

散逸系の量子階層方程式を用いた μ SRのスペクトルのシミュレーションと解析

M 2 高橋秀顕

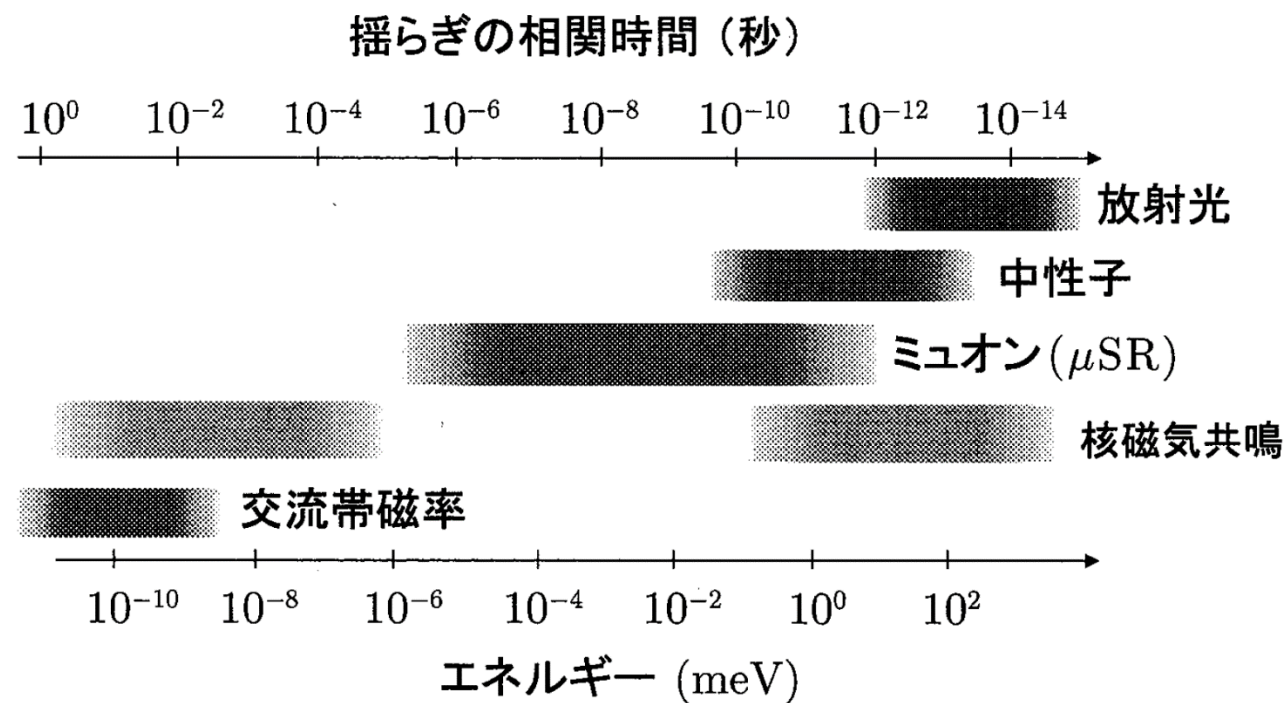
μSRとは何か

- μSR = Muon Spin Rotation / Relaxation / Resonance
- ミュオンという素粒子のスピンを高感度なプローブとして用いることで、物質の局所内部磁場の大きさや揺らぎを観測する実験法

	電子(e)	ミュオン(μ)	陽子(p)
質量(MeV/c ²)	0.511	105.66	938.27
電荷(e)	±1	±1	+1
スピン	1/2	1/2	1/2
磁気モーメント(10 ⁻²⁶ J/T)	927.401	4.49048	1.41057
磁気回転比(MHz/T)	28024.2	135.5342	42.5774
寿命(μs)	∞	2.1971	∞

他の実験法との比較

- 他の実験法で見ることのできない時間スケールの現象をみることができる
- 中性子回折に比べて
長距離秩序の有無に関わらず磁性を評価でき、相分離がある系など空間的に不均一な場合にも適用できる。
- NMRに比べて
 μ SRはスピン1/2のNMRに対応
 - 1) 磁気双極子相互作用のみで解釈の任意性が少ない
 - 2) 核スピンの有無に依らない
 - 3) NMRよりも高感度
 - 4) 常にゼロ磁場測定可能

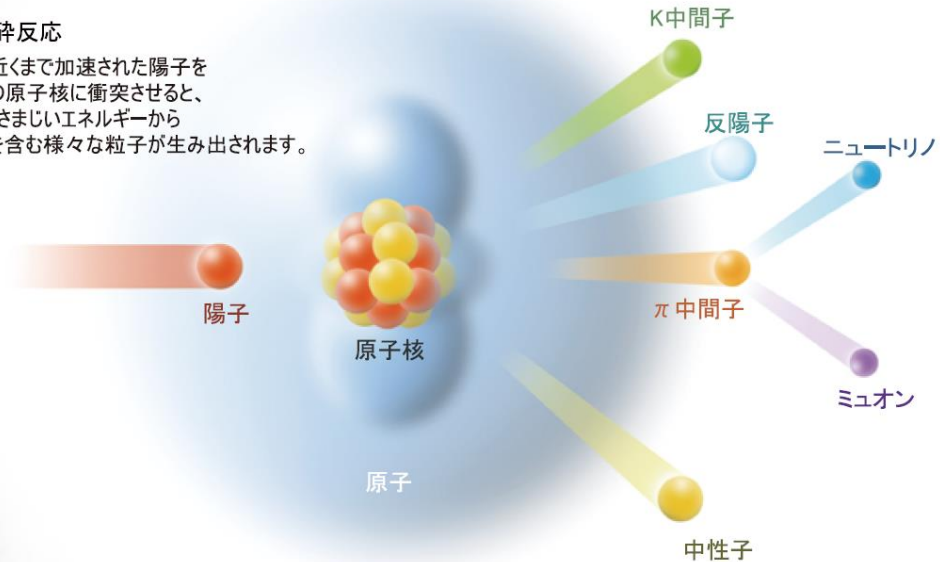


ターゲットとなる物質(標的)の原子核に
光速に近い速さに加速した陽子を衝突させることで核破砕反応が発生し
中性子やミュオンなどの粒子を造り出す

中性子・ミュオンを造り出す

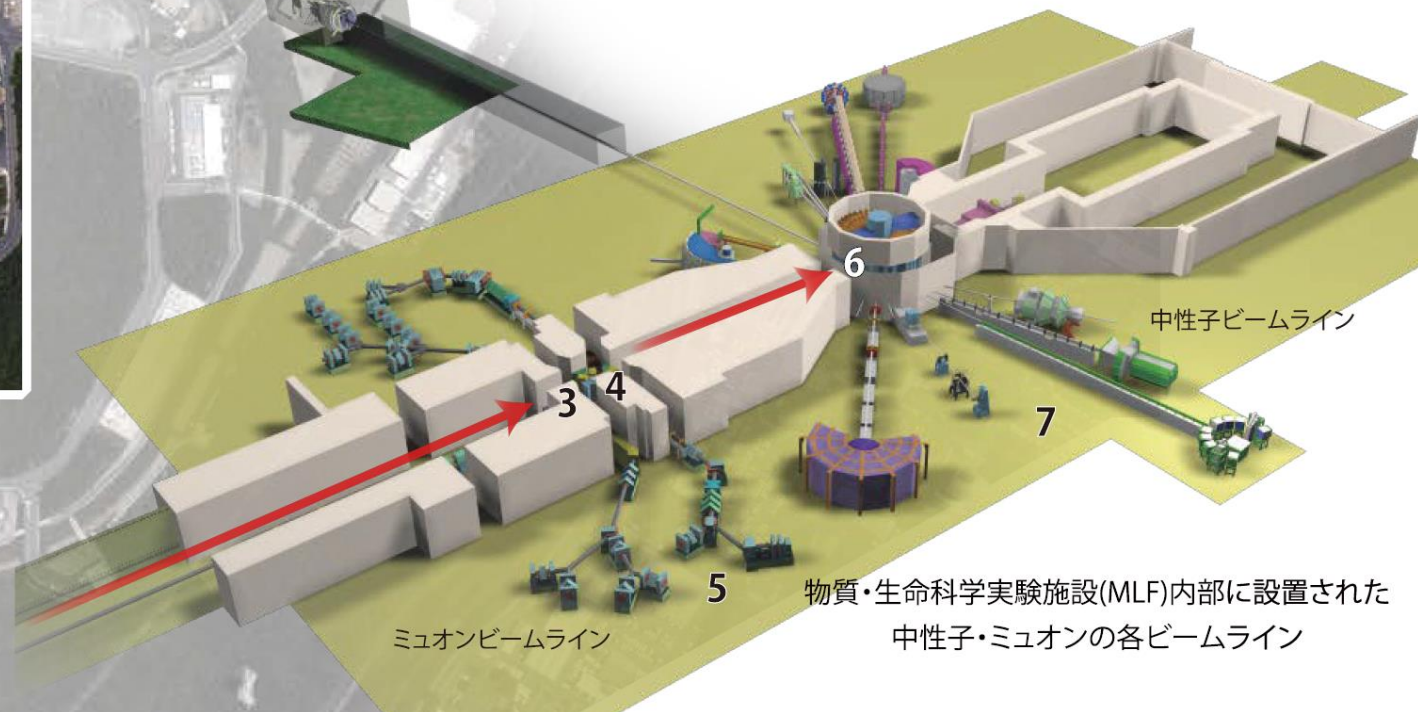
核破砕反応

光速近くまで加速された陽子を
標的の原子核に衝突させると、
そのすさまじいエネルギーから
核子を含む様々な粒子が生み出されます。



線形加速器

μSRの実験施設



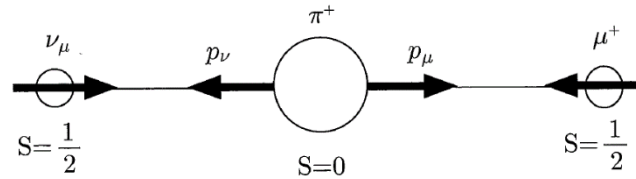
ミュオンビームライン

物質・生命科学実験施設(MLF)内部に設置された
中性子・ミュオンの各ビームライン

μSR実験の概要

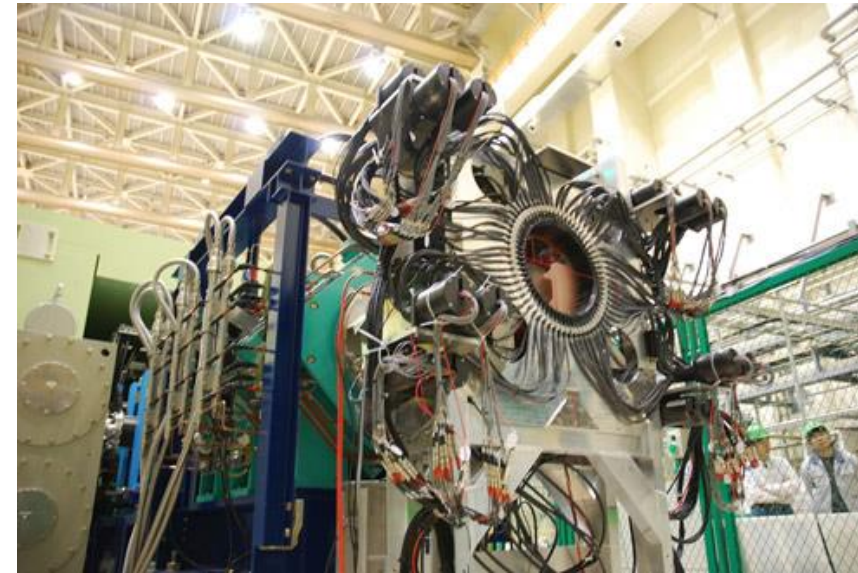
1. ミュオンビームの生成・試料への照射

$$\pi^+ \rightarrow \mu^+ + \nu_\mu$$



門野良典・足立伸一・小野寛太・稲田康宏・伊藤晋一・鬼柳喜明・大友季哉・鬼頭俊夫
(2013) 『量子ビーム物質科学』 共立出版

運動量方向と逆向きに100%偏極する



高エネルギー加速器研究機構ホームページ「D1・D2：低速～高速汎用ミュオンビームライン」より引用

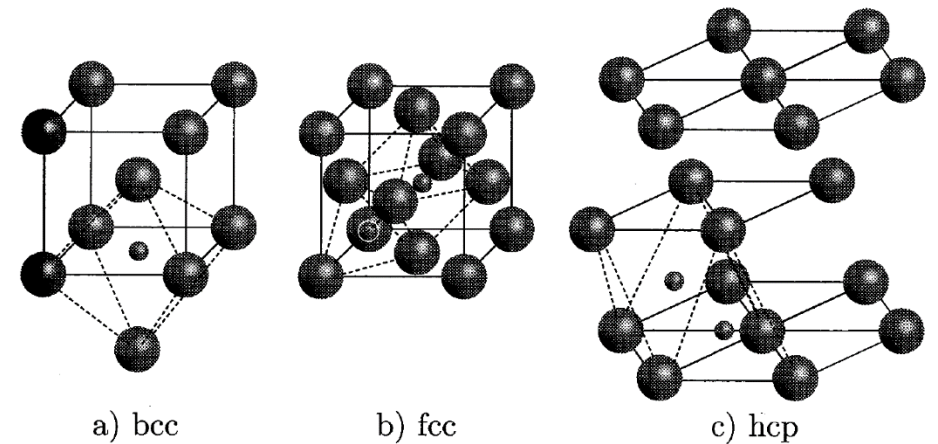
<https://www.kek.jp/ja/Facility/IMSS/MLF/MUSE/D1AndD2/>

2. 試料中に停止

3. 周辺の電子スピン・核スピンと相互作用

4. ミュオンのβ崩壊

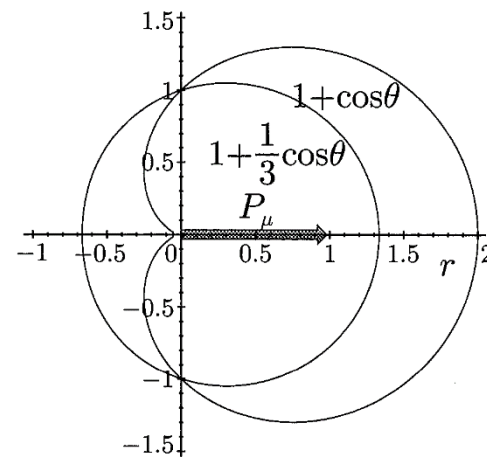
$$\mu^+ \rightarrow e^+ + \nu_e + \bar{\nu}_\mu$$



門野良典 (2016) 『ミュオンスピン回転法 謎の粒子ミュオンが拓く物質科学』 共立出版

μSR実験の概要

5. 陽電子(e⁺)の計測



$$\frac{dN}{d \cos \theta} \simeq 1 + \frac{1}{3} P_{\mu} \cos \theta$$

門野良典 (2016) 『ミュオンスピン回転法 謎の粒子ミュオンが拓く物質科学』共立出版

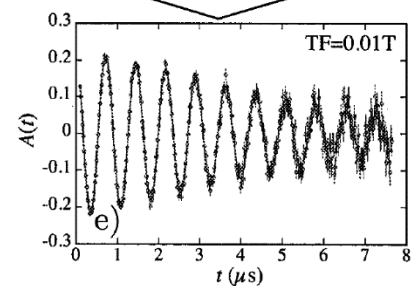
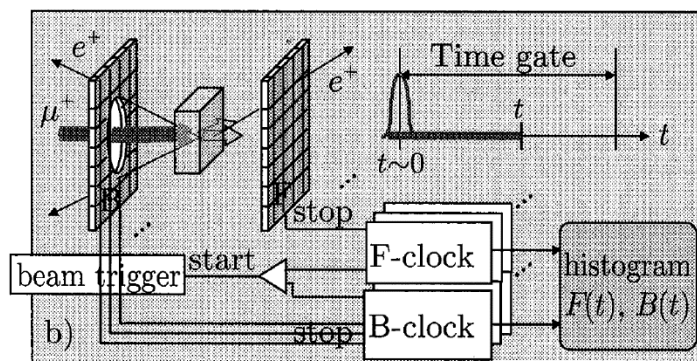
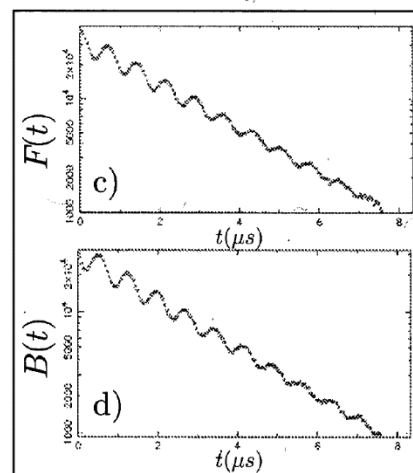
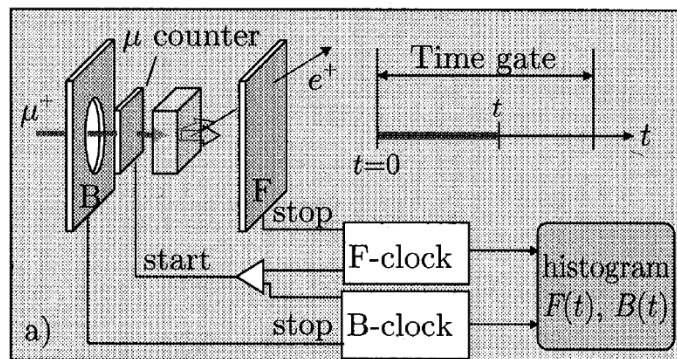
前方検出器(F)では、後方検出器(B)よりも多くの陽電子が検出される。この非対称度を観測することで、偏極度の時間変化を知ることができる。



μSRの時間スペクトル (非対称度)

$$A(t) \equiv A_0 \cdot P_{\mu}(t) = \frac{F(t) - \alpha B(t)}{F(t) + \alpha B(t)}$$

$P_{\mu}(t)$: ミュオンのスピン偏極度



門野良典 (2016) 『ミュオンスピン回転法 謎の粒子ミュオンが拓く物質科学』共立出版

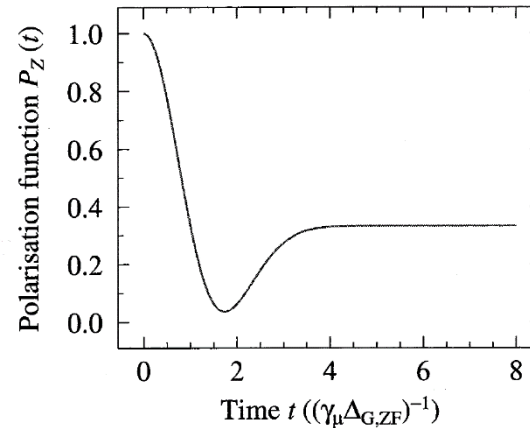
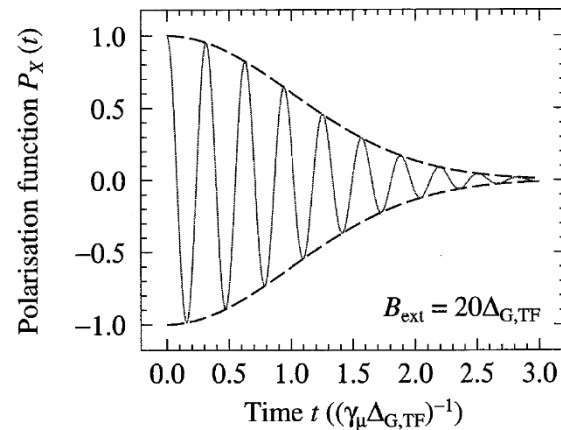
緩和関数の定義

- 縦緩和関数
ゼロ磁場あるいはz方向に磁場を印加した場合

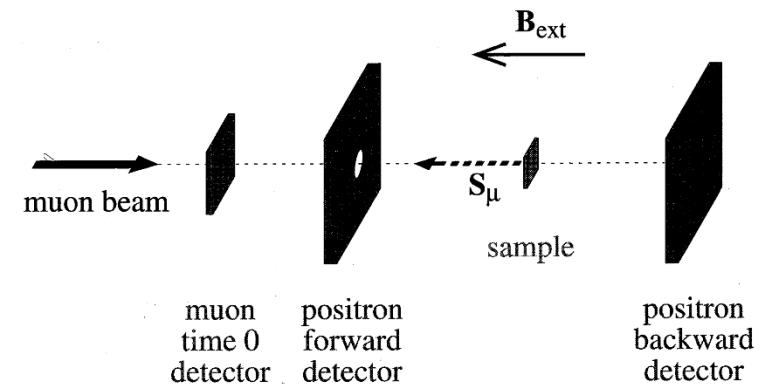
$$P_{\mu}(t) = G_z(t)$$

- 横緩和関数
x方向に磁場を印加した場合

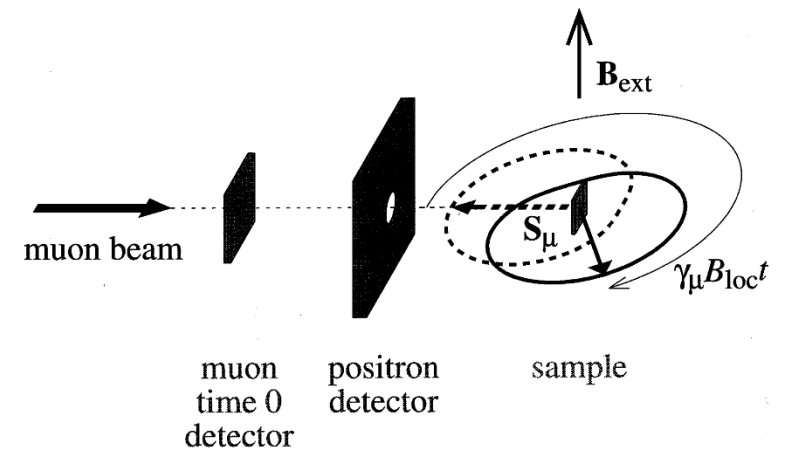
$$P_{\mu}(t) = G_x(t) \cos \omega_{\mu} t$$



Longitudinal- or zero-field geometry



Transverse-field geometry



縦緩和関数の統計的アプローチ（静的な磁場分布）

多数のミュオンを物質中に注入したとき、緩和関数は物質中の静的な磁場分布 $\mathbf{B}(\mathbf{r})$ に依存するため、 $\mathbf{B}(\mathbf{r})$ の密度分布

$$n_{\alpha}(B) = \langle \delta(B - B_{\alpha}(\mathbf{r})) \rangle_{\mathbf{r}}, \quad (\alpha = x, y, z)$$

を用いてスピン偏極の時間発展は

$$G_z(t) = \langle \sigma_z(t) \rangle = \int \int \int_{-\infty}^{\infty} \sigma_z(t) \Pi_{\alpha} n_{\alpha}(B_{\alpha}) dB_{\alpha}$$

と表すことができる。

磁性と縦緩和関数

- 非磁性体の場合（非磁性金属、非磁性絶縁体など）
電子スピンの揺らぎが速く観測にかからない為、核スピンとのdipolar interactionのみを考える

a) $n(B_\alpha)$ がガウス分布に従う場合

$$n(B_\alpha) = \frac{\gamma_\mu}{\sqrt{2\pi}\Delta} \exp\left(-\frac{\gamma_\mu^2 B_\alpha^2}{2\Delta^2}\right) \quad (\alpha = x, y, z) \quad \Delta^2 = \gamma_\mu^2 \langle B^2 \rangle$$

$$G_z(t) = \frac{1}{3} + \frac{2}{3} (1 - \Delta^2 t^2) \exp\left(-\frac{1}{2} \Delta^2 t^2\right) : \text{Kubo-Toyabe function}$$

b) $n(B_\alpha)$ がローレンツ分布に従う場合

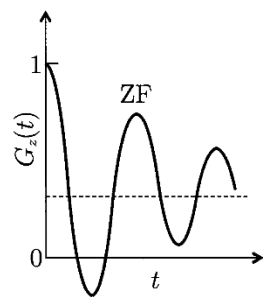
$$n(B_\alpha) = \frac{\gamma_\mu}{\pi} \frac{a}{(a^2 + \gamma_\mu^2 B_\alpha^2)^2} \quad (\alpha = x, y, z)$$

$$G_z(t) = \frac{1}{3} + \frac{2}{3} (1 - at) \exp(-at)$$

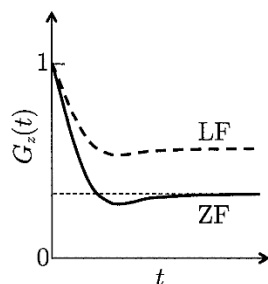
磁性と縦緩和関数

- 磁性体の場合（強磁性体など）
磁性状態によって緩和関数の振る舞いに変化する

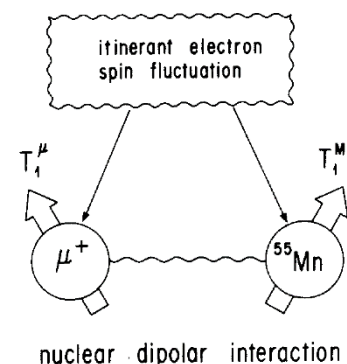
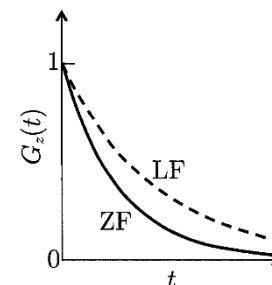
a) 磁気秩序のある場合（強磁性状態など）



b) 磁気秩序の乱れた場合



c) 電子スピンの揺らいでいる場合（常磁性状態）



$$G_z(t) \simeq G_n(t) \cdot G_m(t)$$

$G_n(t)$: 核磁気モーメントによる緩和

$G_m(t)$: 電子スピンによる緩和

縦緩和関数の量子力学的アプローチ

核スピンを明示的に取り扱う (Celio function など)

ハミルトニアン

$$\hat{H} = \hat{H}_Z + \sum_{j=1}^N \left(\hat{H}_j^D + \hat{H}_j^Q \right)$$

$$\hat{H}_Z = -\hbar\gamma_\mu \mathbf{S} \cdot \mathbf{B} - \sum_{j=1}^N \hbar\gamma_I \mathbf{I} \cdot \mathbf{B}$$

$$\hat{H}_j^D = \frac{\hbar^2 \gamma_\mu \gamma_j}{r_j^3} [\mathbf{S} \cdot \mathbf{I}_j - 3(\mathbf{S} \cdot \mathbf{n}_j)(\mathbf{I}_j \cdot \mathbf{n}_j)]$$

$$\hat{H}_j^Q = \hbar\omega_Q \left[(\mathbf{I}_j \cdot \mathbf{n}_j)(\mathbf{I}_j \cdot \mathbf{n}_j) - \frac{1}{3}I(I+1) \right]$$

初期密度演算子

$$\hat{\rho}(0) = \frac{1}{2\Pi_{j=1}^N (2I_j + 1)} (\mathbf{1}_2 + \hat{\sigma}_z) \otimes \left(\bigotimes_{j=1}^N \mathbf{1}_{2I_j+1} \right)$$

緩和関数

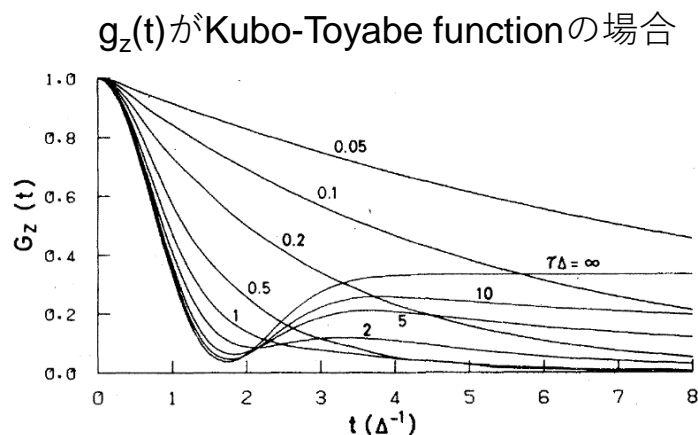
$$G_z(t) = \text{Tr} \left\{ \hat{\rho}(0) e^{i\hat{H}t/\hbar} [\hat{\sigma}_z \otimes \left(\bigotimes_{j=1}^N \mathbf{1}_{2I_j+1} \right)] e^{-i\hat{H}t/\hbar} \right\}$$

内部磁場のゆらぎの効果

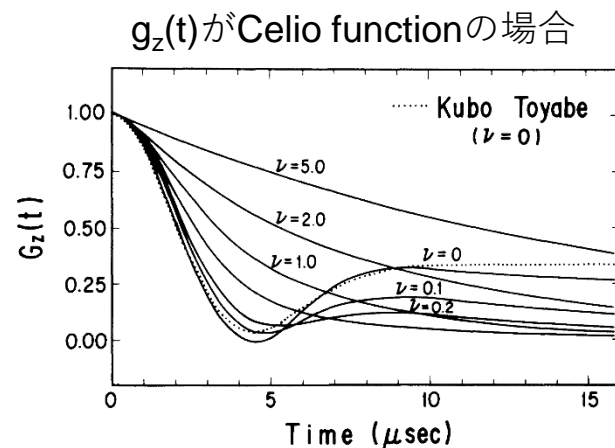
- 内部磁場が揺らぐ原因
 - 電子スピン・核磁気モーメントのゆらぎ
 - ミュオンの拡散現象
- strong collision model

毎秒平均 ν 回の確率で磁場が変化し、さらに変化の前後で内部磁場は一定でかつ相関がないという確率過程を考える

$$G_z(t) = e^{-\nu t} g_z(t) + \nu \int_0^t d\tau e^{-\nu(t-\tau)} g_z(t-\tau) G_z(\tau)$$



R. S. Hayano, Y. J. Uemura, J. Imazato, N. Nishida, T. Yamazaki, and R. Kubo Phys. Rev. B **20**, 850 (1979)



R. Kadono, J. Imazato, T. Matsuzaki, K. Nishiyama, K. Nagamine, T. Yamazaki, D. Richter, and J.-M. Welter Phys. Rev. B **39**, 23 (1989)

Model

Hamiltonian

$$\hat{H} = \hat{H}_S + \sum_{\alpha=x,y,z} (\hat{H}_I^\alpha + \hat{H}_B^\alpha)$$

$$\hat{H}_S = \frac{1}{2} \hbar \omega_\mu \hat{\sigma}_z$$

$$\hat{H}_I^\alpha = \hbar \hat{V}_\alpha \otimes \sum_j g_{\alpha j} (\hat{b}_{\alpha j}^\dagger + \hat{b}_{\alpha j}), \quad \hat{V}_\alpha = \frac{1}{2} \Delta_\alpha \hat{\sigma}_\alpha$$

$$\hat{H}_B^\alpha = \sum_j \hbar \omega_{\alpha j} \hat{b}_{\alpha j}^\dagger \hat{b}_{\alpha j}$$

Spectral Density

$$J_\alpha(\omega) = \frac{\eta_\alpha}{\omega_0} \frac{\gamma_\alpha^2 \omega}{\omega^2 + \gamma_\alpha^2}$$

HEOM

$$\hat{\rho}_{\mathbf{n}}(t) = - \left(i \hat{\mathcal{L}} + \sum_{\alpha=x,y,z} n_\alpha \gamma_\alpha \right) \hat{\rho}_{\mathbf{n}}(t)$$

$$- \sum_{\alpha=x,y,z} \hat{\Phi}_\alpha \hat{\rho}_{\mathbf{n}+\mathbf{e}_\alpha}(t)$$

$$- \sum_{\alpha=x,y,z} n_\alpha \hat{\Theta}_\alpha \hat{\rho}_{\mathbf{n}-\mathbf{e}_\alpha}(t)$$

$$\mathbf{n} = \{n_x, n_y, n_z\}$$

$$\hat{\Phi}_\alpha = i \hat{V}_\alpha$$

$$\hat{\Theta}_\alpha = i \frac{\eta_\alpha \gamma_\alpha}{\omega_0} \left(\frac{1}{\beta \hbar} \hat{V}_\alpha^\times - i \frac{\gamma_\alpha}{2} \hat{V}_\alpha^\circ \right)$$

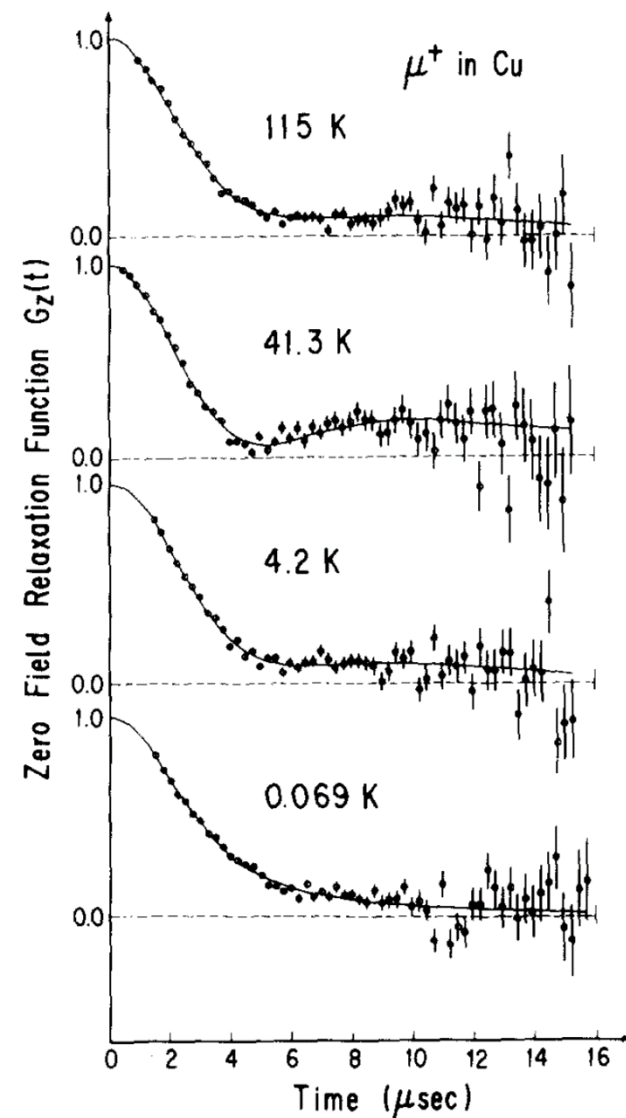
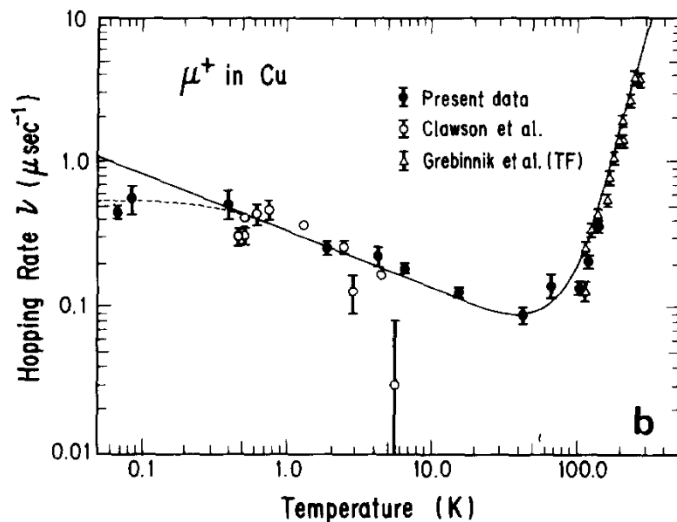
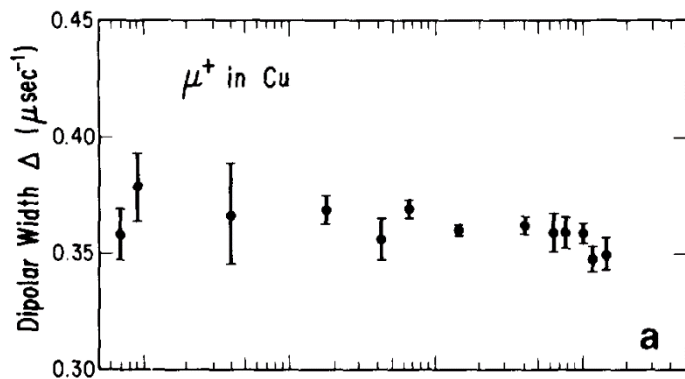


緩和関数

$$G_z(t) = \langle \hat{\sigma}_z(t) \rangle = \text{Tr} \{ \hat{\rho}(t) \cdot \hat{\sigma}_z \}$$

数値計算

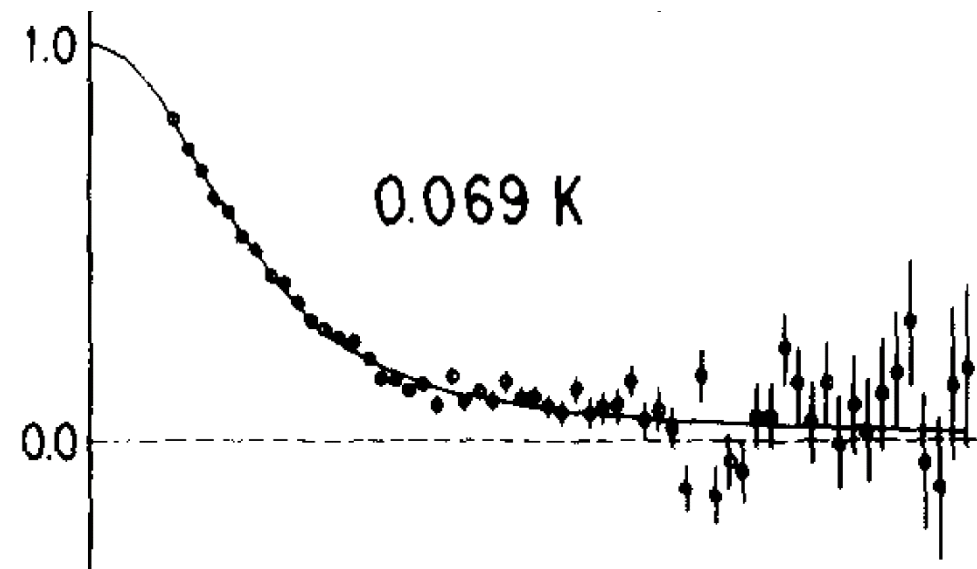
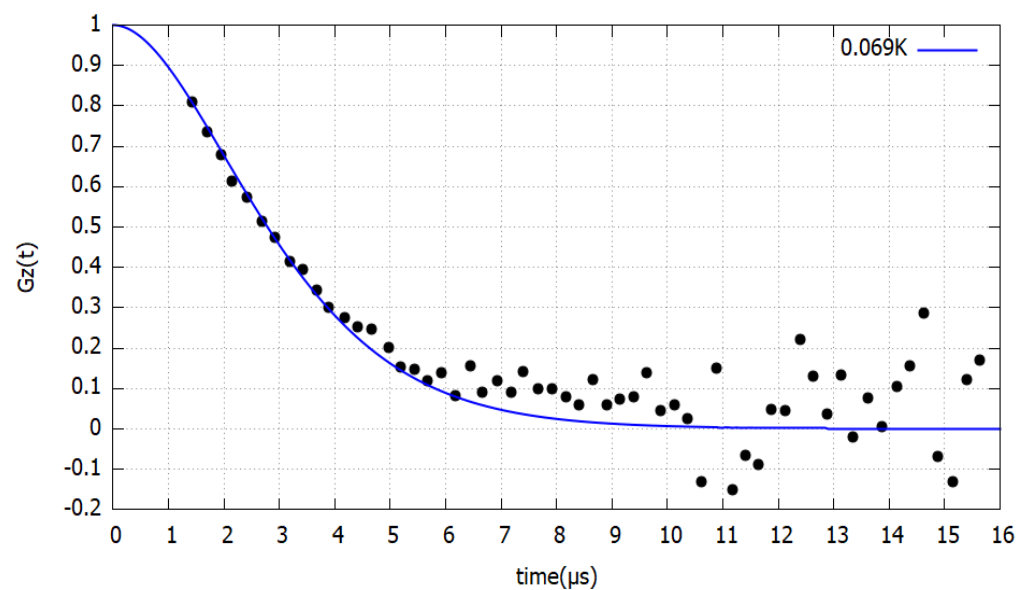
- 銅（常磁性金属）粉末試料の μ SRのデータを参照
 - ミュオンは量子拡散を起こす
 - ゼロ磁場に対して温度を変化させる(0.07K, 4.2K, 80K, 140K)
 - パラメータ(等方的な系のため全ての $\alpha = x, y, z$ に対し同じ値をとる)
 - $\omega_0 = 1.0 \mu\text{s}^{-1}$ とした
- ① $T = 0.069\text{K}$, $\Delta = 0.36 \omega_0$, $\gamma = 0.5 \omega_0$, $\eta = 2.2 \times 10^{-4} \omega_0$
 - ② $T = 4.2\text{K}$, $\Delta = 0.36 \omega_0$, $\gamma = 0.2 \omega_0$, $\eta = 7.5 \times 10^{-6} \omega_0$
 - ③ $T = 41.3\text{K}$, $\Delta = 0.36 \omega_0$, $\gamma = 0.08 \omega_0$, $\eta = 2.0 \times 10^{-6} \omega_0$
 - ④ $T = 115\text{K}$, $\Delta = 0.35 \omega_0$, $\gamma = 0.4 \omega_0$, $\eta = 1.8 \times 10^{-7} \omega_0$



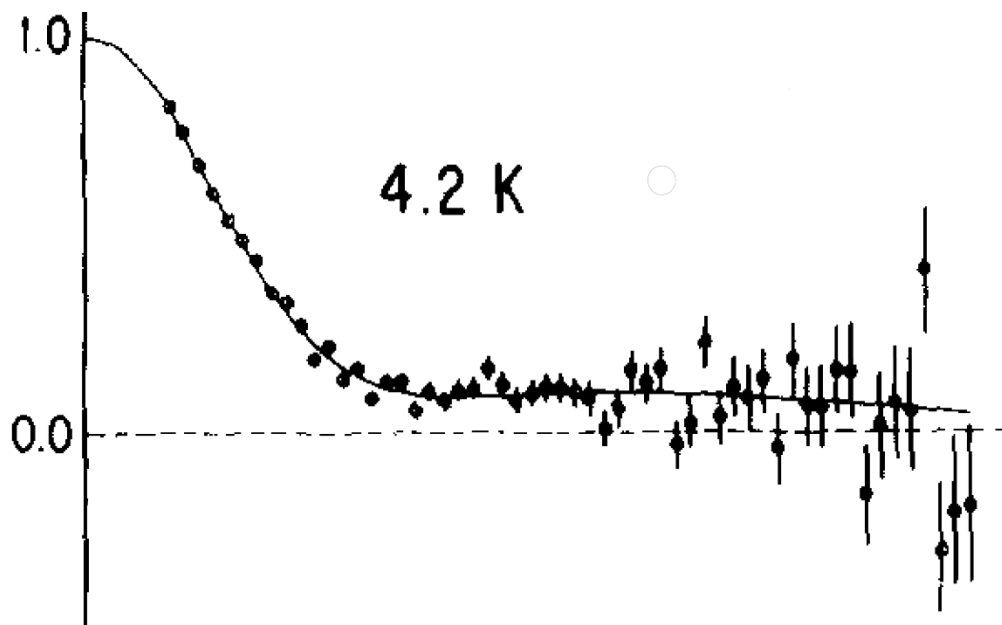
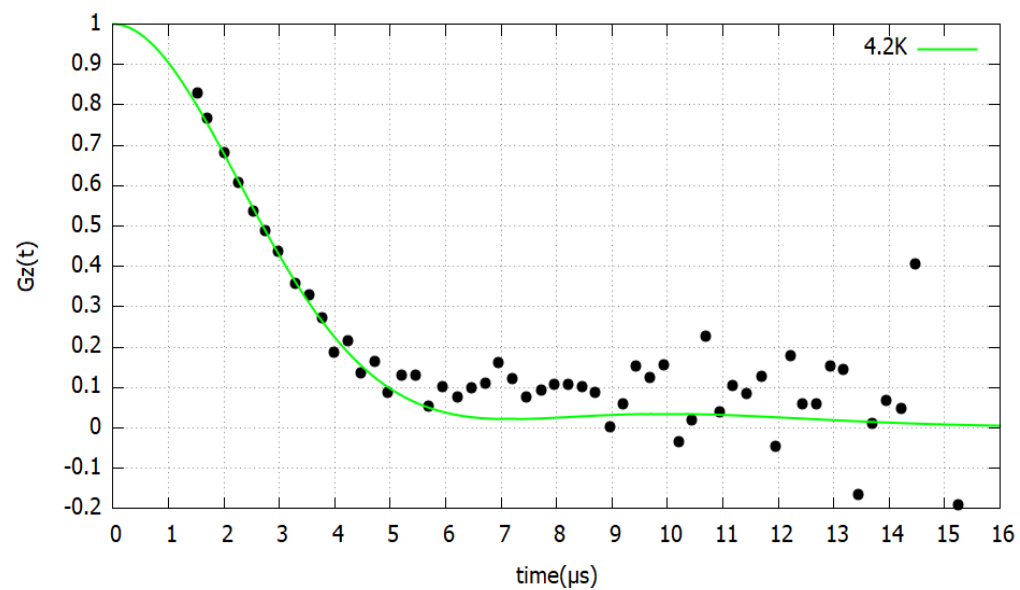
R. Kadono, J. Imazato, K. Nishiyama, K. Nagamine, T. Yamazaki, D. Richter, and J.-M. Welter, Phys. Lett. 109A, 61(1985).

結果

① $T = 0.069\text{K}$

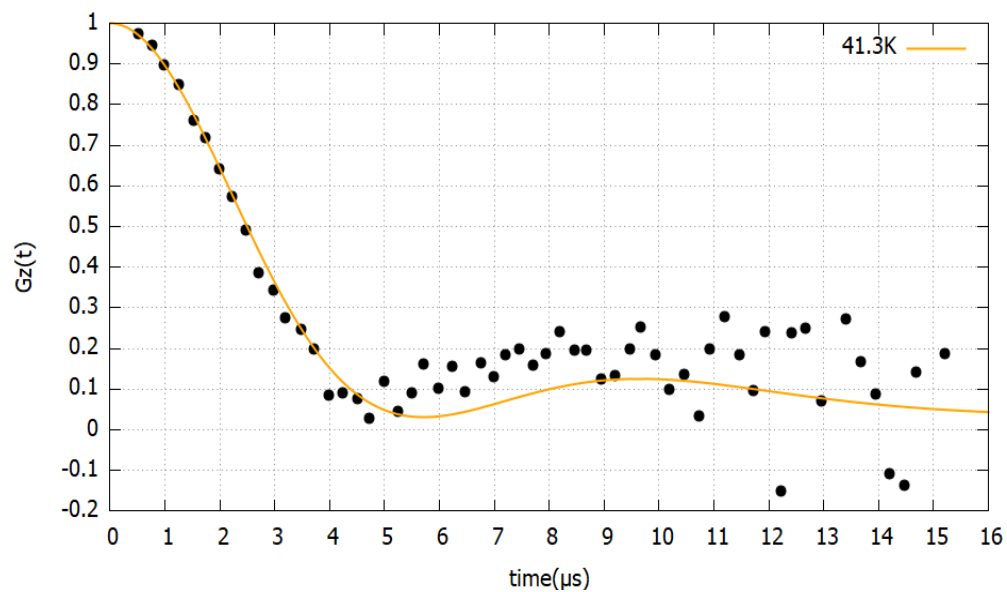


② $T = 4.2\text{K}$

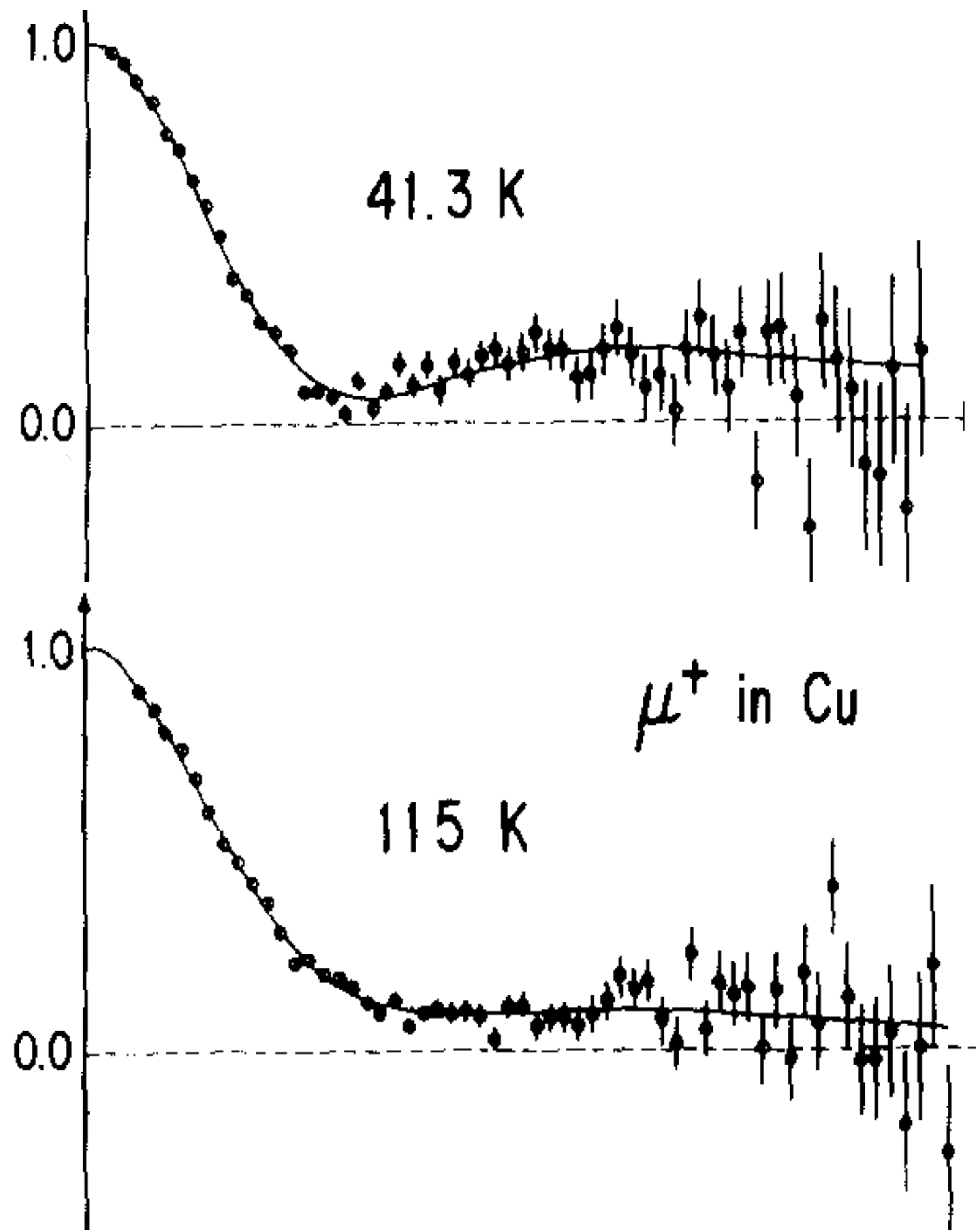
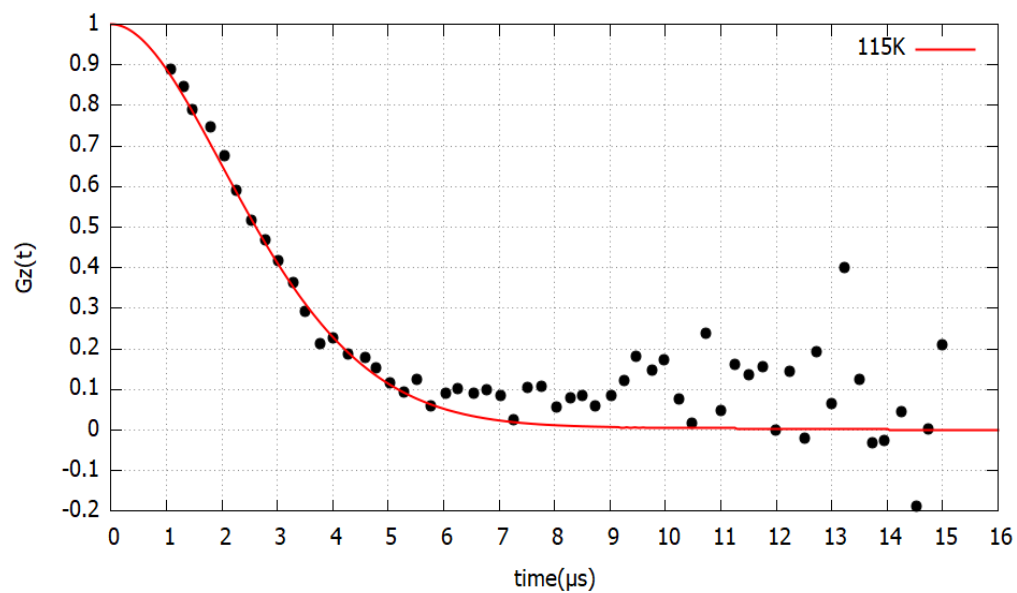


結果

③ $T = 41.3\text{K}$



④ $T = 115\text{K}$



strong collision model と Gauss-Markov過程

ゆらぎの相関の取り扱いで、異なる緩和関数の振る舞いを示す

横緩和関数の場合

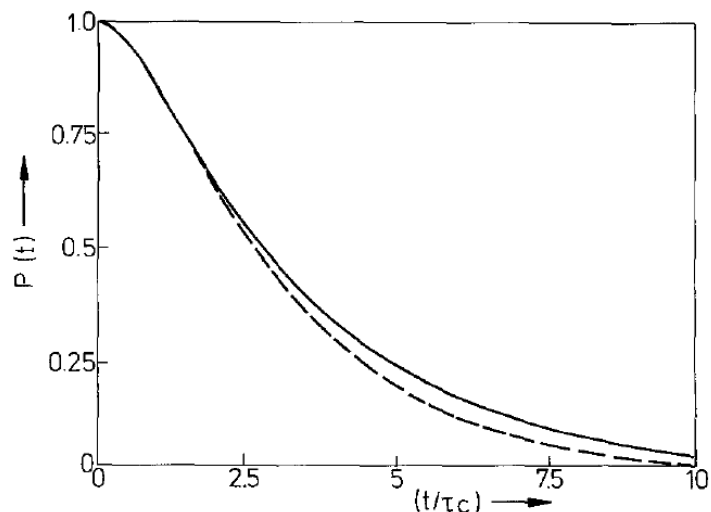
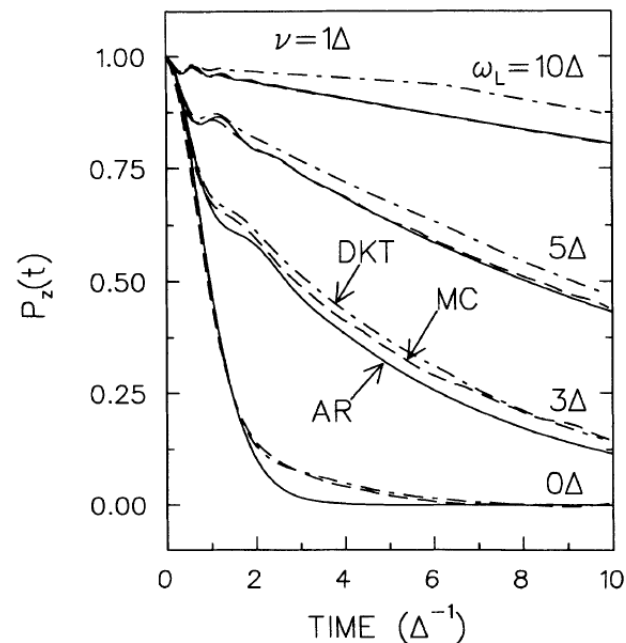


Fig. 2. Polarization decay of the Markovian random-walk model (full line) and of the Gaussian-Markovian theory (broken line) for $(\sigma\tau_c)^2=0.2$. The full line was obtained by numerical inversion of (15), the broken line from formula (3)

Kehr, K.W., Honig, G. & Richter, D. Z Physik B (1978) 32: 49.

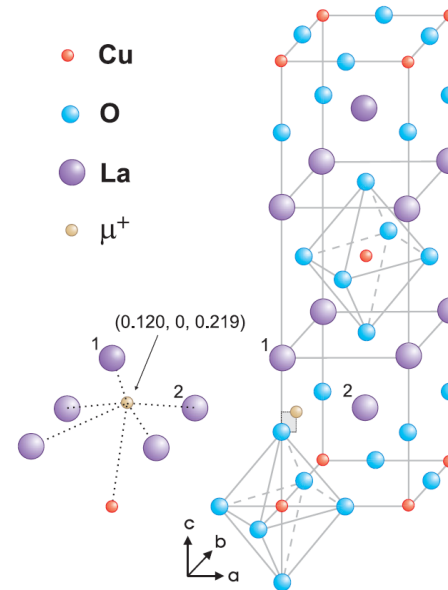
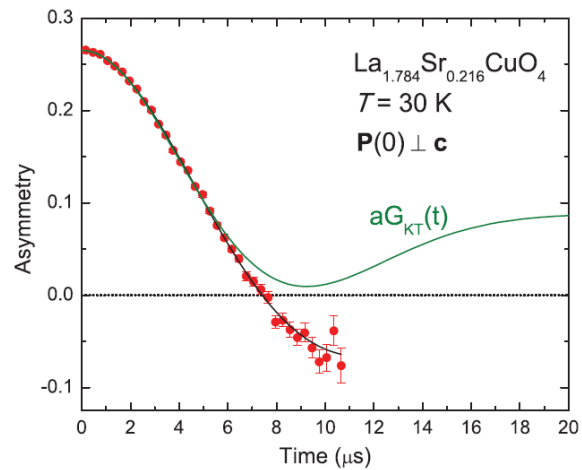
縦緩和関数の場合



Keren A, 1994, *Phys. Rev. B* **50** 10039.

Future Work

- 異方的な単結晶について



- 電子スピンの揺らぎと核磁気モーメントの揺らぎを統一的に扱う