

平成 21 年 4 月 30 日現在

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2007 ～ 2008

課題番号：19740187

研究課題名（和文） フォノン誘起状態におけるミュオンスピン緩和測定系の開発

研究課題名（英文） Development of muon-spin-relaxation measurement system under low-energy phonon-induced states.

研究代表者：鈴木 栄男 (Suzuki Takao)

独立行政法人理化学研究所・岩崎先端中間子研究室・協力研究員

研究者番号：40327862

研究成果の概要：

加速器から出されるチェレンコフ・トリガに同期させる形で高周波ロングパルスを出力する高周波系を構築し、さらに、大型の試料($\Phi 6 \times 20$ mm)を固定して超音波を励起し、試料部分にのみミュオンビームを当てるための高周波実験に対応した特殊なプローブを完成させた。次のステップとして、試料をプローブにセットした状態でヘリウム冷凍機で冷却試験を行い、ヘリウム温度での超音波印加を確認し、実際の測定を試験的に行った。崩壊ミュオンを効率的に試料内部に入れて S/N 比の高い測定が可能であることを実証した。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
平成19年度	1,700,000	0	1,700,000
平成20年度	900,000	270,000	1,170,000
年度			
年度			
年度			
総計	2,600,000	270,000	2,870,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物性 I

キーワード：X線・粒子線、ミュオンスピン緩和

1. 研究開始当初の背景

ミュオンスピン緩和に最も敏感な磁気揺らぎの周波数帯 (タイムウィンドウ) は $10^{11} \sim 10^6$ Hz と NMR と中性子散乱のちょうど中間に相当しており、磁気秩序化直前のスピン状態に非常に敏感であることが特徴である。さて、超音波には波の進行方向と偏波方向の組み合わせで何種類もの独立したモードが存在する。一般に、相転移のオーダーパラメーターと歪が結合していれば、弾性定数は自由

エネルギーの歪による二次の微分で与えられるので、転移点において特定のモードでの弾性定数の飛び、もしくは折れ点期待される。転移点近傍におけるフォノンのソフトモードを特定できることが超音波実験の利点である。逆に、超音波をたてることによって低エネルギーフォノンを励起することが可能である。したがって超音波をたてながら μ SR 実験を行えば、超音波によってつくられた低エネルギー励起フォノンがスピン-軌道相互作用を通して磁気励起に変化を生じ、こ

の変化がミュオンスピン緩和の変化としてプローブ可能であると期待される。このような多重条件下（ハイブリッド型）の測定方法はこれまで一切行われていない。本実験の最大の利点は、超音波はモードセレクトティブであるのでどのようなスピン励起が磁性に対して支配的であるかの情報をマイクロかつダイナミカルな視点で得ることができる点である。これまでは、結晶系とスピン系との直接的な係わりは、圧力下における磁化測定や中性子回折などのマクロな測定や、NMRやESRなどのスタティックに近い測定手段でしかアプローチができなかった。ハイブリッド型の測定方法が確立できれば、新たな物性測定手段として広く応用が可能であると期待される。

2. 研究の目的

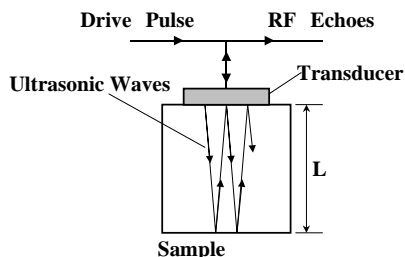
本研究の目的は、超音波によって固体中に低エネルギーフォノンを誘起した状態でミュオンスピン緩和(μ SR)実験を行うための測定系を開発し、超音波 μ SRの手法と有効性を確立することである。

3. 研究の方法

まず基本的な測定系の立ち上げを行う。具体的には、

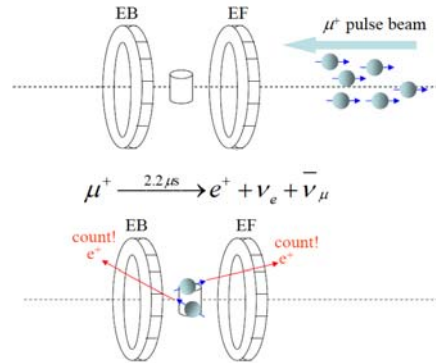
- (1) 超音波出力用高周波回路
- (2) 1.5 Kまで冷却可能な冷凍機に挿入するプローブの製作
- (3) モーメントチューニング
- (4) 実際にミュオンビームを用いた超音波 μ SR実験の実施

である。はじめに超音波測定の原理図を示す。高周波パルスを試料に貼り付けた振動子に与えると振動子の振動が試料に伝わり試料内に超音波が入射される。長波長極限のフォノンブランチがあるので低エネルギーフォノン励起



と解釈できる。次に、ミュオンスピン緩和測定の測定原理についても簡単に触れておく。通常の μ SR実験

では、スピン偏極したミュオンが物質中にとまり、内部磁場の時間的、及び空間的な不均一によってスピン偏極が崩れていく様子を時系列で観測することで物質内部の磁気的な挙動を探ることができる。物質中のミュオンサイトにおける内部磁場を直接観測していることになるので、微視的な観測手段として有用である。



さて、回路とプローブが完成した後は実際の測定へのステップへ移るが、実験条件の確定をしなければならない。一般に振動子を試料に接着して弾性波を立てる場合には、試料表面では波が散乱されてしまい定常波はバルク試料の内部でのみ存在する。一方、通常のミュオン実験で使用される表面ミュオンは運動量が小さいために試料へは数十マイクロから数百マイクロメートル程度しか侵入しない。したがって本実験においてはS/N比を多少犠牲にしても運動量の大きいディケイミュオンを使わなければならない。測定の最適条件を得るために、モーメントチューニングを行う必要がある。

今回は物理的興味としては、La酸化物高温超伝導体の擬ギャップ形成時の格子とスピンのダイナミクスに着目した。超伝導ギャップが開く温度よりも十分に高い温度で超伝導の対称性と類似した形のスピン励起のエネルギーギャップが観測されることから、この現象も高温超伝導のメカニズムに迫る有力な問題として脚光を浴びている。



しかしながら、物質の性質を大きく左右する

結晶格子とギャップ構造の関係についての実験的アプローチは現在のところほとんど行われていない。そこで本研究は、この擬ギャップ形成における格子歪の関わりに着目する。先述したとおり、各モードの測定を行うことで結晶のどのような歪がオーダーパラメーターと結合しているかが分かり、着目する相転移のメカニズムに対する格子の寄与を明確にできる。

具体的な結晶系は大型の単結晶試料が育成可能な $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ を用いる。この系ではスピン系、電子系共に格子系との結合が強いと考えられ、擬ギャップ形成時にも格子歪を伴い超音波測定で何らかの変化が検知できると期待される。

4. 研究成果

超音波出力用高周波回路を可能な限り自作した。図1は、高周波パルス発生回路の写真である。



図1

次に、1.5 Kまで冷却可能な冷凍機に挿入するプローブの製作を行った。これに関しても制作費を抑えるために自作した。図2にプローブの上側の写真を示す。同軸ケーブルが二本と、温度計用の銅線が試料部分まで通してある。大型試料の全域まで超音波を励起するには試料の両側から超音波を入れてやる必要があるために同軸を二本準備した。実際に、銅酸化物高温超伝導体の単結晶試料を試料ホルダーにマウントしたときの様子を図3に示す。試料



図2

両端にはあらかじめ振動子（薄板のピエゾ素子）を接着している。ミュオンビームのチェレンコフトリガに同期させてパルスを印加して実験を行った。径が20 mmのミュオンビームを用いるために、先に示した試料ホルダーそのままだと試料以外の部分（銅ブロックや試料を支えている真鍮、テフロン樹脂等）

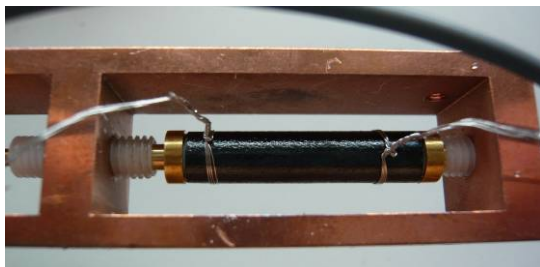


図3：試料ホルダーと単結晶試料

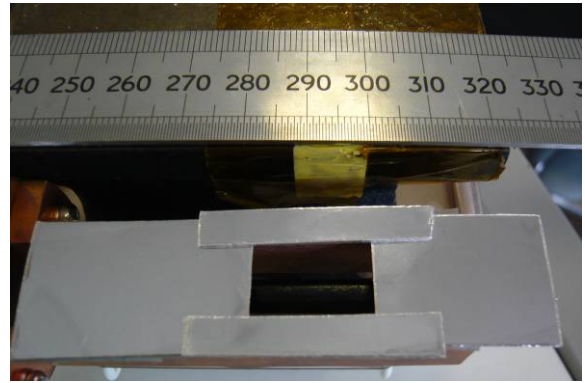


図4：試料ホルダーに遮蔽用銀板をとりつけた状態。開いたところに試料がある。

にもミュオンが止まってしまう。これを回避するために、左下図のように高純度の銀板（ $t=0.5\text{mm}$ ）で試料以外の部分を覆って、ミュオンスピン緩和が極めて小さい銀にミュオンが止まるようにした（図4）。

実際にミュオンビームを当てて試料からのシグナルを検出した結果、運動量が50 MeVの崩壊ミュオンを用いると、試料内部にミュオンが止まっていることが確認された。

最後に、 c_{11} モードの縦波を励起した状態でのゼロ磁場ミュオンスピン緩和実験を30Kで行った。下図に超音波を励起した場合（赤）としなかった場合（青）のタイムスペクトルを

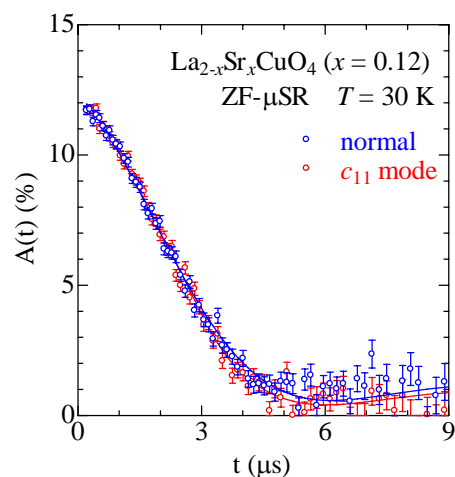


図5： $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_4$ ($x = 0.12$)単結晶試料における30Kでのゼロ磁場下ミュオンスピン緩和タイムスペクトル。

示す。

図をみて明らかのように、超音波を印加した場合にスペクトルが下側にきている、すなわち緩和が速くなっている。この結果から、超音波による低エネルギーフォノンを誘起し

た状態で、ミュオンスピン緩和のエンハンスメントが確認された。この結果から、超音波を用いたハイブリッド型ミュオンスピン緩和実験の基本的な開発にめどがついたといえる。
以下に、問題点と今後の課題を述べる。

(1) スペクトルの超音波による有意な差は、 $t > 3 \mu\text{s}$ でしか観測されていない。これは、超音波による低エネルギーフォノンが $t < 3 \mu\text{s}$ では励起されていないためであると考えられる。今回は、ミュオンビームのチェレンコフトリガに同期させて超音波パルスを加して実験を行ったが、ミュオンパルスが試料に入射される $2 \mu\text{s}$ 前である。つまり、試料全体に低エネルギーフォノンが誘起されるには、 $5 \mu\text{s}$ 以上前に超音波パルスを加する必要がある。トリガ回路を改良して、次回の実験に備えたい。

(2) 今回は縦波である c_{11} モードでの実験を行ったが、超音波の利点はモードセレクトティブなことである。横波の c_{44} モードや他の縦波モード等、ミュオンスピン緩和への影響の差を調べることで、どのようなスピン励起が磁性に対して支配的であるかの情報をマイクロかつダイナミカルな視点で得るという最終的な目的を達成する必要が残されている。

(3) 大型の単結晶試料を全ての測定に対して準備することはできないので、できるだけ小さな結晶でも実験ができるように改良していくことが重要であると考えられる。

【まとめ】

超音波によって固体中に低エネルギーフォノンを誘起した状態でミュオンスピン緩和 (μSR) 実験を行うための測定系を構築した。銅酸化物高温超伝導体 $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_4$ ($x = 0.12$) 単結晶試料において、縦波である c_{11} モードの超音波を加した状態でのミュオンスピン緩和を測定し、超音波印加時に緩和が速くなることを観測した。このことから、超音波による低エネルギーフォノンを誘起した状態での測定、すなわち、超音波 μSR の手法の開発にめどがついたといえる。

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 5 件)

① F. Yamada, Y. Ishii, T. Suzuki, T. Matsuzaki, and H. Tanaka

Pressure-induced reentrant oblique antiferromagnetic phase in the spin-dimer system TlCuCl_3

Phys. Rev. B **78**, 224405-(1-5) (2008).

査読有

② T. Suzuki, F. Yamada, I. Watanabe, T. Goto, A. Oosawa, and H. Tanaka

Bond-randomness effect on the quantum spin system $\text{Tl}_{1-x}\text{K}_x\text{CuCl}_3$ probed by muon-spin-relaxation method

Physica B **404**, 590-593 (2009).

査読有

③ T. Goto, T. Suzuki, I. Watanabe, K. Kanada, T. Saito, A. Oosawa, and H. Manaka

μSR detected soft mode toward a possible phase transition in a disordered spin-gap system, $(\text{CH}_3)_2\text{CHNH}_3\text{-Cu}(\text{Cl}_x\text{Br}_{1-x})_3$

Physica B **404**, 594-596 (2009).

査読有

④ T. Suzuki, F. Yamada, T. Kawamata, I. Watanabe, T. Goto, and H. Tanaka

Quantum critical behavior in highly random systems $\text{Tl}_{1-x}\text{K}_x\text{CuCl}_3$ probed by zero- and longitudinal-field muon-spin-relaxation measurements

Phys. Rev. B **79**, 104409-(1-5) (2009).

査読有

⑤ Muon spin relaxation detection of the soft mode toward the exotic magnetic ground state in the bond-disordered quantum spin system $\text{IPA-Cu}(\text{Cl}_{0.35}\text{Br}_{0.65})_3$

T. Goto, T. Suzuki, K. Kanada, T. Saito, A. Oosawa, I. Watanabe, and H. Manaka

Phys. Rev. B **78**, 054422-(1-6) (2008).

査読有

[学会発表] (計 4 件)

① T. Suzuki, F. Yamada, I. Watanabe, T. Goto, A. Oosawa, and H. Tanaka

Bond-randomness effect on the quantum spin system $\text{Tl}_{1-x}\text{K}_x\text{CuCl}_3$ probed by muon-spin-relaxation method

International Conference on Muon Spin Rotation, Relaxation and Resonance (muSR2008), July 21 – 25, 2008.

Tsukuba, Japan.

②鈴木 栄男、山田文子、渡邊功雄、大沢明、
後藤 貴行、田中秀数
Tl(Cu_{1-x}Mg_x)Cl₃ ($x = 0.0047$)における μ SR法で
見たスピン揺らぎ
日本物理学会第 63 回年次大会
2008 年 3 月 22 日- 3 月 26 日、近畿大学

③鈴木 栄男、渡邊功雄、後藤 貴行、
山田文子、田中秀数
量子スピン系Tl_{1-x}K_xCuCl₃ ($x = 0.20, 0.44, 0.58$)
におけるミュオンスピン緩和(μ SR)測定
日本物理学会 2008 年秋季大会
2008 年 9 月 20 日- 9 月 23 日、岩手大学

④鈴木栄男、川股隆行、渡邊功雄、後藤貴行、
山田文子、田中秀数
量子スピン系Tl_{1-x}K_xCuCl₃ ($x = 0.51, 0.60$) に
おけるミュオンスピン緩和(μ SR)とソフト
モード
日本物理学会第 64 回年次大会
2008 年 3 月 27 日- 3 月 30 日、立教大学

6. 研究組織

(1) 研究代表者：

鈴木 栄男 (Suzuki Takao)

独立行政法人理化学研究所・岩崎先端中間
子研究室・協力研究員

研究者番号：40327862