

## 研究部会紹介

## ミュオンスピン緩和スペクトル法の応用研究部会

### Application of muon spin relaxation spectroscopy

西村 克彦\*・櫻井 健夫\*\*・松崎 禎市郎\*\*\*・松田 健二\*

Katsuhiko NISHIMURA\*, Takeo SAKURAI\*\*, Teiichiro MATSUZAKI\*\*\* and Kenji MATSUDA\*

6000系Al-Mg-Si合金は適度な強度と優れた成形性を有するために、より広範な利用が検討されている。この合金の機械的特性は、溶質元素の濃度と溶体化処理後の熱処理方法に大きく依存することは古くから指摘され、とくに室温時効の影響については各種の実験が行われてきた<sup>1),2)</sup>。溶体化処理により導入された原子空孔(v)が関与して溶質原子-vあるいはMg-Si-vクラスタが生成され、その後の時効によりG.P.ゾーン、中間相を経て、安定な析出相へ変化していくと考えられている。よって溶体化処理直後の原子空孔挙動を説明することが、この合金の特性を向上させるために大変重要であると認識されている。この部会は近年その検出精度が非常に向上したミュオンスピン緩和(以後 $\mu$ SR)法を用いて、アルミニウム合金中の原子空孔の挙動を捕えようとするもので、他のいかなる材料系の学協会に先駆けて立ち上げられた。

ミュオン(ここでは正電荷を持った正ミュオン( $\mu^+$ )を指す)は、陽子を炭素のターゲットに衝突させて発生したパイオン(ここでは $\pi^+$ )がさらに崩壊することによって発生し、半減期 $2.2\mu$ 秒を持つため、陽電子の $0.2n$ 秒に比較して長時間にわたり物質中で拡散・捕獲・再拡散の過程を経ながら、最終的に陽電子とニュートリノに崩壊する。実験で利用したミュオンは100%スピン偏極しており、入射されるビーム方向に対して逆方向を向いている。 $\mu^+$ のパルスビームが陽電

子検出器にセットされた試料に放射され、そして測定が始まる。崩壊する際に放出される陽電子を試料の前方と後方に置かれた検出器で検出するのだが、 $\mu^+$ が物質中で何も影響を受けなければスピン方向とほぼ同じ方向にほぼ100%の陽電子が検出されることになり、いわゆる異方性は観測されない。しかし、例えば試料中でトラップされるサイトや、拡散している位置などの影響を受けると角度異方性を持つことになる。よって試料中から放射される陽電子の角度異方性を観測すると、ミュオンと試料中の元素および原子空孔との相互作用に関する知見が得られるとされる<sup>3)</sup>。現在、本測定は連合王国にある理化学研究所の管理するオックスフォード郊外のラザフォード・アップルトン研究所(RIKEN-RAL)内にあるISISサイクロトロン内のビームライン(Port-4)を使用している(図1)。

この研究部会では、昨年度中頃発足し、今年度の前半までは、ミュオンスピン緩和法そのものの基本原理の理解と、一部先行して取得したデータについて、参加部会員相互の理

表1 研究部会員

	所属	氏名
大学・公立機関	富山大学	松田 健二
	理化学研究所	松崎 禎市郎
	理化学研究所	渡邊 功雄
	京都大学	友野 大
	東京工業大学	里 達雄
	茨城大学	伊藤 吾朗
	横浜国立大学	廣澤 渉一
	富山大学	西村 克彦
	富山大学	柴柳 敏哉
	富山大学	布村 紀男
企業	(株)UACJ	浅野 峰生
	(株)UACJ	蔵本 遼
	(株)神戸製鋼所	櫻井 健夫
	三協立山(株)	高木 英俊
	YKK AP(株)	谷畑 弘之
	アイシン軽金属(株)	吉田 朋夫



図1 ラザフォード・アップルトン研究所(RIKEN-RAL)の鳥瞰写真

\* 富山大学大学院理工学研究部(〒930-8555 富山県富山市五福3190)。Graduate School of Science and Engineering for Education (3190 Gofuku, Toyama-shi, Toyama 930-8555).

\*\* 株式会社神戸製鋼所(東京都)。Kobe Steel, Ltd. (Shinagawa-ku, Tokyo).

\*\*\* 理化学研究所 仁科加速器センター(和光市)。RIKEN, The Nishina Center for Accelerator-Based Science (Wako-shi, Saitama).

受付日:平成26年7月1日

解と解釈に努めている。現在部会員は16名(表1)で、参画企業は50音順にアイシン軽金属(株)、(株)神戸製鋼所、三協立山(株)、(株)UACJ、YKK AP(株)である。さらに多くの企業のご参加をお待ちしています。

図2は、焼なまししたアルミニウム(純度99.99%)と848Kで1時間の溶体化処理後に2週間室温時効したAl-

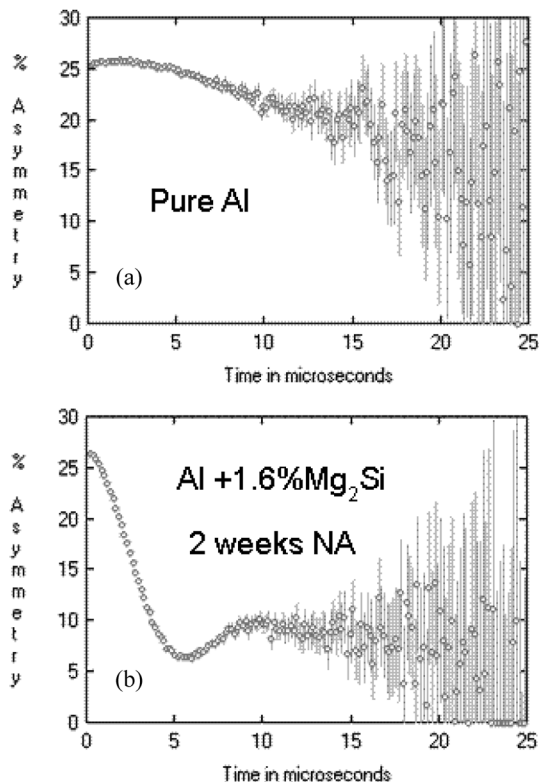


図2 (a) 焼なまししたアルミニウムと (b) 溶体化処理後に2週間室温時効したAl-1.6%Mg<sub>2</sub>Si合金で測定された40Kミュオンスピン緩和スペクトル

1.6%Mg<sub>2</sub>Si合金のミュオンスピン緩和スペクトルである。縦軸は陽電子計数の異方性、横軸はミュオンパルスを試料に打ち込んでからの経過時間である。(a)のアルミニウムでは、測定時間に対して、ミュオンスピンがほとんど緩和しておらず、ミュオンがほとんど捕獲されていない、つまり、ミュオンを捕獲する原子空孔がほとんどないと推測される。これに対して、(b)の溶体化処理後に2週間室温時効したAl-1.6%Mg<sub>2</sub>Si合金で得られたスペクトルは、経過時間の進行とともにいったん極小値を示し、再び増加するという典型的な久保-鳥谷部関数に類似した形をしており、ミュオンが特定の格子サイトに捕獲されていることを示している。なお経過時間が長くなるとデータのばらつきが大きくなるのは、

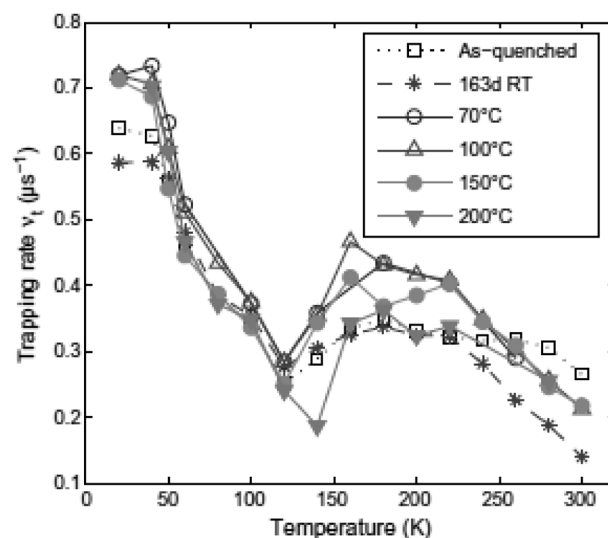


図4 溶体化処理したAl-1.6%Mg<sub>2</sub>Si合金を室温で163日間時効、および70, 100, 150, 200°Cで1000分時効した試料を温度領域20~300Kで測定した試料から得られたスピン緩和スペクトルから計算された捕獲率<sup>5)</sup>

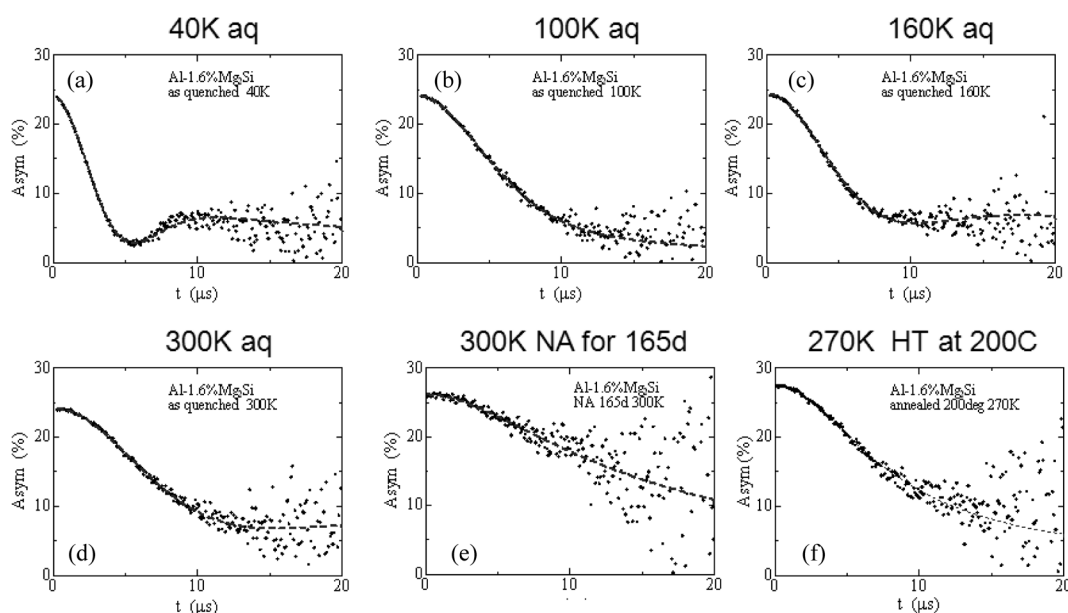


図3 溶体化処理したAl-1.6%Mg<sub>2</sub>Si合金を (a) 40K, (b) 100K, (c) 160K, (d) 300K (室温)で測定したミュオンスピン緩和スペクトルと、(e) 室温で165日時効した試料を300K (室温)で、および (f) 473Kで1000分時効した試料を270Kで測定したミュオンスピン緩和スペクトル

測定される陽電子の数が少なくなるためである。図3は溶体化処理したAl-1.6%Mg<sub>2</sub>Si合金を40, 100, 160, 300K(室温)で測定したミュオンスピン緩和スペクトルと、室温で165日時効した試料を300K(室温)で、および473Kで1000分時効した試料を270Kで測定したミュオンスピン緩和スペクトルを示す。図中の破線は久保-鳥谷部関数で近似した曲線を示している。測定温度が40Kでは、図2(b)と同様にいったん極小値を示して、再び増加するという挙動を示したのに対して、測定温度が上昇して例えば(d)に示した室温では、極小値は示さなくなった。同様の挙動は、長時間室温保持した(e)や、473Kで時効した(f)の試料の測定でも得られており、ミュオンを捕獲する原子空孔の数、あるいはミュオンがトラップされるサイトの影響を受けていると考えられる。

類似のスピン緩和スペクトルを温度領域20~300Kで測定し、緩和幅 $\Delta$ 、捕獲率 $\nu_t$ 、再拡散率 $\nu_d$ 、初期捕獲率 $P_0$ の4つをパラメータとしたモンテ・カルロ・シミュレーションで観測スペクトルの解析を行った。図4には捕獲率 $\nu_t$ の結果を示す。50Kまでの低温部で捕獲率が高いが、その後減少する。そして100Kから200Kにかけて増加して300Kに向けて減少している。その他の追加実験の結果を踏まえて、このような挙動

は次のような原因によると考えられる。(1) 50K以下の低温側の高い捕獲率は不純物として含まれるFe等の微量元素や、Mg原子でのミュオンのトラップが生じ、温度上昇に伴い減少する。(2) 200Kあたりで見られるピークはMg-Si-vacancyクラスタの生成により、ミュオンがトラップされる。(3) 200K以上の温度では、原子空孔数の減少に伴い、捕獲率が減少する。これらの研究成果は、一部学術論文で公表している<sup>4),5)</sup>。今後、他の合金系等との比較実験を実施するとともに、アルミニウム合金中で形成されるMg-Si-vacancyクラスタのような溶質原子クラスタの構造とミュオン緩和スペクトルの関係について詳細に調べる予定である。

#### 参 考 文 献

- 1) K. Matsuda, Y. Sakaguchi, Y. Miyata, Y. Uetani, T. Sato, A. Kamio and S. Ikeno: *J. Mater. Sci.*, **35** (2000), 179-189.
- 2) S. Kim, J. H. Kim, H. Tezuka, E. Kobayashi and T. Sato: *Mater. Trans.*, **54** (2013), 297-303.
- 3) 堂山昌男: *日本金属学会会報*, **25** (1986), 808.
- 4) S. Wenner, R. Holmestad, K. Matsuda, K. Nishimura, T. Matsuzaki, D. Tomono, F. L. Pratt and C. D. Marioara: *Phys. Rev. B* **86** (2012), 104201.
- 5) S. Wenner, K. Nishimura, K. Matsuda, T. Matsuzaki, D. Tomono, F. L. Pratt, C. D. Marioara and R. Holmestad: *Acta Mater.*, **61** (2013), 6082-6092.