

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 26 日現在

機関番号：82118

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2010～2014

課題番号：22604011

研究課題名(和文) 超臨界金属における金属絶縁体転移のミュースアール法による研究

研究課題名(英文) Metal-insulator transition of liquid metals near the critical point studied by muSR technique

研究代表者

幸田 章宏 (Koda, Akihiro)

大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構・物質構造科学研究所・研究機関講師

研究者番号：10415044

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,100,000円

研究成果の概要(和文)：超臨界金属における金属絶縁体転移のミュースアール法による研究を実現するため、まずミュースアール実験に適した高温・高圧試料環境の要素技術の開発に取り組んだ。高温発生に対してはジュール加熱による方法を検討したが、印加される大電流によって生じる磁場の影響が無視できないことが判明した。他の手法や解決策に関しての検討は、様々な事情により進展を見なかった。高圧発生に対しては各種アンビル材の評価をおこない、AN1800がミュースアール用高圧セル材料として有望であることを見出した。実験施設のトラブルなどもあり、最終目標である超臨界金属のビーム実験には到達できなかった。

研究成果の概要(英文)：It is proposed to investigate the metal-insulator transition of liquid metals near the critical point by using muon spin relaxation (muSR) technique. In order to achieve this, we have started to establish experimental techniques at high-pressures and high-temperatures. It turned out that high intensity current to raise the sample temperature by Joule heating induces magnetic field, which is not negligible for the muSR experiment. Further consideration to improve the problem was suspended due to several troubles happened at J-PARC in recent years. On the other hand, it was found that an anvil material AN1800 is suitable for the high-pressure cell employed in muSR experiments. In summary, the planned experiment have not been performed yet, because of undesirable events mentioned above.

研究分野：ミュオン物理

キーワード：金属絶縁体転移 強相関電子系 物性実験 粒子線 ミュースアール法

1. 研究開始当初の背景

(1) 超臨界金属研究の学術的意義

原子や分子が凝縮して金属となる、そのときいったい何が物質中で起きているのか。金属元素からなる気体は金属的電気伝導を示さない、すなわち非金属(絶縁体)である。他方、金属元素からなる液体は金属的電気伝導を有する。つまり結晶格子における長距離の並進対称性は失われても、電子のバンド構造という描像は有効であり、電子相関が存在することを示唆する。では金属と非金属の境はどこにあるのか?そこには金属-非金属転移(以下、MI転移)が存在するのか?

よく知られているように、超臨界状態の物質では液相から気相まで、連続的に密度が変化しうる。このような超臨界状態を利用してMI転移を調べる研究はじつは長い歴史を持っている。たとえば代表的な物質、Hgでは液相の中でMI転移があり、これはバンド交差(エネルギーギャップの消失)によるMI転移であると考えられている[1]。近年の測定技術の発展により、さらにマイクロ視点からの情報が得られるようになり、MI転移近傍での物質の挙動に関するより多くの知見が得られるようになってきた。Tamuraらは放射光X線によりHg、Rb、SeなどのMI転移を詳細に調べ、この付近において配位数にゆらぎがみられるなど、動的な振る舞いが重要な役割を担っていることを指摘した[2]。とくにRbやSeではMI転移近傍に二原子分子状態の出現を見出したことは興味深い発見である。これら現象は、たとえば同じく二原子分子である水素や酸素の圧力誘起による金属化[3、4]との対比という意味においても興味を持たれる。

(2) 実験技術上の背景

以上のように臨界点近傍におけるMI転移は物質の普遍的な挙動として興味深い現象であるが、実験のために必要となる高温・高圧環境の技術的な難しさから、数えるほどの実験が報告されているのみである[5]。このような特殊な試料環境を実験手法それぞれにフィットするよう工夫をこらす必要があること、場合によってはかなり大がかりな実験装置とならざるを得ないことは容易に想像できるであろう。本研究課題が対象とするような高温・高圧環境でミュオンビーム実験を行ったという例は過去にない。

たとえばアルカリ金属CsにおけるMI転移は電子相関の発達によるモット転移であるとされているが[6]、これにともなう反強磁性相関などを実験的に検証した例はない。NMR法による研究ではCsが高温低密度非金属状態になるとNMR信号そのものが消失してしまう[7]。なぜならNMR法では信号強度はボルツマン因子に従い、さらに低密度状態ではピックアップコイルに対しての充填因子も落ちてしまうからである。そこで、このような広い温度-圧力領域を調べるこ

の可能なマイクロプローブが望まれていた。

ミュオンスピン緩和法(以下、 μ SR法)は試料中に静止したミュオンスピンの振る舞いから局所的な電子相関を検知する実験手法である。静止するミュオンの数、すなわち信号のS/N比は物質の質量によって決まるため、対向アンビルなど高圧セル内に試料を封じ込めた実験条件では、たとえ大きな密度変化があっても静止するミュオンの数は変化なく、測定のS/N比は一定となる。またミュオンは生成されるときに対称性のやぶれにより100%の偏極を有しているため、温度によって信号強度が変わるようなことはない。以上のように高温・高圧の実験対象に対して μ SR法は強力なアドバンテージを有していると言える。実験遂行上の技術的困難をなんとか克服し、超臨界金属のMI転移を研究する有力なツールとして μ SR法の出番が待たれているとも言えよう。

2. 研究の目的

本研究課題では μ SR法により、MI転移をともなう臨界点近傍の電子相関を明らかにすることを目指す。とくにアルカリ金属Cs(臨界点は1900K、93気圧)の臨界点近傍における反強磁性相関の発達と、放射光X線実験などから示唆されている動的な挙動との関連を電子相関という観点から解明することを第一の目標に掲げる。

3. 研究の方法

本研究課題の実現に向けた技術的開発に関しては、(1) μ SR測定を視野に入れた高温・高圧発生技術の開発、(2)高いバックグラウンドイベントレートの試料環境でS/N比を改善する試みの二つの柱にまとめられる。前者については、ドリッカマー型の定荷重方式による対向アンビル圧力セルを採用することで、本研究の対象である密度変化の非常に大きな試料に対しても温度-圧力相図の広い範囲にわたってS/N比をほぼ一定に保つことができると考えている。このことはミュオンを測定手法として用いるという研究の着眼点の主要なものである。また後者については、ビームコリメーターによる微細ビームの利用として、大強度ミュオンビーム実現によりなされる成果として従来から期待されているものである。しかしシミュレーションと実際のビーム利用によるR&Dに時間がかかるため、あまりまとまった取組として結果を示すまでに至っていない。

以上のように本研究はこれまでミュオンをはじめ他の測定手法をしても実験遂行が困難な温度-圧力領域において実験を可能ならしめる実験技術の開発が主体となるものである。そこで、以下に示すように実験技術要素の開発をステップバイステップの積み重ねとして研究の実現に到達するように、研究計画を検討した。実験技術要素としては次のものがあげられる。

- (ア) μ SR 測定の高温発生方法の検討
- (イ) μ SR 測定の高圧発生方法の検討
- (ウ) 上記、(ア)(イ)を組み合わせると同時に実現する方法の検討
- (エ) 高温・高圧セルの試料周辺からのバックグランドに対するシミュレーションによる評価・検討

これらの検討結果について次の項に示す。

4. 研究成果

(1) μ SR 測定のための高温発生方法

ドリッカマー型対向アンビル高圧セルの採用を念頭に高温発生方法の検討を行った。高温・高圧実験の専門家と意見交換した結果、ごく一般的な手法としてグラファイトセルを用いたジュール加熱が第一に検討すべき手法と考えられた。しかしこの手法では試料周辺に大電流を印加する必要があり、検討段階半ばにおいて、熱ミュオニウム生成標的研究を行っているグループとの意見交換の中から、この大電流にともなって発生する磁場は μ SR 測定において無視できないことに気付いた。熱ミュオニウム生成の研究では、ミュオンを入射するタイミングにあわせて電流をパルス遮断する特殊な電源を利用している。本研究課題でそのような特殊な電源を製作する予算は確保できないため、さしあたって電流をパルス状に印加しつつ、電流が流れた、つまり試料周辺に磁場が生じるタイミングでミュオンが入射されたイベント信号と、そうでないイベント信号とを振り分けてヒストグラムに記録するという策をとることにした。

しかしながら、この手法の有効性についての検証をおこなうとしていた段階で、J-PARCではハドロン施設の放射線事故、さらに物質生命科学実験施設での火災事故とトラブルが相次いだ。圧力セルのモックアップに対して加熱実験を J-PARC 関連施設で行うには、(ビームの有無にかかわらず)安全に対する検討がこれまで以上、十分なされたことを示すよう求められることとなり、残念ながら検証を十分に尽くしたと言えるほど成果をあ

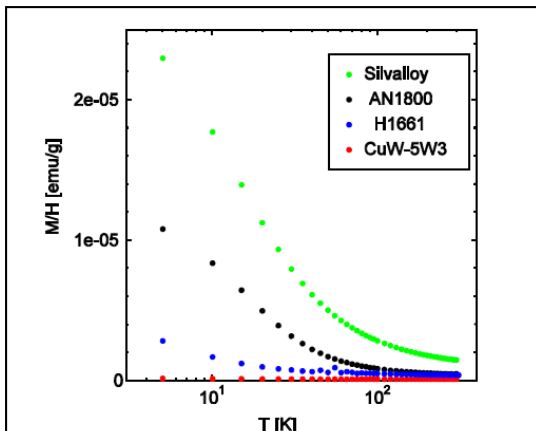


図1: いくつかのアンビル材候補についての磁化率の温度依存性

げるまでに至らなかった。また、ジュール加熱以外の μ SR 測定に適した高温発生手法があるのではないかと問いに対して、いまだ明快に答えを出すことができていない。今後の研究の展開に期待を抱いているという現状である。

(2) μ SR 測定のための高圧発生方法

研究目的の項にも記述したように、本研究課題のもっとも特徴ある点は温度 - 圧力相図の広い範囲において μ SR 測定のS/N比をほぼ一定に保つことができるであろう対向アンビル高圧セルの採用にある。ただし試料近傍に位置する対向アンビルには、少なくないミュオンが静止しバックグランドイベントとなる。このイベントの数そのものを小さくすることには限界があるため、むしろバックグランドとして試料からの μ SR 信号と紛らわしい信号を出さないようなもの、つまり核磁気のレベルにおいて非磁性であるような材料の使用が望ましい。ところで、世間一般で利用・流通されている高圧用金属材料(いわゆるアンビル材)は強磁性体であることが珍しくない。強磁性の対向アンビルから試料に及ぼされる磁場の影響は容易に予想されることであるが、さらに μ SR 測定においては外部から印加した磁場に対するスピン緩和応答も観測対象であるため、この観点からも非磁性のアンビル材を使用する必要がある。以上の目的のため、定荷重で圧力を発生するピストンにはアルミ合金を用いたものを採用した。この非磁性ピストンとプランジャー押し出し方式による油圧ポンプとの組み合わせで圧力発生の実験を実施したところ、油圧循環回路の改良などに取り組んだ結果、満足のいく成果を得ることができた。またアンビル材として、いくつかの候補材料について帯磁率、 μ SR 測定、降伏応力という三つの側面についての検討を行った。

図1に示すように帯磁率という面では銅タングステン合金がもっとも有望であったが、降伏応力が他の材料に比べて非常に低いため、以降の選考候補からは外した。ただし、装置内の圧力セルから離れた部分のような、あまり温度が高くならず、かつ高い降伏応力

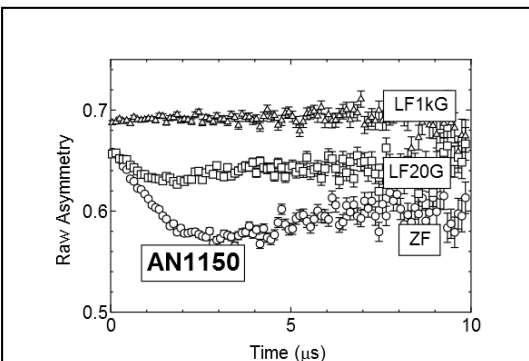


図2: アンビル材 AN1150 の室温における μ SR 時間スペクトル

を必要としない箇所においてはコストという点でも有望な材料であると言える。 μ SR 測定の結果から AN1150 はミュオンスピン緩和が顕著に観測されており、試料近傍の圧力セル材料としては適当でないことが判明した(図2)。他方、AN1800, H1661 とともに、AN1150 のような μ SR 信号は観測されず、両者ともに有望な材料であることが分かった(図3)。より高い降伏応力を有することから、以降の検討は AN1800 を第一候補として進めていくこととした。

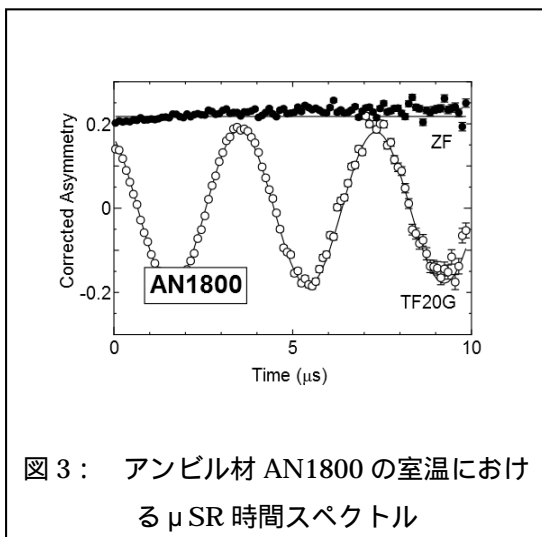


図3: アンビル材 AN1800 の室温における μ SR 時間スペクトル

(3) μ SR 測定のための高温・高圧発生技術を同時に組み合わせ実現する手法

上述の通り、高温発生技術の検討が途中段階で足踏み状態となったため、組み合わせについての検討も目立った進展が見られなかった。

(4) 高温・高圧セルの試料周辺からのバックグラウンドに対するシミュレーションによる評価・検討

高圧発生方法の検討の項で述べたように、試料周辺には非磁性の材料を用いることでバックグラウンドの寄与を極力、抑えることに開発の目標を据えた。しかし一方で試料以外の位置に静止したミュオンの崩壊イベントを観測しないようカウンターテレスコープを配置することでも、さらなる S/N 比の改善が期待できる。また研究目的の項でも触れたように、ビームコリメーターの最適化による微細ビーム利用という点も含めて、シミュレーションコードによる検討がたいへん有用である。とくに本研究課題で利用する予定の高運動量ミュオンビームでは、ビームコリメーターの挿入は同時にビームコリメーターを構成する重い元素によるビーム散乱も生じることとなる。試料近傍にカウンターテレスコープを配置する場合には散乱されたミュオンのダイレクトヒットを避けるような工夫も求められる。以上のような目的で、Geant4 による圧力セルおよびビームコリメーターの配置に関する検討を行った。また

PSI 研究所で開発された Geant4 をベースとしたパッケージ musrSim を用いて、崩壊陽電子カウンターテレスコープの配置に関する検討を行った。

その結果、ビームコリメーター開口径と長さの最適化に関する一定の知見を得ることができた。しかしながら、上述のように実際のビームを用いてシミュレーション結果の検証を行うところまでは到達できなかった。また当初の研究計画にあげていた、ビームコリメーターを圧力容器の一部として構成するというアイデアについては、十分、検討を詰めることができなかった。原因のひとつには有限要素法を用いた圧力容器の応力分布の検討そのものの時間を十分にかけることができなかったということが挙げられる。圧力容器はビームに対する制約とともに、高温発生装置としての制約も大きく、やはり高温発生技術の検討についてある程度、方針が定まらない段階では圧力容器の検討も進められないという事情がある。

(5) まとめ

研究計画の実現のための技術要素の開発という点では、いくつか成果が得られたが、最終目標であった試料を用いたビーム実験の実現には、なおかなり遠い道のりを残して研究を終えざるを得ない結果となった。反省すべき点としては、高温・高圧・ビームという複合的な先端技術を総合する研究計画の上で、いずれか一つでも計画遂行の遅延を生じると、結果、全体の計画の遅延となってしまうことに対して認識が甘かったと言える。また J-PARC のいろいろなトラブルは外的要因として一括りにはできないほど大きな影響を直接的、間接的に研究計画に与えていたと考えている。研究遂行上の問題は時間をかけてひとつひとつ解決していくしかないわけであるが、研究計画年度内に達成できるように目標を下方修正することは目標を見失っていることに等しい。直面す

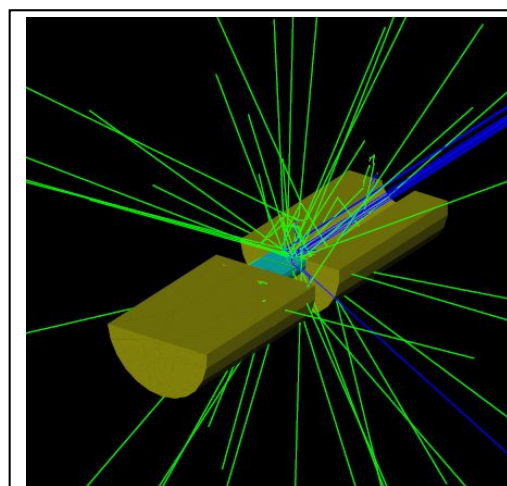


図4: Geant4 によるビームコリメーターおよび圧力セルのシミュレーション結

る壁も、その先の研究計画の実現のためだからこそ何とかしなければならぬと乗り越える気力を奮い起こすのである。本研究課題はこれで終了となるが、いつか必ず研究目的に掲げた実験を実現したいと考えている。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計 0 件)

〔学会発表〕(計 0 件)

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

取得状況(計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

幸田 章宏 (KODA, Akihiro)

高エネルギー加速器研究機構・

物質構造科学研究所・研究機関講師

研究者番号：10415044

(2) 研究分担者

竹下 直 (TAKESHITA, Nao)

産業技術総合研究所・電子光技術研究部門・研究員

研究者番号：60292760

参考文献

1. たとえば N.F. モット著「金属と非金属の物理」(丸善)
2. 田村剛三郎、Spring-8 利用者情報 Vol.9 No.3, 203-213.
3. Y. Akahama *et al.*, Phys. Rev. Lett. **74** (1995) 4690.
4. S.T. Weir *et al.*, Phys. Rev. Lett. **76** (1996) 1860.
5. 総説として、F.Hensel and W.W. Warren Jr., Fluid Metals (Princeton University, 1999).
6. W. Freyland, Phys. Rev. **B20** (1979) 5104; J. de Phys. **C8** (1980) 74.
7. U. El-Hanany and W.W. Warren Jr., Phys. Rev. Lett. **34** (1975) 1276; W.W. Warren Jr. and F. Hensel, Phys. Rev. **B26** (1982) 5980; W.W. Warren Jr. *et al.*, Phys. Rev. **B39** (1989) 4038.