 0298-64-5603 FAX 0298-64-5623 e-mail kanetada.nagamine@kek.jp



Figure 1a. Muon spin polarization originating from pion decay. In the case of positive muon, polarization is opposite to the direction of muon motion, while in the case of negative muon, it is along the direction of muon motion.



Figure 1b. Spatial distribution of positron and electron from the decay of muons. Positive muon emits positron preferentially along the spin direction, while negative muon opposite to the spin direction.

これを「崩壊ミュオン」と呼ぶ。また,高輝度で4 MeV の正ミュオンが,陽子ビームの標的の表面に止まった正パ イオンの崩壊によって得られ「表面」正ミュオンと呼ばれ る。

2.2 ミュエスアール法

スピン偏極したミュオンは、寿命がきて崩壊する際に発 生する陽電子・電子をスピンの方向に対して空間的な非対 称性を持って放出する(図1b)。従って、スピン偏極した ミュオンを生成し、調べたい試料に照射し、試料中にと め、崩壊後に放出される放射線をとらえることにより、ミ クロの磁針を得ることができる^{1,2,3}。

ミュオンの種類に対応して研究方法の異なる μ *SR, MuSR, μ -SR と3種の実験法がある(表 2)。金属などの 物質中に導入された正ミュオン(μ +)は100%のスピン偏 極度を保ったまま格子間位置にとまり寿命2.2 μ sで崩壊 し,その際にスピンの方向に最高エネルギー50 MeV の陽 電子を発生する。物質が半導体や絶縁体の場合には一部が ミュオニウム(Mu)とよばれる水素原子状の中性の束縛 状態をとる。Mu のスピンが1の常磁性状態(オルソ状態) は,偏極度50%,磁気能率が電子の約半分の大きさの磁 気プローブとなる。

これに対して物質中の負ミュオン(μ^{-})は、200倍質量 が重いため電子と入れ替わって、原子核のごく近傍に束縛 され、ミュオン原子とよばれる単一粒子の原子をつくる。 ミュオン原子の原子内遷移は1ns以下で基底状態に到達 する。核電荷Zのミュオン原子の基底状態は半径260 fm/ Z(1fm=10⁻¹³ cm)の小さな原子で、基底状態は核吸収 反応過程との競争のために寿命がZによっている(酸素: 1.8 μ s、銅:0.16 μ s, Sr, La:0.05 μ s など)。このZへの

表2 µSR 法のまとめ

	μ^+ SR	MuSR	µ−SR
偏極度	100%	50%	18%
空間分布	$1+0.33\cos\theta$	$1+0.17\cos\theta$	$1\!+\!0.06\cos\theta$
寿 命	2.2 μs	2.2 µs	$2.2 \mu s \sim 80 ns$ (a)
電子放出率	100%	100%	100%~4% (a)
 1 ガウスの外部 磁場での回転周 波数(kHz) 	13.554	1390	13.554 $(1-\varepsilon)$ (b)
結晶中の位置	格子間位置	格子間位置	結晶原子核に捕獲
性 格	軽い陽子	軽い中性水素原子	疑似原子核 (c)
主要研究対象	格子間磁性 拡散・空孔捕獲	化学反応	原子核周辺の電子 構造

(a) 捕獲する原子核が重くなると核吸収の割合が増し、寿命 が減少し、電子放出率が減少する。

(b) 捕獲する原子核が重くなるにつれて補正が必要になる。 Pb で $\epsilon \simeq 0.05$ ぐらいの補正がいる。

⁽c) 母体原子核の電荷が1だけ減り,ややふくらんだ原子核 と考えられる。



Figure 2. Typical layout of μ SR experiment with pulsed muons.

依存性のおかげで、 μ SR 信号が物質中のどの原子に束縛 された μ -からきているかを識別することが出来る。基底 状態の磁気能率は、相対論的効果などに応じた補正をうけ る(酸素:-0.09%、鉛:-5%)。ミュオン原子内の強い 徴細相互作用のために基底状態の偏極度は減少し、スピン 0をもつ核のミュオン原子の偏極度は約1/6となる。かく して核電荷 Z のミュオン原子の基底状態として束縛され た μ -は、原子核より少し拡がった(Z-1)電荷を持つ徴 視的磁気プロープとなる。

磁針の方向が進行方向にそろったミュオンを試料中に止め、放出される陽電子・電子に対して、空間に固定された 測定系により、陽電子・電子の強度の時間変化をミュオン 入射時を原点として測る。かくして、微視的な磁場による ミュオンスピンの運動を追跡することができる。これが µSR の基本原理である。

またミュオンスピンの方向に対して,崩壊電子・陽電子 の観測位置,印加する磁場の方向などの条件により,横磁 場法 (TF-μSR),零磁場緩和法 (ZF-μSR),縦磁場緩和 法 (LF-μSR),準位交互法 (LCR),共鳴法 (RF-μSR) などの分光手法がある。それらを要約すると表3のように なる。

実験は、図2のような配置で行われることが多い。試料



表3 µSR 実験手法のまとめ(検出器と磁場の配置および観測されるスペクトル)

にミュオンビームをとめ、とめた時間を時間の原点として 放出される陽電子(電子)を前後に置かれたカウンターで とらえ、陽電子(電子)の時間分布を測定する。ビームが 連続状(µSRの観測時間中に1つのミュオンが入射され る)であるか、パルス状(多数のミュオンを数10 nsの間 にパルス状に入射させµSRの観測時間内に次のパルスが こないようにする)であるかに従って、カウンターの形状 が異なる。連続状の場合には、入射されるミュオンを1 つ1つカウンターでとらえ、それに応じた崩壊陽電子(電 子)をとらえる。いっぽうパルス状の場合には、図2に示 すように、放出される陽電子(電子)の数え落としを少な くするために多数個に分割されたカウンターを用いてい る。

試料は様々な物性条件下に置かれる。数10 MeV のエネ ルギーの陽電子(電子)の測定にはクライオスタット,高 圧容器などの壁は障害にならず,カウンターは外部の空気 中に置かれる。入射されるミュオンの運動量により,入射 窓が必要となる場合がある。表面ミュオンと呼ばれる4 MeV の正ミュオンにはマイラーの窓でよく,MeV 以下 の低速ミュオンビームには窓なしで直接ミュオンを試料へ 導く。 μ SR の測定は、図2のような、ミュオンの入射方向に 対して前と後のカウンターのそれぞれで得られる陽電子 (電子)の強度の時間分布 N_B(t) と N_F(t)の比をとること で、ミュオンスピンの運動を示す情報を直接とらえること ができる。

$$\frac{N_B(t)}{N_F(t)} \!=\! 1 \!+\! A(t)$$

実験で得られた A(t) から,図 3 のような手続きに従って Kubo-Toyabe 理論^{4,5)}などの助けをかりて、ミュオンの感 ずる徴視的磁場の大きさやダイナミックスを知ることがで きる。

ミュオンの寿命2.2 μ s に対して, 0.01 μ s~50 μ s 程度が μ SR 測定の時間域と考えられるために, 微視的磁場の大 きさとそのゆらぎの特性時間の広い範囲にわたって(特に 弱い磁場のゆっくりとしたゆらぎに対して), 敏感である。 この時間域は, 他の物性測定手段と比べてユニークである (図 4)。

このユニークな応答時間を持つ特徴に加えて、ミュオン の偏極が素粒子崩壊によって自動的に与えられるために,





TIME EVOLUTION OF MUON DECAY ASYMMETRY A(t)

Figure 3. The μ SR time-spectrum expected from the magnitude and distribution as well as the fluctuation of the microscopic fields felt by the muons.



磁化率,残留磁気,ほカ

Figure 4. Range of the characteristic time of spin dynamics in magnetic materials probed by the μ SR method in comparison with the other methods assuming the case of fluctuating magnetic moment of one μ_B (T_R=transverse field, ZF=zero field).

外部磁場を必要とせずに微視的磁場の探索が出来る利点が ある。また後で示すように,格子間位置や特定の核の近く へ微視的な磁針を持ちこめるために,ユニークな物性研究 が可能となる。

また中性子や放射光の散乱実験に必要な位相干渉性を必 要としないために,ランダム磁性や非晶質の微視的プロー ブとして有用性が認識されている。

標準的なミュエスアール実験は、4 MeV 正ミュオンと 1 円硬貨程の試料を用いて行われ、図3のようなスペクト ルは、数分から数10分で取得出来る。容器の中の試料に 対しては崩壊ミュオンが必要で、数倍時間がかかり、負ミ ュオンの場合は偏極度と崩壊電子数の減少から10倍以上 の時間がかかる。

3. ミュエスアール物性のこれまでの成果

ミュエスアール法による物性研究は,1970年代頃から 大強度陽子加速器「メソンファクトリー」の発展と歩調を 合わせて盛んになり,1980年代のUTMSL/KEK や RALにおけるパルス状ミュオン施設の完成によりさらに 進展した。

最もポピュラーな正ミュオンを用いた μSR による物性 研究には,正ミュオンがどの位置にとまり,どのような場 を見るかを知らなければならない。次のような手続きで実 験研究が進められる。

1. 正ミュオンの位置の決定を行う。単結晶を用い周囲

の核磁気による緩和を通じて位置をきめる。それがむずか しい場合は、物質の磁気原子の磁気双極子場を用いる。

2. 位置の判った正ミュオンの感ずる双極子緩和や内部 場を測定し, 微視的磁場の大きさやゆらぎをプローブす る。

負ミュオンの場合はミュオンが束縛された原子に応じて 寿命が異なることを利用して位置を決める。

これまでに物性研究に応用された代表例としては次のような物がある。以下に項目と簡単な説明を付ける。

金属磁性体の格子間位置の µ⁺ 内部場や原子核や近傍の µ⁻ 内部場の測定

 μ SR に研究の開始と共に '70年代に盛んに観測が行われ た。Fe, Ni, Co などの代表的な金属磁性体の μ^+ 格子間位 置における伝導電子偏極による内部場が測定された^{1,2)}。 実験結果の理解から, μ^+ の正の電荷による遮蔽効果の補 正などの後に, 伝導電子スピン偏極の空間分布の詳細を明 らかにした。

一方 μ⁻ は核のごく近くに束縛されるため,NMR 内部 場の値と組合わせて,磁性原子内電子のスピン偏極の空間 分布に関する知見を得ることになる。結果は,金属磁性特 有の内殻電子のスピン偏極に特有な核近傍の空間分布の精 密な知見を提供している⁶⁾。

また μ^+ の感じる微視的内部場の温度依存性の測定結果 と、磁性原子の巨視的磁化の変化との差から、磁気励起の 新しい側面を明らかにした。一例として、 μ^+ 内部場の特 異な温度変化から強磁性 Ni 中の電子励起効果の重要性が 明らかになった^{7,8)}。

② 金属磁性体の臨界現象や,重い電子系などの磁気秩序 の観測

外場零の下でしかも高温まで測定が可能であり、磁性イ オンのスピンダイナミックスに対する特異な"時間窓"を 有する特徴を生かして、磁性体の磁性スピンの臨界揺動を とらえる実験が行われた。強磁性 Ni 中の臨界現象⁹⁾をは じめ、遍歴磁性体 MnSi¹⁰⁾などが対象となり、NMR では 得られない微視的観測量を得ることが出来ている。

高感度磁気プローブとしての μ SR 法の特徴は、 0.1μ B 以下の小さな磁気モーメントをもたらす弱い磁気秩序が他 の物性手段に先がけて、 μ SR 法によって明らかにされ た。UPt₃, Th 系, Ce 系などの重い電子系の磁性秩序¹¹⁾等 々の例がある。

 スピングラスなどのランダム磁性体のスピンダイナミ ックス

磁性スピンの運動に対して特異な"時間窓"を持つ特性 を利用して,磁性体の動的な性質が明らかになる。さらに 干渉性を必要としない特性を利用して,空間的に磁気スピ ンがランダムに配置されている系のスピンダイナミックス が徴視的に高感度でとらえられた。

代表的な例は稀薄磁気不純物を有する <u>Cu</u>Mn, <u>Au</u>Fe な どの金属スピングラス系¹²⁾である。さらに、磁気異方性 や強磁性・反強磁性の競合する混晶系でのスピングラス秩序などの問題に拡張された¹³⁾。

④ 高温超伝導体関連物質の磁性の研究

外部磁場をかけることなく物質の磁気的性質を調べるこ とのできる性質と、弱い微視的磁気秩序を高感度に探るこ とのできる特性を生かして、µSR 法は高温超伝導体の磁 気的性質、磁気相図の作成に利用されている。

YBCO 系の酸素濃液の低いテトラ II 相が反強磁性であ ることが、他の方法に先がけて μ SR 法よって発見され た¹⁴⁾。LaSrCo 系のスピングラス相と超伝導相との共 存^{15,16)},LaBaCuO 系での Ba 濃度0.125(1/8)近傍で超伝 導性が消失する際に反強磁性になることなどが μ SR 法に よって初めて明らかになった¹⁷⁾。同様なことがLaSrCuO 系で Sr 濃度0.115において起きていることが判った¹⁸⁾が、 未解決の問題となっている。

⑤ ミュオンによる導電性ポリマーの電子伝達の研究と生 命科学への拡張

ポリアセチレンなどの有機半導体ポリマーに正ミュオン が導入されると、減速される間にひき連れてくる電子が、 正ミュオンが化学結合する際にラジカル状態として固定さ れたり、解き離されてポリマー鎖上を運動をする。シスポ リアセチレンでラジカル状態となる電子は、トランスポリ アセチレンではソリトン状の運動形態をとる^{19,20)}。

この性質をつかうと、伝導性ポリマー全般にわたって電子伝達機構を明らかにすることができる。ポリアニリンなどの中でのポーロランによる電子伝導などの本質が明らかになった²¹⁾。

今後の発展として,蛋白質などの巨大分子中の高速電子 伝達機構の解明が考えられ,広く µSR 法の生物医学への 応用が考えられる。ごく最近,チトクロム C 蛋白質中の 電子伝達を直接とらえる実験が理研-KEK グループによ って成功をおさめた。

⑥ 正ミュオンの金属や絶縁体中の量子拡散

正ミュオンは質量が1/9の軽い陽子と考えられるので, 物質中の水素状軽粒子の拡散と関連する現象が探求でき る。金属銅中の正ミュオンが極低温で速い拡散を示す量子 拡散現象が明らかになった²²⁾。さらにアルカリハライド などの絶縁体中のミュオニウムの量子拡散が明らかになっ た²³⁾。

⑦ 半導体中のミュオン粒子中心の存在状態と反応

半導体中の水素は精製過程に混入することが不可避の不 純物であると同時に,半導体を"活性化"させ他の不純物 の効果を阻止する働きがある。このように重要な水素不純 物中心の性質を解明する方法として,ミュオンやミュオニ ウム分光法が活用されている。Si, Ge, GaAs などで μ^+ , Mu^- , Mu^0 , などの中心の電子状態,存在位置,拡散など の知見が得られている²⁴⁾。

1996年4月に日光で行われたミュエスアール国際会議 の周辺においてさらに次のような進展があった。 (1) *µ*+SR 法によるスピン一重項磁性体関連物質の新しい 磁気秩序形態の発見

基底状態がスピンー重項である様々な磁性体に μ +SR 法が適用され,他の方法では検知できない弱い磁気秩序が 調べられた²⁵⁾。特に,NEMP や LaCoO₃ などに新しい磁 気秩序を想起させるデータが出て,プローブ効果ではない かという疑問も生まれている。

(2) 半導体中のミュオニウム中心をめぐる深い理解の進展 Si や Ge などの光照射下の µSR 測定が行われた²⁶⁾。光 励起電子とミュオン中心との相互作用を調べると同時に, Si 中のミュオニウム中心の安定状態について,新たな知 見が得られた。

(3) 超低速正ミュオンの本格的発生と表面研究への応用の 萌芽

keVの正ミュオンビームが、µSR 法に使える強度で得 られるようになった。KEK-MSL では1次ライン上に置 かれた高温タングステン表面から蒸発するミュオニウムの レーザー共鳴解離によって^{27,28)}, PSI では稀ガス固体膜を 用いて減速中に数 eV の正ミュオンに変換することによっ て²⁹⁾,超低速正ミュオンを得ている。

既に、このような超低速 μ^+ が偏極していること、引き 出し電圧に応じて数10 A の飛程を持ち、表面原子層の磁 性をプローブ出来ることが判っている。

今後の展望と課題

創始から4半世紀が経過したミュエスアール物性研究 は、21世紀をむかえて新しい発展を遂げようとしている。 つぎのような課題を解決し前進してゆかなければならな い。

 本格的大強度陽子加速器の建設と実験ファシリティの 設置。

我が国のミュオン物性の発展のためには、大強度陽子加 速器の早期建設が必要不可欠である。現時点で KEK-MSL のミュオン強度は、世界最強のパルス状ミュオン源 ISIS の1/40、直流状ミュオン源 PSI の1/200であり、ミ ュエスアール実験の対象や手法に大きな制限があり、テス ト実験的なことのみが行えている状態である。2000年か ら遠くない時期に MW クラスの「大型ハドロン計画」が 実現することが、物性研究をはじめとする我が国のミュオ ン科学研究の存亡を決すると言ってよい。

② 先駆的なミュオンビームの開発と利用。超低速ミュオンと表面科学研究など。

陽子ビームからミュオンを作るこれまでの方法は最善の ものとは言いがたい。1%以下のパイオンが利用され99% のパイオンは使われずに捨てられている。最近,素粒子実験の要請から,10¹⁰/s以上の強度を出すミュオン発生源が 議論されている。ミュオンの物性利用の立場からも,新し いミュオン発生源をぜひ導入すべきである。その路線の延 長上に本格的な超低速ミュオンの発生と利用が考えられよ う。

③ 物質の環境条件のダイナミックな変化に対応した高感 度微視的測定法の確立。

大強度ミュオンの実験によって,さまざま時系列的な実 験が実現されよう。磁場, RF, レーザー,高圧,イオン 照射,等々の物性環境条件のダイナミカルな変化に対する 物質の微視的物質の変化を追跡するような実験が行われる ようになる。このような時代に対応した先端的試料環境作 りが必要となろう。

文献

- A. Schenck: "Muon Spin Rotation Spectroscopy" (Adam Hilger, 1985).
- 2) 永嶺謙忠: "ミュオンの科学(Frontier Science Series)"(丸 善, 1988).
- 3) 石田勝彦, 門野良典, 西田信彦, 西山樟生編: "µSR ミュ オンスピン回転・緩和・共鳴(固体物理特集号)"(アグネ 技術センター, 1991).
- R. Kubo and T, Toyabe: Magnetic Reconance and Relaxation, ed R. Blinc (North Holland, 1967).
- 5) R. S. Hayano et al.: Phys. Rev. B20, 850 (1979).
- 6) T. Yamazaki: Hyperfine Interactions 8, 463 (1981).
- 7) K. Nagamine et al.: Hyperfine Interactions 1, 517 (1976).
- H. Katayama-Yoshida et al.: Solid State Comm., 29, 431 (1979).
- K. Nishiyama et al.: Hyperfine Interactions 17-19, 473 (1984).
- 10) R. Kadono et al.: Phys. Rev. B42, 6515 (1990).
- 11) A. Amato: Rev. Mod. Phys. 69, 1119 (1997).
- 12) Y. J. Uemura: Phys. Rev. B31, 546 (1985).
- 13) 伊藤厚子:固体物理 11,28 (1991).
- 14) N. Nishida et al.: J. Appl. Phys. 26, L1856 (1987).
- 15) H. Kitazawa et al.: Solid State Comm., 67, 1191 (1988).
- 16) E. Torikai et al.: Hyperfine Interactions 63, 271 (1990).
- 17) K. Kumagai et al.: Hyperfine Interactions 86, 473 (1994).
- 18) I. Watanabe et al.: Hyperfine Interactions 86, 603 (1994).
- 19) K. Nagamine et al.: Phys. Rev. Lett. 53, 1763 (1984).
- 20) K. Ishida et al.: Phys. Rev. Lett. 55, 2009 (1985).
- 21) F. L. Pratt et al.: Phys. Rev. Lett. 79, 2855 (1997).
- 22) R. Kadono et al.: Phys. Rev. B39, 23 (1989).
- 23) R. F. Kiefl et al.: Phys. Rev. Lett. 62, 792 (1989).
- 24) R. F. Kiefl et al.: Hydrogen in Semiconductors, eds. J. Pankove et al. (Academic Press, 1990) 597.
- 25) K. Kojima et al.: Phys. Rev. Lett. 74, 2812, 3471 (1995).
- 26) R. Kadono et al.: Phys. Rev. Lett. 73, 2724 (1994).
- 27) K. Nagamine et al.: Phys. Rev. Lett. 74, 4811 (1995).
- 28) Y. Miyake et al.: Nucl. Instr. Meth. **B95**, 265 (1995).
- 29) E. Morenzoni et al.: Phys. Rev. Lett. 72, 2793 (1995).