

文部科学省科学研究費補助金 新学術領域研究（平成23—27年度）

超低速ミュオン顕微鏡が拓く
物質・生命・素粒子科学のフロンティア

第2回領域会議

講演概要集

ULTRASLOW
MUON
MICROSCOPE



2012年8月29日(水)

プレススクール

2012年8月30日(木)～9月1日(土)

北海道大学 理学部 大講堂

共催 北海道大学、北海道大学理学研究院

第2回領域会議概要

[開催日]

2012年 8月30日(木) 9:45 ~ 2012年 9月1日(土) 17:00

プレスクール「異分野理解を深めるために」 2012年 8月29日(水) 13:15 ~ 19:05

[会場]

北海道大学 理学部 5号館 (低層棟) 5-203室 (理学部大講堂)

〒060-0810 札幌市北区北10条西8丁目

ポスター会場 理学部 5号館 (低層棟) 2F ロビー

プレスクール会場 理学部 5号館 (低層棟) 5-201室

[目的と概要]

2013年度早々の超低速ミュオン発生を目指し、超低速ミュオン発生装置基幹部及びレーザ装置の設計、製作が急ピッチで進んでいます。この実験装置を搭載する専用ビームライン建設も、2012年7月に、湾曲ソレノイド設置の山場を迎えました。第2回領域会議では、超低速ミュオン顕微鏡開発を中心に、プロジェクトの進捗状況、最近の研究成果を持ち寄って、物理、化学、生命、工学等多分野の研究者からなる本領域研究の理解共有を深めます。プレスクールは、互いに専門外の分野の基礎を入門編から学ぶことにより本会議での講演の理解を助けるとともに、相互理解を深めることにより異分野連携を一層強化するために企画しました。

[口頭発表]

講演時間はプログラムをご参照ください。各講演には5分の質問時間と、発表者の入れ替えのための時間も含まれますのでご注意ください。

発表ファイルは、差支えない範囲で講演後に集めさせていただきますのでご了承ください。

[ポスター発表]

ポスターは縦1200mm、横900mm以内で作成ください。展示はなるべく会議開始時から終了時までお願いします。

[会食]

期日 : 8月30日 19:00-21:00

会場 : 札幌アспенホテル (札幌市北区北8条西4丁目5番地 TEL 011-700-2111)

ご参加される方は事前の登録をお願いします。

[基調講演]

2012年8月30日(木) 11:50-12:30

大谷 文章 教授 (北海道大学触媒化学研究センター)

[組織委員会]

組織委員会

- 鳥養 映子 (委員長: 山梨大学医学工学総合研究部)
朝倉 清高 (副委員長: 北海道大学触媒化学研究センター)
網塚 浩 (実施事務局: 北海道大学大学院理学院)
髭本 亘 (プログラム委員長: 日本原子力研究開発機構先端基礎研究センター)
小嶋 健児 (技術委員: 高エネルギー加速器研究機構機構物質構造科学研究所)
三宅 康博 (A01 班長: 高エネルギー加速器研究機構機構物質構造科学研究所)
門野 良典 (A03 班長: 高エネルギー加速器研究機構機構物質構造科学研究所)
岩崎 雅彦 (A04 班長: 理化学研究所岩崎先端中間子研究室)

プログラム委員

- 髭本 亘 (プログラム委員長: 日本原子力研究開発機構先端基礎研究センター)
下村 浩一郎 (高エネルギー加速器研究機構機構物質構造科学研究所)
幸田 章宏 (高エネルギー加速器研究機構機構物質構造科学研究所)
石田 勝彦 (理化学研究所岩崎先端中間子研究室)



会食会場（札幌アспенホテル）へのアクセス

JR 札幌駅から徒歩 2 分、地下鉄さっぽろ駅から徒歩 5 分

JR 札幌駅北口（北海道大学方面）から出ますと、正面前方に L プラザというビルが建っております。そのまま交差点までお進み頂くと、左前方にございます。



口頭発表プログラム

8月30日(木)

9:45	挨拶の辞 上田一郎 北海道大学理事・副学長 北海道大学理学院紹介 網塚浩
10:00	研究計画進捗報告 鳥養映子(領域代表 山梨大学) 三宅康博(A01 班代表 KEK)、鳥養映子(A02 班代表 山梨大学) 門野良典(A03 班代表 KEK)、岩崎雅彦(A04 班代表 理研)
11:40	休憩
11:50	基調講演 金属酸化物光触媒の高活性化のための格子欠陥の評価と制御—ミュオン利用の期待 大谷文章 (北海道大学 触媒化学研究センター)
12:30	昼食(拡大総括班会議)
14:00	セッション1 触媒と表面反応 センサー, 燃料電池酸化物, Ni ₂ P 中の欠陥の動き 朝倉清高(北海道大学 触媒化学研究センター) 担持 Pd 触媒の構造と反応性 有賀寛子(北海道大学 触媒化学研究センター) 光触媒 TiO ₂ 中酸素欠陥の μ SR 法による同定 下村浩一郎(高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所) Pd(110)でのシス-2-ブテン水素化触媒反応 大野 哲(東京大学 生産技術研究所) μ SR で視る固体内イオン拡散: Na _x CoO ₂ 杉山 純 (豊田中央研究所)
16:05	休憩
16:20	セッション2 キラル磁性体と分子性導体 カイラル磁性体のスピンドYNAMIX 岸根順一郎(放送大学 自然環境科学プログラム) カイラル磁気ソリトン格子の実証 戸川欣彦(大阪府立大学 ナノ科学・材料研究センター) 無機カイラル磁性体 CsCuCl ₃ の結晶学的カイラリティの制御可能な合成手法の確立 高阪勇輔(青山学院大学 理工学部), 分子性導体における低次元揺らぎの織り成す多様なスピン状態 妹尾仁嗣(理化学研究所 基幹研究所),
19:00	会食(札幌アスペンホテル)
20:30	超低速ミュオン顕微鏡に関する意見交換会

8月31日(金)

9:00	セッション3 表面界面における磁性と伝導 ミュオンと核プローブの相補利用による磁性積層膜の深さプロファイル探査 壬生 攻(名古屋工業大学 大学院工学研究科) 酸化物ヘテロ構造を利用して擬二次元化したペロブスカイト Ni 酸化物における新奇絶縁体状態 坂井延寿(高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所) 深さ分解 X 線吸収分光法による磁性薄膜の表面・界面の観察 雨宮健太(高エネルギー加速器研究機構, 物質構造科学研究所) ケルビンプローブによる界面評価 橋詰富博(日立中研/東工大/東北大 WPI-AIMR)
10:40	休憩
10:55	セッション4 埋もれた界面とスピン流/生命と水 (招待講演)半導体における埋もれた界面構造とそのデバイス特性への影響 竹田美和(名古屋大学 工学研究科) 超高輝度・高スピン偏極度電子源の開発 金 秀光(名古屋大学 高等研究院) 超低速ミュオンによる熱スピントロニクスデバイスの研究 伊藤 孝(日本原子力研究開発機構 先端基礎研究センター) 生化学反応に伴う電子伝達過程の可視化への挑戦 新村信雄(茨城大学 フロンティア応用原子科学研究センター)
12:40	事務連絡、写真撮影
12:55	昼食
13:50	ポスターセッション
15:30	セッション5 レーザーと加速器 ミュオニウム励起用 Lyman- α 光源の開発:1062nm ファイバレーザーおよび広帯域 821nm 種光光源 (オメガ 2 シーダ) 岡村幸太郎(株式会社メガオプト) ミュオニウム励起用 Lyman- α 光源の開発:1062.78nm 全固体増幅器および波長変換 大石 裕(理化学研究所 仁科加速器研究センター) ミュオニウム励起用ライマン α 光源の開発:波長可変 820.65 nm システム(OMEGA2) & ライマン α シフター 宮崎洸治(理化学研究所 光グリーンテクノロジー特別研究ユニット), RIKEN-RAL ミュオン施設からの開発報告: An injection seeded nanosecond -OPG/OPA for stable Lyman- α generation 横山幸司(理化学研究所 仁科加速器研究センター)

<p>レーザー誘起コヒーレンスによるライマン α 光発生の高効率化 中嶋 隆(京都大学)</p> <p>超低速ミュオン線形加速器の開発 林崎規託(東京工業大学原子炉工学研究所)</p> <p>極冷ミュオンビームを用いた双極子能率の精密測定で物質の起源に迫る 齊藤直人 (高エネルギー加速器研究機構素粒子原子核研究所 /J-PARC センター)</p>

9月1日(土)

9:00	<p>セッション 6 超低速ミュオン顕微鏡</p> <p>超低速ミュオンビームラインの製作 牧村俊助(高エネルギー加速器研究機構 J-PARC センター)</p> <p>GEANT4 ベースのモンテカルロシミュレーションによる超低速ミュオンビームライン評価 長友傑(高エネルギー加速器研究機構 J-PARC センター)</p> <p>J-PARC/MUSE Ultra-Slow Muon Beamline P. Strasser(高エネルギー加速器研究機構 J-PARC センター)</p> <p>理研 RAL における超低速ミュオン生成、ミュオン輸送ビームラインの系統的理解へ向けた取り組み 友野 大(理化学研究所 仁科加速器研究センター)</p>
10:40	休憩
10:55	<p>セッション 7 生命と水</p> <p>負ミュオンによるタンパク質活性部位の定量化の可能性 田中伊知朗(茨城大学工学部 フロンティア応用原子科学研究センター)</p> <p>μ SR による生体分子における電子伝達の解明 菅原洋子(北里大学 理学部)</p> <p>Muonium Relaxation Spectroscopy of Biological Aqueous Solution K. Nagamine (Atomic Physics, RIKEN, Muon Science, KEK, Physics, U. of California, Riverside)</p>
12:10	昼食
13:05	<p>セッション 8 強相関電子系物質の超伝導と隠れた秩序</p> <p>(招待講演)STM/STS から見た銅酸化物高温超伝導体の擬ギャップ/電荷秩序と超伝導 小田研(北海道大学 物理学部門)</p> <p>鉄カルコゲナイドとランタン系銅酸化物における磁性と超伝導の μ SR による研究 足立匡(東北大学 大学院工学研究科)</p>

	<p>フラーレン・芳香族超伝導体の超伝導状態 笠原裕一(東京大学 大学院工学系研究科)</p> <p>URu₂Si₂の隠れた秩序相のSTM/STS 観察 金子真一(東京工業大学 理工学研究科)</p>
14:50	休憩
15:05	<p>セッション 9 ビーム及びレーザー輸送と熱ミュオニウム源</p> <p>スーパーオメガミュオンビームラインの現状 池戸豊(高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所)</p> <p>超低速ミュオン顕微鏡計画のためのレーザー輸送系の設計・製作の現状 中村惇平(高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所)</p> <p>シリカエアロジェル標的からのミュオニウム放出測定:解析および結果の理解 藤原裕也(東京大学 理学部)</p> <p>muon g-2 実験のための低速ミュオン源標的探索 石田勝彦(理化学研究所 仁科加速器研究センター)</p>
16:45	<p>評価委員講評 家泰弘委員、寺倉清之委員、山崎敏光委員</p>
17:00	閉会

- (P-1) 超低速ミュオン顕微鏡における μ SR 分光器
髭本 亘(日本原子力研究開発機構, 先端基礎研究センター,))
- (P-2) GaAs(001)表面上の MnAs 初期成長表面の STM 観測
吉野 淳二(東京工業大学大学院理工学研究科物性物理学専攻)
- (P-3) SrTiO₃ 表面における酸素欠損・吸着水素の分布と電子状態変化
武安 光太郎(東京大学生産技術研究所)
- (P-4) PSI 低エネルギーミュオンを用いた高温超伝導体薄膜の測定と J-PARC 超低速ミュオン顕微鏡での展開
小嶋 健児(高エネルギー加速器研究機構, 物質構造科学研究所)
- (P-5) T'-214 型銅酸化物における反強磁性秩序と近藤効果と超伝導
小池 洋二(東北大学, 大学院工学研究科)
- (P-6) La 系銅酸化物高温超伝導体のオーバードープ領域における Fe 誘起磁気秩序
鈴木 謙介(東北大学大学院工学研究科)
- (P-7) 化学輸送法による FeGe 系化合物の単結晶作製と物性評価
宮川 真里奈(広島大学大学院理学研究科)
- (P-8) 構造不規則希土類合金における重い電子と超伝導
雨海 有佑(室蘭工業大学大学院しくみ情報系領域)
- (P-9) URu₂Si₂ のパルス磁場下における超音波実験
柳澤 達也(北海道大学理学研究院)
- (P-10) カゴ状化合物 SmBe₁₃ の低温物性
日高 宏之(北海道大学理学研究院)
- (P-11) パルス磁場を用いた SmO₄Sb₁₂ の超音波測定
門別 翔太(北海道大学理学研究院)
- (P-12) URu₂Si₂ の X 線構造解析
田端 千紘(北海道大学理学研究院)
- (P-13) 強磁性体 CeAg の圧力効果
大谷 真也(北海道大学理学研究院)
- (P-14) FeNi 薄膜成長過程における表面構造と磁気異方性観察
酒巻 真粧子(高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所)
- (P-15) The first-principles study of adsorption of lithium on graphene
Amba Datt Pant (Tribhuvan University, Nepal, and University of Yamanashi)
- (P-16) La₂CuO₄ におけるミュオン位置の再検討・ミュオン位置計算プログラム開発へ向けて
渡邊 功雄(理化学研究所, 仁科加速器研究センター)
- (P-17) 超低速ミュオンと偏極電子銃によるスピントロニクス物質開発
鳥養 映子(山梨大学大学院医学工学総合研究部)

(P-18) 銅酸化物 $\text{Cu}_6\text{O}_8\text{MCl}$ ($\text{M} = \text{cation}$) の磁気・輸送特性

川島健司 (青山学院大学大学院)

(P-19) ミュオン $g-2/\text{EDM}$ の精密測定

三部勉 (高エネルギー加速器研究機構素粒子原子核研究所) for $g-2/\text{EDM}$ Collaboration

(P-20) Specification and Design of a Radial Vane Silicon Tracker for a New Measurement of the Muon Anomalous Magnetic Moment $g-2$ and Electric Dipole Moment at J-PARC

上野 一樹 (理化学研究所仁科加速器研究センター) for $g-2/\text{EDM}$ Collaboration

プレスクール「異分野理解を深めるために」

[日時] 2012年 8月 29日(水) 13:15 ~ 19:05

[会場] 理学部 5号館 (低層棟) 5-201室

[目的と概要]

本領域は、物性、触媒化学、電気化学、生命科学、素粒子原子核物理、加速器科学、レーザー科学等の広範な分野の最先端の知識と技術を結集して超低速ミュオン顕微鏡を完成させ、超低速ミュオン顕微法の持つ潜在能力を十分活用して異分野への積極的な展開を図り、ミュオンが活躍する領域を広げて、新しい学術分野を拓くことを目指しています。

プレスクールは、互いに専門外の分野の基礎を入門編から学ぶことにより本会議での講演の理解を助けるとともに、相互理解を深めることにより異分野連携を一層強化するために企画しました。講師の皆さんには、受講者として専門分野以外の学生を想定した分かりやすく非常に基礎的・基本的なところからの説明をお願いします。素人にも質問しやすい雰囲気づくりに努めますので、初歩的な質問も恐れず学生に戻った気持ちでご参加下さい。たくさんの大学院生や若手、中堅研究者のご参加を期待しています。

プログラム

8月 29日(水) 13:15 -19:05

13:00	受付開始
13:15	世話人挨拶・趣旨説明 幸田章宏(高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所)
13:20	μ SRの基礎、強相関物質 髭本 亘(日本原子力研究開発機構 先端基礎研究センター)
14:05	触媒化学の基礎 有賀 寛子(北海道大学 触媒化学研究センター)
14:50	休憩
15:05	素粒子科学の基礎とg-2 三部 勉(高エネルギー加速器研究機構 素粒子原子核研究所)
15:50	スピントロニクス 池田正二(東北大学 電気通信研究所)
16:35	非対称固体の物性 -キラル磁性を中心に- 井上克也(広島大学 理学研究科)
17:20	休憩
17:35	生命科学の基礎 新村 信雄(茨城大学 フロンティア応用原子科学研究センター)
18:20	ミュオンによる電子伝達と生命科学への応用 永嶺 謙忠(理化学研究所、高エネルギー加速器研究機構、UCRiverside)

プレスクール「異分野理解を深めるために」

[日時] 2012年 8月 29日(水) 13:15 ~ 19:05

[会場] 理学部 5号館 (低層棟) 5-201 室

[目的と概要]

本領域は、物性、触媒化学、電気化学、生命科学、素粒子原子核物理、加速器科学、レーザー科学等の広範な分野の最先端の知識と技術を結集して超低速ミュオン顕微鏡を完成させ、超低速ミュオン顕微法の持つ潜在能力を十分活用して異分野への積極的な展開を図り、ミュオンが活躍する領域を広げて、新しい学術分野を拓くことを目指しています。

プレスクールは、互いに専門外の分野の基礎を入門編から学ぶことにより本会議での講演の理解を助けるとともに、相互理解を深めることにより異分野連携を一層強化するために企画しました。講師の皆さんには、受講者として専門分野以外の学生を想定した分かりやすく非常に基礎的・基本的なところからの説明をお願いします。素人にも質問しやすい雰囲気づくりに努めますので、初歩的な質問も恐れず学生に戻った気持ちでご参加下さい。たくさんの大学院生や若手、中堅研究者のご参加を期待しています。

プログラム

8月 29日(水) 13:15 -19:05

13:00	受付開始
13:15	世話人挨拶・趣旨説明 幸田章宏(高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所)
13:20	μ SR の基礎、強相関物質 髭本 亘(日本原子力研究開発機構 先端基礎研究センター)
14:05	触媒化学の基礎 有賀 寛子(北海道大学 触媒化学研究センター)
14:50	休憩
15:05	素粒子科学の基礎と g-2 三部 勉(高エネルギー加速器研究機構 素粒子原子核研究所)
15:50	スピントロニクス of 基礎 池田正二(東北大学 電気通信研究所)
16:35	非対称固体の物性 -キラル磁性を中心に- 井上克也(広島大学 理学研究科)
17:20	休憩
17:35	生命科学の基礎 新村 信雄(茨城大学 フロンティア応用原子科学研究センター)
18: 20	ミュオンによる電子伝達と生命科学への応用 永嶺 謙忠(理化学研究所、高エネルギー加速器研究機構、UCRiverside)

口頭発表



領域発足からの1年とこれからの1年

鳥養映子

領域代表・山梨大学 大学院医学工学総合研究部

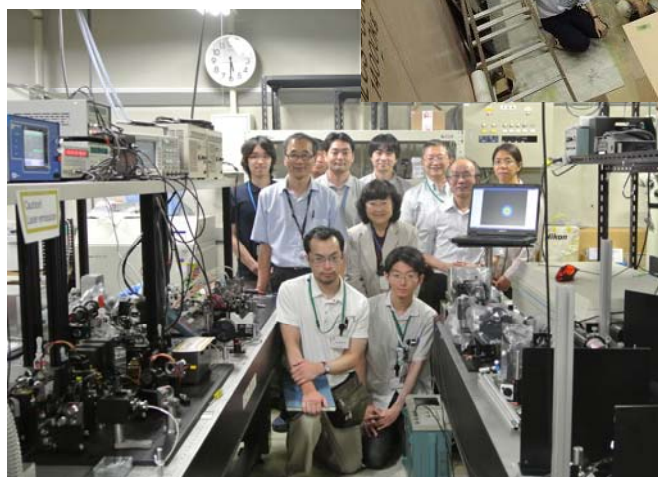
超低速ミュオン顕微鏡は、我が国の誇る2つのパルス技術すなわち、J-PARC Uラインの世界最高強度パルスミュオン源と、理化学研究所の世界最高強度パルスライマン α レーザー光源によって初めて実用装置としての性能が実現するものです。領域発足からの1年間のハイライトは、何といてもこれら基盤装置の開発に尽きます。J-PARCでは、震災からの復興工事、Uライン他の設計製作、ビームタイム運用と重要なプロジェクトが走る中を、A01班の皆さんの尽力で超低速ミュオン源の設計製作が着々と進んでいます。7月5日にはUラインの中心をなす湾曲ソレノイドとトンネル内の、見学会(写真上)が実施されました。湾曲ソレノイドはトンネル内に設置され、真空試験も無事完了しました。

一方理化学研究所ではA04班の活躍で、レーザー装置の開発が進められています。レーザー部品の調達もほぼ完了し、全固体ライマン α レーザー発生装置の開発がよいよ佳境に入り、7月30日には組立て中のレーザー装置が関係者に披露されました(写真下)。写真の左側はオメガ1と呼ばれる2光子共鳴励起光発生と非線形増幅システム、右側はオメガ2と呼ばれるコヒーレント光発生システムです。中央左寄りのモニタには、中間増幅光の強度分布が示されており、理想的なガウスビームが得られていることがわかります。

計画研究班に博士研究員4名、新たな連携研修者10名、公募研究者9名、事務局2名が加わり、80名を越す大きなチームになりました。来年度初めには初めての超低速ミュオン発生とビームコミッショニングがよいよ始まります。来夏の長期シャットダウンまでに、超低速ミュオン発生とその性能確認を行います。まさに正念場の1年、頑張りましょう！



写真上 Uライン前に仮置した湾曲ソレノイドと見学会参加者。翌日湾曲ソレノイドはトンネル内に挿入され、最初で最後のトンネル内見学となった(J-PARC MLFミュオン施設 Uライン設置場所にて。2012年7月6日)



写真左 開発中の全固体レーザー光発生装置と内覧会参加者。8月中のライマン α テスト実験に向けて急ピッチで開発が進んでいる。(理化学研究所光グリーンテクノロジー特別研究ユニットにて。2012年7月30日)

超低速ミュオン顕微鏡 A01 班の現状

三宅康博^{1,2}, ストラッサー・パトリック^{1,2}, 牧村俊助^{1,2}, 中村惇平^{1,2}, 長友傑^{1,2},
池戸豊^{1,2}, 下村浩一郎^{1,2}, 西山樟生^{1,2}, 幸田章宏^{1,2}, 河村成肇^{1,2}, 小林庸男^{1,2},
髭本亘^{3,2}, 伊藤孝^{3,2}, 小嶋健児^{1,2}, 門野良典^{1,2}, 石田勝彦⁴, 鳥養映子⁵

¹ 高エネルギー加速器研究機構, 物質構造科学研究所

² J-PARC センターミュオンセクション

³ 日本原子力研究開発機構, 先端基礎研究センター,

⁴ 理化学研究所 仁科センター

⁵ 山梨大学, 大学院医学工学総合研究部

超低速ミュオン顕微鏡計画に密接に関わるUラインの建設が順調に進行している。超伝導湾曲ソレノイド電磁石が2012年7月5日にJ-PARCに搬入され、設置・真空リーク試験が完了した。7月6日には、新学術領域関係者に集まっていただき、お披露目式を開催した。引き続き、超伝導軸収束ソレノイド電磁石の設置を8月から行う予定である。一方、A01班の枠組みで、超低速ミュオン顕微鏡実験装置の整備がおこなわれつつある。ミュオニウム (Mu) チャンバー、超低速ミュオン輸送系の入札が滞りなく行われ、10月には実機が納入される運びである。

10月18日よりJ-PARCの運転が再開される事に伴い、Uラインのコミッショニングを行い、11月半ばを目処に、低速(表面)ミュオン引き出し効率、陽電子セパレータ等の最適化をはかる。速やかに、A04班で開発しているライマンαレーザーシステムと組み合わせ、超低速ミュオン顕微鏡実験装置を設置する。すべてが順調に進めばという理想的なケースでは、12月には、超低速ミュオンファーストビームを取り出せる予定である。並行して、髭本等により分光器の整備が進められている。領域会議では、超低速ミュオン顕微鏡装置関連の最新の状況を報告する。

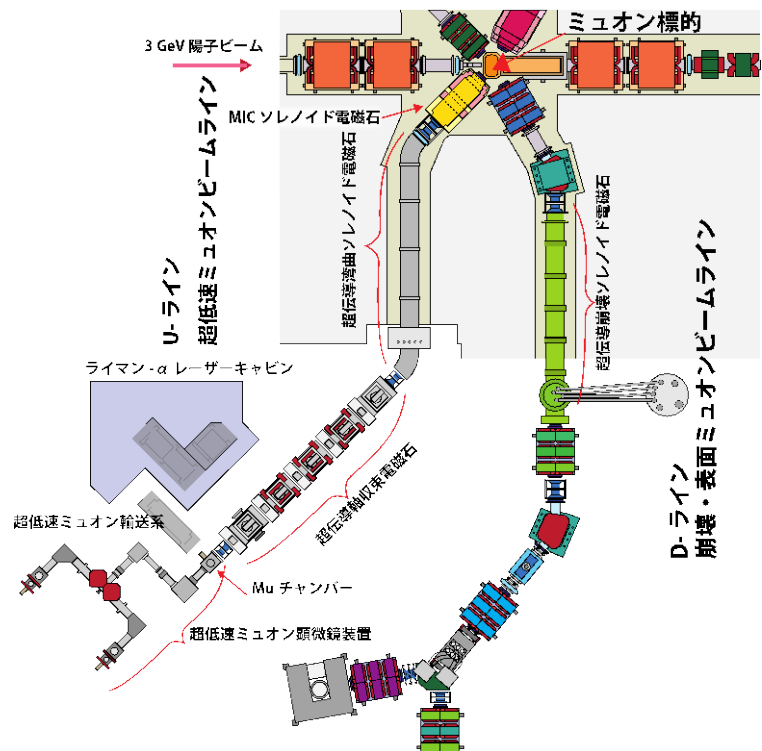


図1. MLF 第2 実験ホール内 MUSE 施設 U、Dラインレイアウト。新学術領域の枠組みで製作されている超低速ミュオン顕微鏡装置はUライン最下流に設置される。



A02班：スピン伝導と反応

鳥養映子

山梨大学大学院医学工学総合研究部

A02班では、低速ミュオン顕微鏡の実現によって、化学反応や生命反応等、従来のミュオン施設では実験対象になり難かった分野への展開を図る。ミュオン科学にとっての未知領域を代表しているのが、朝倉（触媒化学）、菅原（生物物理）、吉野（スピントロニクス）らである。この1年間は、本計画班が駆使する3つの研究手法、ミュオン電子ラベル法、ミュオニウムスピン交換反応法、ミュオニウムイオン化分光法を原理から開発してきた永嶺、鳥養、下村らが中心となり、前川、常行ら理論研究者と新たに参画した研究協力者らの協力を得て、スピン依存伝導電子散乱研究会、偏極電子研究会、触媒化学研究会、生命科学研究会を開催し、理論と実験の協力体制の強化や、実験装置の開発、予備実験を進めてきた。一方、杉山（電気化学）は、野崎、原田と連携して世界のミュオン施設を駆使して、電池材料におけるイオン伝導の研究を進め、新しい知見を次々に発見した。

電極・電解質境界に形成される界面層のイオン拡散挙動の研究(杉山、野崎、原田)：オリビン構造を取る一連のLi電池正極材料(LiMPO_4 , $M=\text{Fe, Co, Ni}$)の μSR 実験から、各物質の自己拡散係数を実験的に始めて明らかにした(Phys. Rev. B85, 54111, 2012)。さらにJ-PARCにおいて水素の運動に関する予備実験を開始した。

触媒化学反応・光触媒反応の4次元可視化(朝倉、下村、鳥養、常行、大谷、有賀)：光触媒反応の機構を酸化物中に含まれる酸素欠陥結晶構造と酸素欠陥を制御した TiO_2 試料中のミュオン電子状態について、予備的実験データを集積した。また、酸素欠陥量を制御した多結晶 TiO_2 について、ミュオニウム(孤立状水素)研究と酸素欠陥中の水素の理論計算により、電子状態等の微視的理解を進めた。

負ミュオニウムによる伝導電子のスピン依存散乱(鳥養、永嶺、下村、吉野、髭本、前川)：ミュオニウムスピン交換反応法による伝導電子スピン偏極測定の実験原理検証と定量化のために日米英の研究チームでn型GaAsの円偏光スピン偏極電子励起実験を進めてきた。スピン三重項状態の負ミュオニウムが伝導電子のスピン偏極に対して高感度で反応する謎を、前川、Ziman, Guら理論チームの協力を得て解明した。

偏極電子銃研究会(永嶺、鳥養、下村、髭本、伊藤)：20keVのスピン偏極電子銃を用いて、任意の物質に適用可能な方法でスピン偏極電子を注入し、物質中でのスピン寿命とスピン拡散の機構を解明するため、吉岡、小林らKEKの加速器研究チームの協力を得て小型スピン偏極電子銃の開発を行い、基本設計を完成させた。

生命反応を司る電子伝達研究会(永嶺、菅原、鳥養、下村)：生命科学の基礎データとなる水やバッファ液中のミュオニウム状態の酸素濃度依存性の予備的研究を進めた。ミトコンドリアにおける電子伝達に関わる蛋白質シトクロムcの含水量を制御して μSR 測定を進めている。またシトクロムcの結晶(正方晶および三方晶)について 1mm^3 程度の単結晶の作成に成功し、中性子構造回折を行った。

「表面- バルク境界のヘテロ電子相関 (A03 班) 」の進捗状況

門野良典^{1,2}

¹ 高エネルギー加速器研究機構物質構造科学研究所

² J-PARC センター物質生命科学ディビジョン

A03 班では、Day1 に向けてどのような実験を行うか、さらには来年度以降、試料環境整備といったハードウェアの整備もふくめ、どのように研究を展開して行くかについて、班としての研究戦略を練りつつある。本年6月下旬にはこれについての意見交換を主目的とした班会議を開催し、関係者の間で情報共有を行うとともに、具体的な実験条件などについて突っ込んだ議論を行ったので、本講演でその内容を紹介する [1]。

[1] 班会議の抄録は<http://msl.kek.jp/a03/> を参照。

新学術領域 A04 班の現状と展望

岩崎雅彦^{1,2}

¹ 理化学研究所, 〒351-0198 埼玉県和光市広沢 2-1,

² 東京工業大学, 〒152-8550 東京都目黒区大岡山 2-12-1

これまで、理研の先端中間子研究室は、理研RAL 支所のPort-3 においてKEK のミュオングループ等との共同研究により、高温タングステンフォイルから生成するミュオニウムをレーザー解離することによって超低速ミュオンビームを生成し、それを実用研究に供するための基盤的研究を展開して来た。高輝度のレーザーによってさらにこの研究を大きく進展させるために、新学術領域が成立するのに先駆けて、2年前から理研内部予算によって理研固体レーザー研究グループと共同で、ミュオニウム解離用の大強度レーザーの要となる発振器の先行開発を行って来た。新学術領域の予算をA04 班として受け、すでに開発済みのこのシード光発信装置を核としてフルセットの全固体レーザーシステムを現在作成しつつあり、本研究会でもその開発の現状に関する複数の発表を予定している。

一方で、A04 班は超低速ミュオンのビームとしての性質をさらに改善して、ミュオンの異常磁気能率の超精密測定する素粒子研究のためのミュオン源とすることが可能なように高度化し、その成果を逆に領域全体にフィードバックし、SR 等の物性応用研究に資することを目指している。超低速ミュオンのビームとしての性質で最も重要になるのは、その収量と共に、如何にビームの広がりを押さえるかが最大のポイントである。問題となるビームの広がりの中なかでも、位置および角度（エミッタンス）、エネルギー、時間分散の3種類が極めて重要であり、これまでミュオンビームの性能をさらに先鋭化させるためのいくつかの概念提案を行って来た[1]。また、超低速ミュオンを発生させる際に、中間状態としてミュオニウムを経由する手法を用いているため、ミュオンビームの偏極度はそのままでは不可避免的に50%にまで減偏極してしまう。ミュオンスピンの磁気に対する感度は偏極度の2乗に比例するため、この減偏極を回復させる現実的な手法が存在するかどうか、A04 班の重要な研究テーマとなる。これらは、A01 班とも協力して進める必要が在る。

これら、ミュオンビームの性質を決定するパラメータの中でも、エミッタンスの向上は他の総ての分散を制御することを容易にするため、A04 班としてはまずその向上から中心的に取り組んでいる。エミッタンスの向上には、レーザー解離するミュオニウムの温度そのものを下げることが本質的に重要となる。そこで、室温でも効率的に真空中にミュオニウムを放出するミュオニウム生成標的の候補物質としてシリカエアロジェルに着目し、TRIUMF(カナダ) でDC ビームを用いてミュオニウム生成実験S1249を行って来た。現在、その実験データの論文化のために解析を進めており、本研究会でも発表が在るように解析は最終段階に在る。

本講演では、TRIUMF の実験データに立脚した基礎資料をまとめ、超低速ミュオンビームの高度化と先鋭化のために、今後どのような研究展開が望まれるかについて本会議で議論したい。

[1] M. Iwasaki and K. Ishida, J. Phys. Conf. Ser. **225** (2010) 012005.

金属酸化物光触媒の高活性化のための格子欠陥の評価と制御—ミュオン利用の期待

大谷文章

北海道大学・触媒化学研究センター

酸化チタンを代表例とする金属酸化物による光触媒反応はすでに広範囲の応用が進められているが、その作用機序の詳細については不明な点が多い。熱力学的には、励起電子の還元力をきめる伝導帯下端、および、正孔の酸化力をきめる価電子帯上端のポテンシャルから、光吸収特性と酸化還元能力を予想できるが、速度論的には、光触媒表面の反応基質の吸着や空気中の反応では、中間ラジカルと酸素の反応、さらに、励起電子—正孔の再結合などが支配要因になると考えられている。このうちで、再結合の速度については、再結合中心である格子欠陥の定性、定量的評価がむずかしいため、解明が進んでいないのが現状である。この講演では、格子欠陥の評価と制御について、これまでのわれわれの研究成果を中心に解説するとともに、ミュオン利用の期待についてのべる。

光触媒としてはたらく金属酸化物は、電極にしたときに整流特性しめすことからn型半導体であると考えられており、このため不均一系光触媒反応を半導体光触媒反応とよぶこともあるが、その半導体としての性質が議論されることは少ない。n型半導体は伝導帯のすぐ下に電子がつまったドナー準位があり、電解質溶液と接すると、溶液の標準電極電位とフェルミ準位のちがいから、ドナー準位の電子が溶液に移動してドナー準位が空になると考えられる。n型である酸化チタンなどの光触媒では、バンド間遷移した励起電子はこの空の準位にトラップされ、浅い準位にトラップされた場合には伝導帯へのホッピングにより表面へと移動し、深い準位にトラップされた場合には正孔との再結合が起こると予想される。したがって、この「励起電子をトラップする準位」の深さと密度の定量的評価が必要となる。

この電子トラップの評価については、酸化チタンを対象とする光化学法 [1] と光音響分光 (PAS) 法 [2] がある。いずれも、照射により酸化チタン中に生じる三価のチタン種 (Ti^{3+}) を定量するものであり、前者は、 Ti^{3+} を電子受容体であるメチルビオロゲンに移動させて生じるカチオンラジカルの光吸収から Ti^{3+} の総量を測定する手法、後者は Ti^{3+} の可視～近赤外領域の光吸収を粉末による光散乱の影響をうけないPASにより測定する手法である。前者では、電子トラップ総量 (総密度) の定量は比較的容易であるが、エネルギー分解を行うためには複雑で長時間の実験を必要とする。後者については、励起電子がトラップされる過程や照射終了後の消滅過程を追跡することによってエネルギー分解が可能かどうかを検討中である。この講演ではこれらの手法と得られた結果について紹介するとともに、偏極ミュオン緩和スペクトル (μ SR) の解析による電子トラップ測定の可能性についてのべる。

[1] *Phys. Chem. Chem. Phys.* **5** (2003) 778. [2] *J. Phys. Chem. C* **111** (2007) 11927.

センサー，燃料電池酸化物，Ni₂P 中の欠陥の動き 朝倉清高

北海道大学触媒化学研究センター

酸化物などがガス吸着や反応する際に単に表面科学プロセスにとどまることなく、バルクからの酸素や物質移動が重要な働きをする場合がある。その際重要な役割を果たすのが格子欠陥である。

SnO₂ は、可燃ガスセンサーとして使われている。このときに、可燃ガスが SnO₂ と反応し、酸素を奪うことで生じる欠陥が N 型不純物として働き、電気伝導性を変える。さて、Pt を加えると、そのセンサー性能が良くなることが知られている。Pt が微粒子として、可燃ガスを解離し、原子状の反応性の高い水素や炭素種を供給することで、高性能化につながると考えられてきたが、XAFS によると、Pt は Sn の格子と置換して原子状に高分散していることがわかった。こうした置換された Pt は周りに酸素欠損を作りやすい環境を与え、活性が向上している可能性がある。

一方、ある種のペロボスカイトは高い水酸基イオン伝導性を持ち、燃料電池のカソードとして、期待されている。このときにプロトンの代わりに水酸イオンが伝導すると言われているが、その詳細はわかっていない。ここでも酸素欠陥やプロトンと酸素イオンとの結合様式および伝播様式が重要な役割を果たしていると考えられる。

一方、Ni₂P は脱硫触媒として知られるが、表面は P リッチの状態になっており、P の除去が高活性化には必要であると考えられている。しかし、高温では、常にバルクから P が供給され、P リッチな状態が維持されやすい。このため、P の拡散や P 欠陥の性質を調べることは、Ni₂P のキャラクタリゼーションと構造制御には欠かすことができない。[1]

欠陥は、重要な働きを示すが、従来法では欠陥の直接見ることが難しく、ミュオンに期待されることは、ミュオンと直接欠陥が相互作用し、欠陥の情報を与えてくれることである、2 番目は欠陥の周りにある原子種との相互作用である。特に ¹⁹⁵Pt や ³¹P は核磁気モーメントを持っていることからミュオンとの磁氣的相互作用が期待され、ミュオンとこれら各種の相互作用から欠陥と不純物、格子との関連の情報を得られる可能性について議論したい。

[1] 1 A. B. Hernandez, H. Ariga, S. Takakusagi, K. Kinoshita, S. Suzuki, S. Otani, S. T. Oyama, K. Asakura, *Chemical Physics Letters* **2011**, 513, 48-52

担持 Pd 触媒の構造と反応性

有賀寛子,¹ M. Sterrer,² H.-J. Freund,² 朝倉清高¹

¹北海道大学触媒化学研究センター

²Fritz-Haber-Institut der Max-Planck-Gesellschaft, Department of Chemical Physics

In this contribution we present first results of in-situ scanning tunnelling microscopy studies related to the preparation of supported metal catalysts on well-defined oxide surfaces applying procedures used in real catalysis. While in most UHV model studies of supported metal catalysts the metal is deposited onto a clean surface by physical vapour deposition, the standard methods in real catalyst preparation, e.g. impregnation or deposition precipitation, are wet chemical routes with the important processes occurring at the solid liquid interface, followed by calcination and reduction to transform the catalyst precursor into the active compound. The aim of the present work is to apply those preparation procedures to well-defined oxide surfaces using thin oxide films as substrates that allow standard surface science characterization techniques to be applied. We present STM results for Pd deposition from PdCl₂ containing solutions of different pH onto a FeO(111)/Pt(111) thin film.

The experimental set-up combines a UHV chamber for thin film preparation with a transfer system that allows transferring the UHV prepared samples under clean conditions into a suitable liquid cell for STM investigations of the solid-liquid interface.

FeO(111) thin films were prepared by evaporation of Fe on Pt(111) at room temperature followed by oxidation in an oxygen ambient of 1×10^{-6} mbar at a substrate temperature of 1000 K. First the FeO thin film was exposed to air or to liquid water and characterized by STM. The oxide film is stable in both environments and preserves its long-range order as revealed by the observation of a characteristic Moiré superstructure with STM. XPS and IR shows the formation of hydroxyl groups that might play an important role for anchoring the metal complexes from the liquid phase, as well as partial oxidation of Fe²⁺ to Fe³⁺. The interaction of a PdCl₂ containing solution with the surface of the FeO(111) thin film was studied in-situ with STM for various PdCl₂ concentrations and solution pH, as well as after washing the surface with water, drying, calcination in UHV, and reduction in H₂. The results of these experiments will be compared with the respective results for Pd clusters on FeO(111) prepared in UHV.

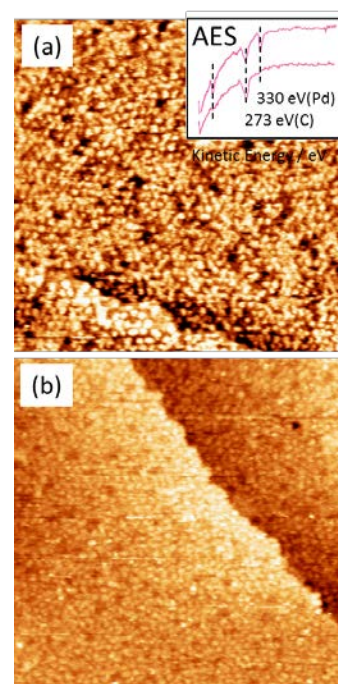


Fig. 1 STM images of FeO film after immersing to pH 10 (a), and pH 3 (b) Pd solution.

光触媒 TiO₂ 中酸素欠陥のμSR 法による同定

下村浩一郎¹, 伊藤孝², 髭本亘², 大谷文章³, 朝倉清高³,
有賀寛子³, 鳥養映子⁴, 門野良典¹, 三宅康博¹

¹ 高エネルギー加速器研究機構, 物質構造科学研究所,

² 日本原子力研究開発機構, 先端基礎研究センター,

³ 北海道大学, 触媒化学研究センター

⁴ 山梨大学, 大学院医学工学総合研究部

ルチル型の二酸化チタン(TiO₂)は光触媒として広く実用化されているが、その触媒活性を支配する要因がなんであるかは現在も重要な研究テーマである。なかでも結晶中の酸素欠陥は、大きな要因の一つと考えられているが、その空間分布、バンド構造中でのエネルギー準位などを微視的に観測する手段がないため、その開発が望まれている。

一方μSR はこれまで、広く酸化物および半導体に適用されてきており、なかでも最近では、チタン酸ストロンチム(SrTiO₃)中の酸素欠陥の有無に対して、ミュオンが非常に敏感に振る舞うことが明らかになってきている。

そこで本研究では TiO₂ 中の酸素欠陥に対してミュオンがどのように振る舞うかを調べることで、新たな同定手段として開発することを目指している。実際の測定としては、粒径サイズの異なる(酸素欠陥量の異なる)試料を複数個用意して、横磁場回転法により、緩和率のサイズ依存性を調べ明瞭な依存性が見出された、さらに表面の水分子の存在による緩和の影響を排除するため新たに表面から水分子を除去できる試料チャンバーを開発し、アニーリング前後でのデータを比較することで、この緩和が水分子由来でないことを明らかにした。

今後はさらに継続して測定を行いこの描像を確かなものとするとともに、超低速ミュオンを用いた測定へと進めていきたいと考えている。

Pd(110)でのシス-2-ブテン水素化触媒反応

福谷 克之, 大野 哲, Wilde Markus

東京大学生産技術研究所

Pd は炭化水素不飽和結合への水素付加反応を触媒し、石油科学などの分野で重用されている。この触媒反応に関し、Pd クラスタを用いた研究[1]で、サブサーフェス領域に吸収された水素が活性を与えることが報告された。これより、内部へ侵入した水素が表面のPd 格子間隔や電子構造を変えることで、表面にある水素の活性を発現させるとするモデルと、拡散により再表出した水素原子が炭化水素に付加していくとするモデルが提案された。しかし触媒表面および内部にある水素の挙動および電子状態を実験的に観測することの困難から、二つのモデルの妥当性は未解決であった。

本研究では、超高真空槽(基礎圧力 1×10^{-8} Pa)内で清浄化したPd(110)に、160 K以下の低温で水素とシス-2-ブテンを共吸着させ、熱脱離分光(TDS)によりブタン生成の水素化触媒反応を調べた。曝露によって形成される水素の深さ分布は、共鳴核反応法(NRA)によって測定した。NRA では、加速した窒素イオンと水素原子の間で共鳴エネルギー6.385 MeVにおいて起こる核反応 ${}^1\text{H}({}^{15}\text{N}, \alpha\gamma){}^{12}\text{C}$ を利用し、放出される γ 線強度から水素を定量する。共鳴エネルギー幅は $\Gamma=1.8$ keVと狭いため、照射ビームのエネルギー掃引によってプローブする深さを操作でき、試料表面下の水素濃度分布の測定が可能である。この際の分解能は1 nm程度である[2]。

図1に反応TDSの結果を示す。1.3 Lの水素曝露によって表面にのみ水素を吸着させた場合、反応生成物のブタンの脱離は見られない(a)。一方、1000 Lの曝露により表面下まで水素が蓄積されているときには、195 K付近にブタンピークが見られ、反応が進行したことが分かる(b)。これにより、単結晶にも触媒作用があることが示され、また表面下の水素が反応性を支配することが明らかとなった。ここでブタンの脱離はPd水素化物が溶解する温度(~ 160 K)より高いことから、反応時、すでに水素化物は存在しなかったと考えられる。水素固溶相が表面の幾何学的・電子的構造を大きく変化させることは考えにくいことから、再表出した水素が直接反応するモデルが支持された。実際、Pd(110)に吸収された水素が脱離する温度は195 K付近であり、ブタンの脱離温度と良く一致する。ただしブテンとの共吸着時には水素の脱離様式は大きく変調され、280 K付近まで脱離が見られない(図1)。詳細な反応機構を探るため、今後USMMによる実験を計画している。

[1] M. Wilde et al., *Angew. Chem. Int. Ed.*

2008, 47, 9289.

[2] B. Maurel et al., *Nucl. Instr. Meth. Phys.*

Res. 1983, 218, 159.

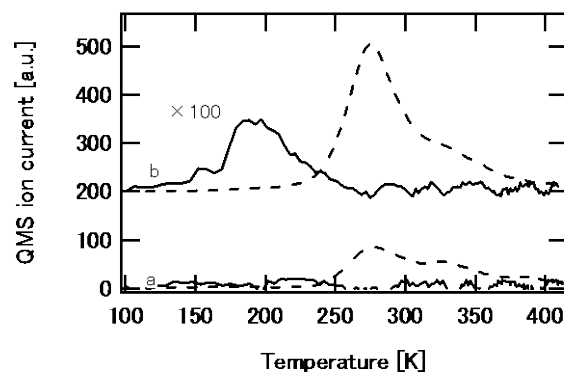


図1 シス-2-ブテンの水素化反応 TDS。実線: ブタン、破線: 水素。事前の水素曝露は a) 1.3 L、130 K b) 1000 L、160 K。

μSR で見る固体内イオン拡散: Na_xCoO_2

杉山 純¹, 島田崇史², 竹内恒博², M. Månsson³, A. Hillier⁴, S. Giblin⁴

¹豊田中央研究所, 分析研究部, ナノ解析研究室

²名古屋大学, 工学部, エコトピア科学研究所

³Laboratory for Solid State Physics, ETH Zürich

⁴ISIS Muon Facility, Rutherford Appleton Laboratory

【目的】 Na_xCoO_2 は、複雑な磁気状態図[1]・高い熱電性能[2]・水和して発現する超伝導[3]といった特徴のため、多くの注目を集めてきた。しかし初期には電池材料として研究されてきた[4]。さらに最近、電気化学測定による Na 拡散係数の x 依存性が報告された[5]。一方我々は μSR で、類縁構造の Li_xCoO_2 中の Li 拡散を検出した[6]。そこで Na_xCoO_2 の拡散挙動についても μSR で検出できるかを調べた。

【結果】 $x=0.5-0.75$ の多結晶試料の ZF スペクトルは、低温では概ね静的な核磁場緩和挙動を示し、300K 付近以上で動的になった(図1)。図2に $\text{Na}_{0.7}\text{CoO}_2$ 試料の核磁場分布幅(Δ)と核磁場揺動速度(ν)の温度依存性を、Na-NMRの結果(共鳴線幅とスピン格子緩和率)[8]と比較した。 Δ と共鳴線幅、 ν と $1/T_1$ の温度依存性は定性的には一致するので、 Δ と ν の変化はμ拡散ではなく Na 拡散に起因すると結論した。

[1] J. Sugiyama et al., PRB **67**, 214420 (2003); PRL **92**, 017602 (2004).

[3] I. Terasaki et al., PRB **56**, R12685 (1997).

[4] K. Takada et al., Nature **422**, 53 (2003).

[5] L. W. Shacklette et al., J. Electrochem. Soc. **135**, 2669 (1988).

[6] G. J. Shu et al., PRB **78**, 052101 (2008).

[7] J. Sugiyama et al., PRL **103**, 147601 (2009).

[8] J. L. Gavilano et al., PRB **69**, 100404(R) (2004).

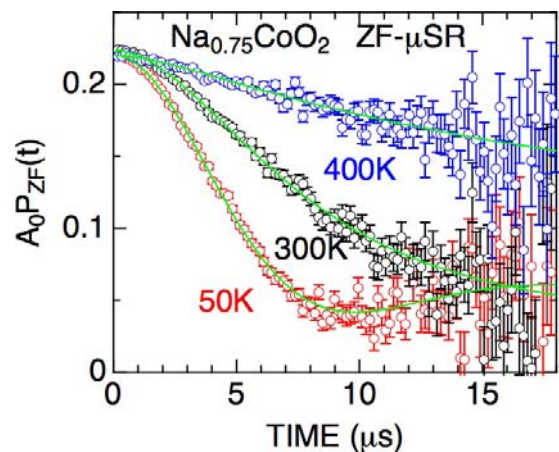


図1 $\text{Na}_{0.75}\text{CoO}_2$ 試料の 50, 300, 400K で得られた ZF スペクトル。

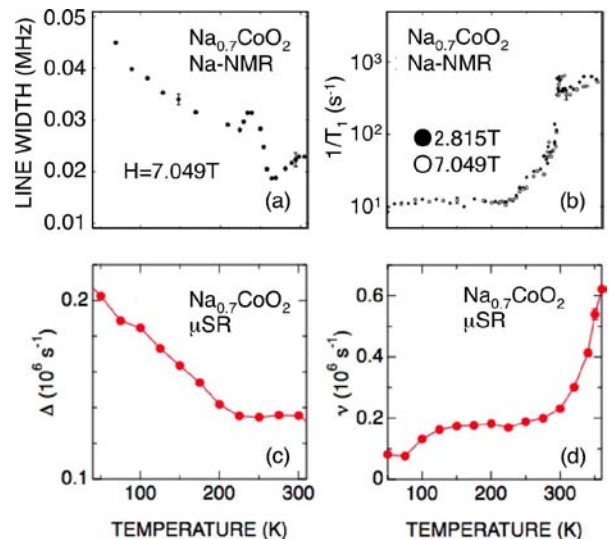


図2 $\text{Na}_{0.7}\text{CoO}_2$ 試料の Na-NMR で得られた (a)線幅と(b) $1/T_1$ の温度依存性と、μSR で得られた(c) Δ と(d) ν の温度依存性。

カイラル磁性体のスピンドイナミクス

岸根順一郎

放送大学 自然環境科学プログラム

水晶のようにカイラリティを持つ結晶が磁性を持つ場合、スピン・軌道相互作用に由来する弱い「ジャロシンスキー・守谷 (DM) 相互作用」によってスピン磁気モーメントの向きが特定の巻き方(カイラリティ)を保持して周期的に捻じれた「カイラルらせん磁気構造」が極めて安定に現れる(図1)。この状態は、スピン磁気モーメントというベクトルの自由度の「位相変調」が結晶の構造カイラリティ(カイラル対称性の破れ)によってマクロスケールで保持された非整合磁気秩序であり、その空間周期は数百オングストロームに達する。さらに、カイラルらせん磁気構造に 0.1 テスラ程度の弱磁場を印加すると磁気構造の空間周期を無限大(試料サイズ)まで周期的に変調することができる。これがカイラル磁性体に特有の「カイラルソリトン格子(CSL)」と呼ばれるスピンの非線形位相構造(スピントクスチャ)である(図2)。また、CSLは全体としての「並進運動」に加えて「歳差」、「章動」という内部ダイナミクスを持つことが判っている。これらのダイナミクスはまさに超低速ミュオンがカバーする時空領域と一致している。本講演では、「カイラル磁性結晶における磁気構造とダイナミクス」が超低速ミュオンが得意とする時空スケールが絡む現象の宝庫であることを紹介し、ミュオンがカイラル物質の機能を探究する上で極めて重要なプローブであることを示したい。

- [1] Y. Togawa, T. Koyama, K. Takayanagi, S. Mori, Y. Kousaka, J. Akimitsu, S. Nishihara, K. Inoue, A. S. Ovchinnikov, and J. Kishine, Phys. Rev. Lett. 108, 107202 (2012)
- [2] J. Kishine, I. Proskurin and A.S. Ovchinnikov, Phys. Rev. Lett. 107, 017205 (2011)
- [3] J. Kishine, A.S. Ovchinnikov, and I. Proskurin, Phys. Rev. B 82, 064407 (2010)
- [4] A .B. Borisov, J .K ishine, I .G. Bostrem, a nd A .S. O vchinnikov, P hys.Rev.B79, 134436(2009)

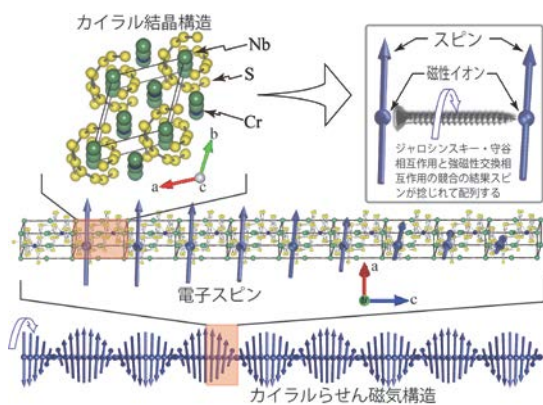


図1カイラル磁性体 $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$ におけるカイラルらせん磁気構造の形成

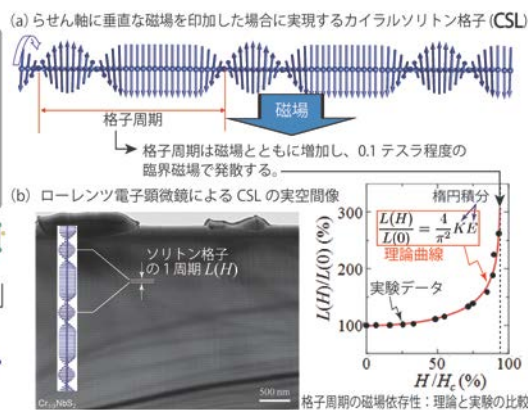


図2カイラルスピソリトン格子(CSL)構造の形成(理論と実験)

カイラル磁気ソリトン格子の実証

戸川欣彦¹, 小山司², 森茂生², 高阪勇輔³, 秋光純³,
西原定文⁴, 井上克也⁴, 岸根純一郎⁵

¹大阪府立大学, ナノ科学・材料研究センター, ²大阪府立大学, 工学研究科マテリアル工学,
³青山学院大学, 理工学部物理・数理学科, ⁴広島大学, 大学院理学研究科化学専攻,
⁵放送大学, 物質・エネルギー領域

物質の対称性と物性の相関を明らかにし、その物性を機能化することは物質科学の普遍的な目標といえる。本研究では、カイラルな結晶構造を有する磁性体(カイラル磁性体)に注目し、この物質群に固有に現れるカイラルなスピン秩序の根源を解き明かし、次世代スピントロニクス機能を創出することを目指している。これは、カイラル物質が自然界のあらゆるスケールで見出され、機能性物質としてさまざまに活用されていることに触発されている。

カイラル磁性体では、異方的な交換相互作用のため、“カイラルらせん磁気秩序”と呼ばれるスピン配列がらせんにねじれた磁気状態が発現する。さらに、磁場をらせん軸に垂直な方向へ印加すると、らせん磁気秩序のねじれが周期的にほぐれ、“カイラルスピン位相ソリトン格子(カイラル磁気ソリトン格子: CSL)”と呼ばれる非線形な磁気秩序が現れることが理論的に予言されている。重要なことに、これらの磁気秩序はスピン位相のねじれが凝縮した巨視的な量子位相秩序であり、巨視的位相秩序に特有な物性を用いたスピントロニクスなどへの応用が期待される。しかしながら、現時点でこれらの物性の詳細は実験的にほとんど明らかにされておらず、学術的かつ応用的にとっても興味深い。

本研究では、カイラル磁性体におけるカイラル磁気秩序の全貌を解明することを目指し、電子顕微鏡法(低温ローレンツ法と電子線小角散乱法)に基づく微視的解析を進めている。ここで喚起すべきは、“らせん磁気秩序”は周期の狭い 180° ストライプ強磁性磁区と似通った磁気構造を示すことである。カイラリティを含め、これらの磁気構造の実験的同定には慎重を期すべきである。

我々は、電子線を用いた実空間および逆空間における多角的な(微視的かつ定量的な)解析により、カイラル磁性結晶 CrNb_3S_6 において 48 nm の周期を有する“カイラルらせん磁気秩序構造”が存在することを実証することに成功した[1]。さらに、らせん軸に垂直に比較的弱い磁場($\sim 0.1\text{T}$)を印加することにより、“カイラルらせん磁気秩序構造”が連続的に“カイラル磁気ソリトン格子”に遷移することを世界で初めて実験的に見出した[1]。特筆すべきことに、カイラルソリトン格子の周期は磁場を用いて可逆に連続的に変えることができる。また、これらのカイラル磁気秩序は極めて安定、強靱であり、試料全域に渡り一様に現れることが明らかになった。これらの特性はカイラル磁気秩序がカイラル結晶構造により保護された巨視的スピン位相秩序であることに由来している。本講演では、「カイラルソリトン格子」の詳細を報告し、その物性の可能性について議論したい。

[1] Y. Togawa, T. Koyama, K. Takayanagi, S. Mori, Y. Kousaka, J. Akimitsu, S. Nishihara, K. Inoue, A. S. Ovchinnikov, and J. Kishine, Phys. Rev. Lett. **108**, 107202 (2012).

無機カイラル磁性体 CsCuCl₃ の結晶学的カイラリティの 制御可能な合成手法の確立

高阪勇輔¹, 秋光純¹, 井上克也²

¹ 青山学院大学, 理工学部,

² 広島大学, 大学院理学研究科

タンパク質、アミノ酸、DNA などの分子構造は全て片方のカイラリティで構成されており、カイラリティという概念は有機化学の分野では大変重要な研究対象である。また、磁性研究において、らせん磁性体は右巻きもしくは左巻きのスピン配列を取ることで、異なるカイラリティのスピン構造として定義される。一般的に、らせん磁気構造の右巻きもしくは左巻きの磁区のみを自発的に生成することは、交換相互作用のみではエネルギー的に困難である。しかし、カイラルな結晶構造を有する物質においては、交換相互作用と Dzyaloshinskii-Moriya (D M) 相互作用が拮抗することによりこの縮退が解け、片巻きのみの単一磁区を有するカイラルらせん磁気構造が自発的に生成される。しかし、結晶構造のカイラリティ制御は極めて困難であることがその検証を困難にしている。例えば、MnSi は左手系のカイラルな結晶構造を形成するが、逆に右手系の結晶構造を有する試料を得ることが出来ない。また、MnSi 以外のほぼ全ての無機化合物では試料内に左右のカイラリティドメインが混在したラセミ双晶が形成される。つまり、通常の合成手法で得られた試料による物性測定では左右が平均化された結果しか得ることが出来ない。

本講演において、我々は無機カイラル磁性体 CsCuCl₃ の結晶構造のカイラリティを単一にする新規合成手法について報告する。本物質は、カイラルな結晶構造を有し、10 K でらせん磁性を形成することが知られているが、偏極中性子回折実験ではらせん磁気構造のカイラリティについて統一的な見解が得られていない[1, 2]。その原因として、通常の単結晶育成手法では、ラセミ双晶の物質が形成されることが挙げられる。我々は無機化合物の結晶育成プロセスを見直し、水溶液を攪拌しながら結晶育成を行う育成方法によって結晶構造のカイラリティを完全に制御した単結晶育成に成功した。図 1 に従来の方法と攪拌法によって得られた試料写真を示す。従来の方法では、試料表面が凸凹になるが、水溶液の攪拌を行った場合、試料表面が平らになる。これは単結晶育成において 1 次結晶核が生成された後、溶媒を攪拌することで他の結晶核と結合せずに結晶成長が行われるためであると考えられる。本講演では、新規結晶育成手法の詳細を報告する。

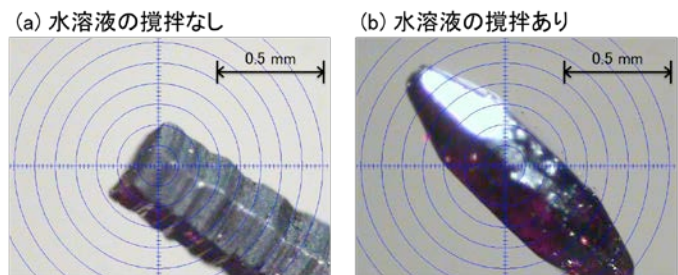


図 1 攪拌法の有無による単結晶試料の外形の違い

[1] K. Adachi *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. 49, 545 (1980).

[2] V. Plakhty *et al.*, Physica B 385-386, 288 (2006).

分子性導体における低次元揺らぎの織り成す多様なスピン状態

妹尾仁嗣^{1,2}

¹理化学研究所, 基幹研究所,

²JST, CREST

分子が構成要素となって形成される「分子性結晶」、その中でも電気伝導キャリアが存在する「分子性導体」の理論的研究を行っている[1]。これらの分子性導体は電子相関効果により局在・非局在の「きわ」に位置することが多く、その際に磁性が顔を出すことも頻繁である。また、分子軌道の異方性を反映し、低次元揺らぎがそのスピン状態に影響を及ぼし、その結果多様な電子・スピン状態が共存や競合を示す。本発表では、そのなかで公募研究において取り上げる擬 1 次元物質系のいくつかについて紹介し、これまで実験的に測ることのできなかつた系における未解決の問題を指摘したい。

[1] レビューとして、H. Seo, C. Hotta, H. Fukuyama, Chem. Rev. **104** (2004) 5005; H. Seo, J. Merino, H. Yoshioka, M. O gata, J. P hys. S oc. J pn. **75** (2006) 051009; H. Y oshioka, Y . Otsuka, H. Seo, Crystals **2** (2012) 996.

ミュオンと核プローブの相補利用による磁性積層膜の 深さプロファイル探査

壬生 攻

名古屋工業大学, 大学院工学研究科

最近のナノテクノロジーやスピントロニクス発展に伴い、ナノメートルサイズの薄膜や微小構造体の研究が大いに活性化されつつあり、ナノスケール物質における局所電子状態の測定ニーズはますます大きなものになっている。しかしながら、物質や薄膜の表面からの深さに依存した電子状態や、深く埋もれた場所に位置する界面の電子状態を実験的にみることは現状ではそれほど容易ではなく、ミュオンや原子核などマイクロなプローブを用いた測定法の発展が大いに期待される場所である。

我々の研究グループでは、これまで、原子核によるガンマ線の共鳴吸収スペクトルから核を取り巻く電子状態を探ることができるメスバウアー分光法を利用して、薄膜や積層膜の深さに依存した磁性や界面の磁性の研究を進めてきた。メスバウアー分光法を単結晶基板上に作製された薄膜試料やナノ構造体試料に適用するのに際しては、いわゆる散乱配置での測定が不可欠であるが、通常の実験室レベルで用いられる密封放射線源とガス比例計数管を用いた内部転換電子検出法では、試料環境に対する制約のため低温や磁場中・電場中など特殊環境下での測定がそれほど容易ではなく、また界面の研究などに際して一定のシグナルを得るのに相当の測定時間を必要とする。これらの問題を解決する測定手段として、放射光核共鳴散乱法(放射光メスバウアー分光法)の利用が有望になっており、現在 SPring-8 にて薄膜試料への適用のための基礎研究が進められている。

一方、超低速ミュオンおよびマイクロビームは、メスバウアー分光法や核共鳴散乱法が不得意とする測定、すなわち、メスバウアー核を含まない試料の測定、核プローブの深さ選択的ドーブが不可能な試料の深さプロファイルの測定、核とは異なる位置での局所情報の測定、薄膜面内 2 次元プロファイルの測定、測定スポットの絞り込みによる面内不均一性の影響を回避した深さプロファイル測定、比較的短時間での測定、動的挙動の測定などを可能にする魅力を秘めている。したがって、ミュオンと核プローブの相補利用によって、単独実験では得られない多角的な成果が得られるものと期待される。

本講演では、当研究グループにてこれまでメスバウアー分光法や放射光核共鳴散乱法を用いて行われてきた、ホイスラー合金系積層膜、Cr 系積層膜、酸化鉄系積層膜などを対象とした研究結果を紹介するとともに、今後のミュオンを用いた相補実験についての提案を行う。

なお、今回紹介予定の研究は、瀬戸誠氏(京都大学)、三井隆也氏、武田全康氏(日本原子力研究開発機構)、依田芳卓氏(高輝度光科学研究センター)、喜多英治氏、柳原英人氏(筑波大学)、エディ・スハルヤディ氏、田中雅章氏(名古屋工業大学)らの協力によって行われたものである。ここに感謝の意を表す。

酸化物ヘテロ構造を利用して擬二次元化した ペロブスカイト Ni 酸化物における新奇絶縁体状態

坂井延寿¹, 玉光雅智², 吉松公平², 堀場弘司², 尾嶋正治², 組頭広志^{1,3}

¹ 高エネルギー加速器研究機構物質構造科学研究所&構造物性センター

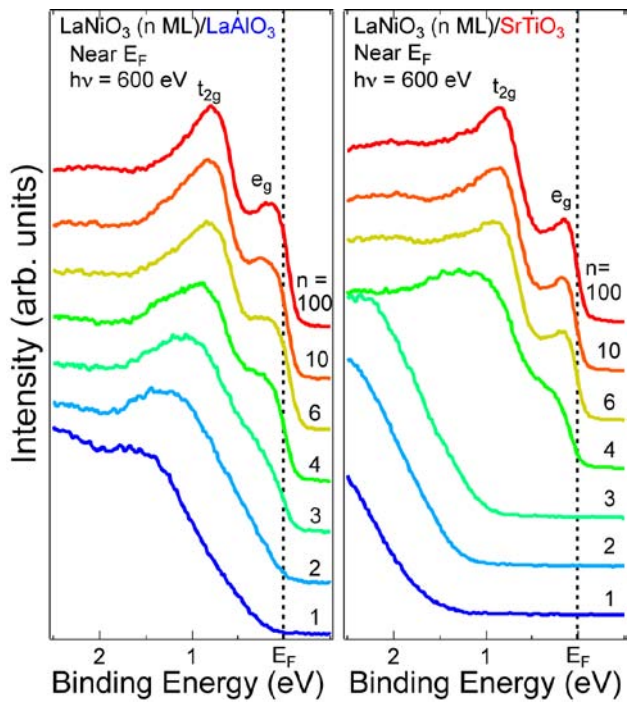
² 東京大学大学院工学系研究科

³ JST さきがけ

近年、酸化物薄膜作製技術の向上を端緒として、強相関酸化物においても原子レベルで平坦な表面および界面を持つ薄膜や超格子の作製が可能になっている。これに伴い、界面における電氣的・磁氣的相互作用や量子井戸構造における量子化を利用して、バルクでは発現しない物性を探索する試みが精力的に行われている。典型的な常磁性金属である LaNiO_3 においても、数分子層程度の薄膜や超格子構造では、磁気秩序を伴った新奇な絶縁体状態が発現することが報告されている [1,2]。この擬二次元化された電子状態は、界面における極性不連続性の有無とそれに伴う界面電荷移動に対して強く影響を受けると考えられる。そこで本研究では、 LaAlO_3 (LAO) 基板上(極性/極性界面)と SrTiO_3 (STO) 基板上(極性/非極性界面)に堆積した LNO デジタル薄膜の *in situ* 光電子分光および X 線吸収分光 (XAS) を行い、LNO 薄膜の電子状態における極性不連続性の影響を明らかにすることを目的とした。

図1に LNO/LAO および LNO/STO のフェルミ準位近傍における光電子スペクトルを示す。LNO/LAO (極性/極性界面) では、膜厚の減少と共にフェルミ準位上の状態密度が徐々に減少し、2 ML 以下で絶縁化する。一方で、LNO/STO (極性/非極性界面) では、3-4 ML を境界として価電子帯上端が不連続に約 1.2 eV シフトし、絶縁化する。このように、界面における極性不連続性の有無によって絶縁化の様子が全く異なっていることが明らかになった。また、XAS を用いて界面での電荷移動の有無を検証した結果、LNO/STO 界面(極性/非極性界面)において Ni の価数が 3 価から 2 価へと変化していることが明らかになった。

以上の結果から、界面における極性不連続性に由来する電荷移動が LNO 極薄膜領域での絶縁化に重要な役割を果たしていると考えられる。



[1] R. S cherwitzl, *et al.*, P phys. Re v. Lett. **106**, 246403 (2011).
[2] A. V. Boris, *et al.*, Science **332**, 937 (2011).

図1: LAO および STO 基板上に作製した LNO 薄膜における光電子スペクトルの膜厚依存性

深さ分解 X 線吸収分光法による磁性薄膜の表面・界面の観察

雨宮健太, 酒巻真粧子

高エネルギー加速器研究機構, 物質構造科学研究所

磁性薄膜においては、その表面・界面が膜全体の性質に対して極めて重要な役割を果たすことがしばしばある。例えば、基板の上に成長する薄膜が、界面における格子定数のミスマッチからバルクとは全く異なる成長様式を示したり、磁性薄膜の磁化容易軸が表面への分子の吸着によって大きく変化したりすることは、しばしば報告されている。特に最近では、いわゆるスピントロニクス技術の発展に伴い、強磁性/絶縁体/強磁性といった多層膜構造におけるトンネル磁気抵抗効果を利用した磁気ヘッドや磁気ランダムアクセスメモリが開発され、薄膜の界面における磁気構造がますます注目されている。このような薄膜の磁性を研究するにあたって、X 線吸収分光(XAFS)法は、スピン磁気モーメントと軌道磁気モーメントを元素ごとに決定できる上に、原子間距離や配位数といった構造情報も得られる強力な手法である。しかしながら、XAFS 法は基本的には X 線の照射される領域すべてからの情報の平均値を観測しており、薄膜の表面・界面の状態を直接観測することはできない。そこで我々は、ここ数年にわたって原子層レベルの分解能をもつ「深さ分解 XAFS 法」という手法を開発し[1,2], 多くの磁性薄膜に適用してきた[1-4]。

当日は、深さ分解 XAFS 法の原理を簡単に説明したのちに、最近の研究の例として、Ni 薄膜上に酸素原子を吸着させた際の表面 1 層の Ni の化学状態および磁気構造の研究(図 1) [3] や、Fe/Ni 多層膜における磁気異方性の起源を、元素選択的かつ層分解して解明した研究[4]を紹介する。また、今後深さ分解分析が重要になると考えられる試料として、Ga イオン照射による Pt/Co/Pt 薄膜の磁気異方性変化に関する研究結果[5]も示したい。

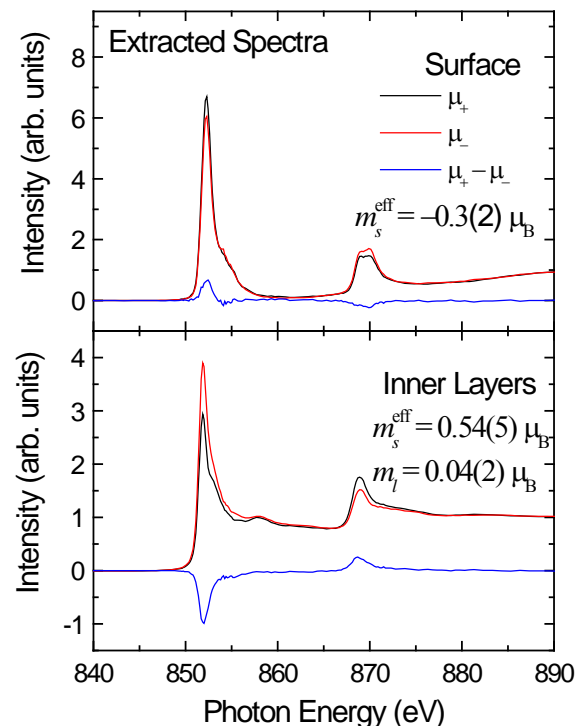


図 1 O/Ni(5.5 ML)/Cu(100)に対して深さ分解 XAFS 法で得られた、表面 1 層および内部層のスペクトルと磁気モーメント。

- [1] K. Amemiya, et al., Appl. Phys. Lett. 84 (2004) 936.
- [2] K. Amemiya, Phys. Chem. Chem. Phys. 14 (2012) 10477.
- [3] K. Amemiya and M. Sakamaki, Appl. Phys. Lett. 98 (2011) 012501.
- [4] M. Sakamaki and K. Amemiya, Appl. Phys. Express 4 (2011) 073002.
- [5] M. Sakamaki et al., Phys. Rev. B 86 (2012) 024418.

ケルビンプローブによる界面評価

橋詰富博^{1,2,3}、平家誠嗣¹、諏訪雄二¹、久保田俊介²、井上遥介²、石田貴士²、
一杉太郎³

日立中研¹、東工大²、東北大 WPI-AIMR³

有機薄膜トランジスタ（有機 T F T）では、電極－有機半導体、ゲート絶縁体－有機半導体、有機半導体の結晶粒界などの界面が存在して、有機 T F T の性能に大きな影響を及ぼしている。我々は、走査ケルビンプローブ顕微鏡（ケルビンプローブ）を用いて試料表面電位分布を計測することによりこれらの界面評価を行ってきた。また、最近になり、ペロブスカイトの $\text{LaAlO}_3 / \text{SrTiO}_3$ の良好な界面では、絶縁物－絶縁物界面に単層に近い金属層が形成されると報告されていて[1]、異種材料の界面評価が重要な研究課題となっている。

走査トンネル顕微鏡 (STM) では、試料表面の原子レベルの電子状態をマッピングできる (STS) が、埋もれた界面の STS は、一般的には計測できない。ケルビンプローブでは、導電性探針と試料との間でキャパシタを形成することにより、試料条件によっては界面における電位分布を計測できる。

我々は、有機半導体としてペンタセンを真空蒸着した T F T を調整してケルビンプローブにより観察することにより、ペンタセンの粒界において表面電位が階段状に変化していることを明らかにした。この粒界における接触抵抗による見かけの電界移動度の劣化は、T F T チャンネル領域におけるペンタセン結晶粒の大きさが大きいほど軽減できることがわかった。また、電極－有機半導体界面で観察された接触抵抗は、電極の金表面に Pentafluorobenzethiol (PFBT) の自己組織化単層膜 (SAM) を形成することにより著しく軽減できることがわかり、金表面での PFBT 密度が 84% のとき、見かけの移動度は最大で $1.48 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ に改善できた。

一方、ペロブスカイトのチタン酸ストロンチウム (SrTiO_3) では超伝導、誘電性、構造相転移などが精力的に調べられている。近年では、酸化物薄膜基板としての重要性も増し、その重要性はますます高まっている。2004 年に Ohtomo と Hwang は、 $\text{LaAlO}_3 / \text{SrTiO}_3$ の良好な界面を調製して、界面の SrTiO_3 組成を TiO_2 または SrO に制御、即ち、 $(\text{LaO})^+ / (\text{TiO}_2)^0$ または $(\text{AlO}_2)^- / (\text{SrO})^0$ に制御して、p 型が期待される $(\text{AlO}_2)^- / (\text{SrO})^0$ 界面は絶縁体的で、n 型の $(\text{LaO})^+ / (\text{TiO}_2)^0$ 界面は金属的（ホール移動度 $10000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ ）であることを報告した[1]。また、膜厚が 26nm の場合は 10K 以下の温度でシート抵抗は小さく（ $\sim 0.01 \text{ m}\Omega / \square$ ）、膜厚が 6nm の場合は、アニールするときの酸素雰囲気 ($1 \times 10^{-6} \text{ Torr}$) 条件により 10K 以下の温度でシート抵抗を小さくできる（ $\sim 0.01 \text{ m}\Omega / \square$ ）ことなどを報告している。絶縁物－絶縁物界面に単層に近い金属層が形成されていると考えられ、このような異種材料の界面評価が、今後、ますます重要になると期待される。

[1] A. Ohtomo and H. Y. Hwang, Nature, **427**, 423 (2004).

半導体における埋もれた界面構造とそのデバイス特性への影響

竹田美和

名古屋大学工学研究科

半導体デバイスの殆どは、埋もれた活性層をキャリアが走り、また再結合により光を発生して動作する。その構造は、結晶成長によって形成され、成長炉より取り出した時点で、デバイスの基本構造は出来上がっている。デバイス構造をそのまま（非破壊で）埋もれた活性層（界面で挟まれている）が実際にはどのようなになっているかを知りたく、X線による測定・解析手法を追及してきた。

今回、機会を頂いたので、その一端をご紹介したい。下記の論文をご参照いただくと幸いである。

- [1] "Study on buried interfaces in semiconductor heterostructures by X-ray reflectivity"(invited)
Y. Takeda and M. Tabuchi
Transactions of the Materials Research Society of Japan, Vol. 32, pp. 187-192 (2007).
- [2] "The importance to reveal buried interfaces in the semiconductor heterostructure devices" (invited)
Y. Takeda and M. Tabuchi
Journal of Physics: Conference Series, Vol. 83, Article No. 012002 (2007).
- [3] "X-ray CTR scattering measurement to investigate the formation process of InP/GaInAs interface"
M. Tabuchi, A. Mori, Y. Ohtake, and Y. Takeda
Journal of Physics: Conference Series, Vol. 83, Article No. 012031 (2007).
- [4] "Buried Heterostructure of Nitride Semiconductors Revealed by Laboratory Level X-ray CTR Scattering"
Y. Takeda, Y. Maeda, T. Mizuno and M. Tabuchi
Transactions of the Materials Research Society of Japan, Vol. 33, pp. 547-550 (2008).
- [5] "Measurement of X-ray CTR Signals from GaN/GaInN/GaN at High Temperatures Using Newly Developed Measurement System"
Y. Takeda, T. Mizuno, H. Kamiya, K. Ninoi and M. Tabuchi
Transactions of the Materials Research Society of Japan, Vol. 34, No. 4, pp. 585-588 (2009).
- [6] "Ga and As composition profiles in InP/GaInAs/InP heterostructures-X-ray CTR scattering and cross-sectional STM measurements"
Yoshikazu Takeda, Masao Tabuchi and Arao Nakamura
Journal of Physics: Condensed Matter, Vol. 22, Art. #474011 (2010).
- [7] "X-ray characterization of GaN and related materials at growth temperatures–system design and measurements"
Y. Takeda, K. Ninoi, G. Ju, H. Kamiya, T. Mizuno, S. Fuchi and M. Tabuchi
IOP Conf. Series: Materials Science and Engineering, Vol. 24, Art. No. 012002 (2011).

超高輝度・高スピン偏極度電子源の開発

金 秀光¹, 竹田美和²

¹名古屋大学 高等研究院 ²科学技術交流財団、シンクロtron光センター

近年、スピントロニクスや高集積磁気記憶素子の研究開発が活発になり、磁区構造が観察可能なスピン偏極低速電子顕微鏡(SPLEEM)が注目されつつある。SPLEEM の高性能化には電子ビームの高輝度と高スピン偏極度が不可欠である。

輝度の向上は、励起光の集光により、電子ビームの生成面積を小さくすることで実現(図1)できる。従来、表面照射型電子源では、励起光をフォトカソードの表面に照射し、電子も表面から取り出す構造であり、この構造ではレンズにより励起光の集光が困難で、高輝度化が不可能であった。そこで、励起光の裏面照射方法を用いた。この構造では焦点距離の短いレンズを使って、励起光を1~2 μmまで収束することができ、電子ビームの高輝度化が可能である。

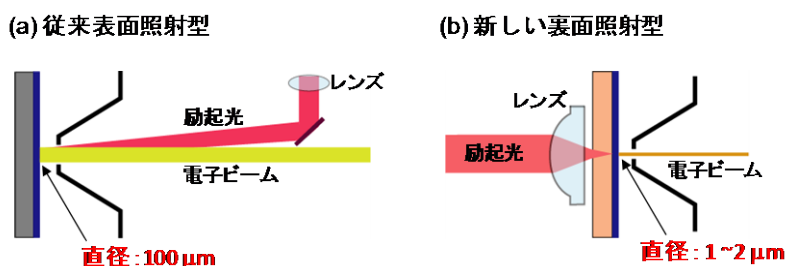


図1 従来型と新しいフォトカソードのレーザー照射方法

我々のグループでは、GaAs/GaAsP 歪み超格子構造を GaAs 基板上に作製して、励起光表面照射により、92%の世界最高スピン偏極度を持つ電子ビームの生成に成功している[1]。GaAs/GaAsP 歪み超格子構造をベースに、裏面照射型フォトカソードを開発するために、従来の GaAs 基板(バンドギャップ:1.42 eV)の代わりに励起光(エネルギー:1.6 eV)透過可能な GaP 基板(バンドギャップ:2.26 eV)を用いた。

試料構造を図2に示す。GaPの格子定数はGaAsのそれより小さく、GaP基板上にGaAs基板上と同じ結晶性の超格子構造が得られにくい。この問題を解決するために GaP 基板上に中間層(GaAs 或いは AlGaAs)を導入し、その上に超格子構造の作製を行った。その結果、表面照射型フォトカソードと同程度の 90%の高スピン偏極度が得られた。さらに裏面照射により励起光の直径は 1.3 μm と小さくなり、輝度は $1.3 \times 10^7 \text{ A} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sr}^{-1}$ までに向上した[2]。本研究で開発したフォトカソードは、現在市販されている SPLEEM に利用されている表面照射型 GaAs バルクフォトカソードに比べ、輝度 10000 倍、スピン偏極度 3 倍の大改善である。

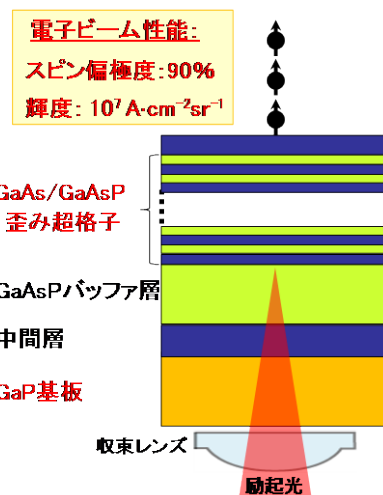


図2 裏面照射型 GaAs/GaAsP 歪み超格子フォトカソード

[1] T. Nakanishi, Proceeding of LINAC, (2002) 813.

[2] X.G. Jin *et al.*, APEX 1, (2008) 045002.

超低速ミュオンによる熱スピントロニクスデバイスの研究

伊藤 孝¹

¹ 日本原子力研究開発機構, 先端基礎研究センター

金属や半導体などのキャリアをもつ物質に温度勾配を印加すると、ゼーベック効果により起電力が生じる。昨今、クリーンなエネルギー源を求める動きが高まるにつれ、ゼーベック効果を応用した熱電発電に注目が集まりつつある。しかし、この熱電交換過程にはジュール熱の発生等の原理上避けられないエネルギー損失が伴うため、熱電交換効率には限界がある。このため、十分な出力を得るには何百もの小さな素子を連結してモジュール化する必要がある、この加工に膨大なコストがかかることから実際に熱電発電に使われる機会のごく限られてきた。

絶縁体スピンゼーベック熱電交換素子は、この状況を一変させる可能性を秘めた全く新しい動作原理「スピンゼーベック効果」に基づくデバイスである。ゼーベック効果が温度勾配から電荷の流れ＝電流を生み出すのに対して、スピンゼーベック効果は電子のスピン角運動量の流れ＝スピン流を生み出す。この現象は強磁性金属において初めて見出されたが、後にフェリ磁性絶縁体 $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ (YIG)においても生じ得ることが明らかになった[1,2]。YIGにおいてスピン角運動量の伝搬を担うのはスピン波であると考えられており、キャリアフリーであることからジュール熱等によってエネルギーを失うことなくスピン情報を伝達できるという極めて優れた特徴がある。この YIG にスピン流を電流に変換する機能をもつ Pt 薄膜を組み合わせたものが絶縁体スピンゼーベック熱電交換素子である。従来型の熱電交換素子とは異なり、単純に面積を増大させるだけで出力をかせぐことができるので、コストを抑えて高出力化できる可能性がある。また、施工の自由度が高く、熱源を Pt/YIG 積層膜でコーティングするといった使い方も可能であり、実用化が大いに期待される[3]。

しかしながら、この絶縁体スピンゼーベック熱電交換素子はまだ多くの点において検証の余地を残している。第一に、これまでの研究が Pt に生じる起電力を測定することに専ら頼ってきたため、温度勾配印加から電圧発生までの中間過程に関する実験的知見が完全に抜け落ちていることが挙げられる。電圧発生までは、(1)温度勾配により YIG 中にスピン波媒介スピン流が生じ、(2)Pt/YIG 界面において Pt 薄膜中にスピン流が注入され、(3)逆スピンホール効果によりスピン流が電流に変換される、という 3 つの過程が各層および界面において起こっていると考えられる。超低速ミュオンを使えば、それぞれの階層において何が起こっているのか、微視的な観点から調べるのが可能になると期待される。特に、一連の過程にスピン流が介在していることを直接的に証明することは非常に重要であり、超低速ミュオンを用いてこの証拠を得たいと考えている。講演では現状における具体的な実験計画についてご紹介したい。

[1] K. Uchida *et al.*, Nature **455**, 778 (2008).

[2] K. Uchida *et al.*, Nature Mater. **9**, 894 (2010).

[3] A. Kirihara *et al.*, Nature Mater. **17**, 686 (2012).

生化学反応に伴う電子伝達過程の可視化への挑戦

新村信雄¹, 田中伊知朗²

¹茨城大学フロンティア応用原子科学研究センター,

²茨城大学工学部

我々は中性子回折法で生化学反応に関与するプロトン（殆どの生化学反応の主役）を観測し、生化学反応機構を原子レベルで解明する事を行って来た。回折法の良さは結晶の周期性を利用し、時間空間的に平均化して原子位置情報を **enhance** させていた。回折法の欠点は、分子全体にわたって動いているものは結果的には観測出来ないことである。この欠点を超低速ミュオンで補うことで、生化学反応に伴う電子伝達過程を可視化することを検討してみた。

典型的なセリンプロテアーゼであるトリプシンは牛膵臓由来トリプシン阻害剤 (BPTI) と複合体を形成する。BPTI が阻害効果を示す機構は、複合体を形成しながらトリプシンの加水分解反応を起こし、且つその逆反応を交互に起こすことで、反応生成物を固定し、安定化が保たれている。(図1) 中性子回折法でこのトリプシン-BPTI 複合体の構造解析を行ったところ、加水分解反応に関わる水分子は一定場所に固定されていないので観測できなかった。しかし、トリプシン-BPTI 複合体結晶を重水に **soak** すると、加水分解をおこした箇所 H/D 交換が観測され、加水分解反応が起きていることは実証された[1]が、その反応プロセスの詳細は系が動的であるため多くの類推に頼らざるを得なかった。反応にはプロトン移動が繰り返されており、同時に電子移動が生じている。電子移動と中性子で観測された H/D 交換反応はカップルしている。この電子移動の詳細を超低速ミュオンで観測できれば、中性子回折で得られた結果と併せて酵素反応の機構解明に繋げられる。

実験には中性子回折実験に用いた単結晶を用いる。電子伝達に関与する原子は結晶表面から 1-10nm に限定でき、単結晶試料を用いることで電子伝達を方向を規定できる。また、MIP を基質にしたトリプシン-MIP 複合体はトリプシンの反応性が止められており、プロトン移動や電子伝達は生じていないので、今回の超低速ミュオン実験でのコントロールに使える。

[1] K.Kawamura, T.Yamada, K.Kurihara, T.Tamada, R.Kuroki, I.Tanaka, H.Takahashi, N. Niimura :Acta Cryst. (2011) D67, 140-148

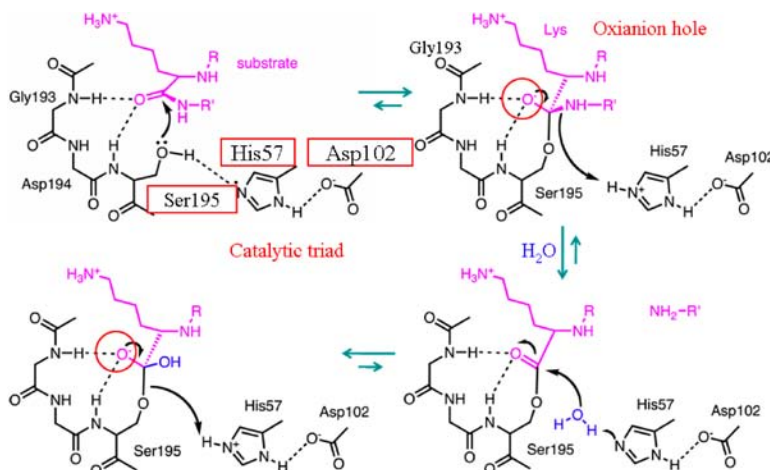


図1 トリプシンの反応機構

ミュオニウム励起用 Lyman- α 光源の開発：1062nm ファイバレーザおよび広帯域 821nm 種光光源（オメガ 2 シーダ）

岡村幸太郎¹，大石裕²，宮崎洸治³，斎藤徳人³，和田智之³，岩崎雅彦²

¹株式会社メガオプト，

²理化学研究所，仁科加速器研究センター岩崎先端中間子研究室，

³理化学研究所，基幹研光グリーンテクノロジー特別研究ユニット

J-PARC ミュオン U-line ではレーザー共鳴イオン化実施のために 122nm ライマン α 光が必要とされている。これを Kr ガス中での 4 波混合により生成するために、同期のとれたナノ秒 212.556nm DUV 光(以下オメガ 1)及び 821nm 近赤外光(以下オメガ 2)が必要とされている。弊社は理研と共同でこの 2 波長光源の開発を行っている。光源の構成としては、オメガ 1 については全固体レーザーシステムによる基本波 1062.78nm 光発生及びその 5 倍波発生により得る。オメガ 2 については半導体レーザーよりの 821nm 光を種光としてオメガ 1 発生系から分岐した 531.39nm 光(二倍波)をポンプ光とした光パラメトリック増幅により得る。

オメガ 1 基本波発生は、分布帰還(DFB)半導体レーザー出力を種光とする。これをイットリウム添加 ファイバ増幅器にて増幅後、変調器にてナノ秒パルスに切り出して必要なパルス幅及び狭線幅を得る。更にファイバ増幅器・大モード面積(LMA)ファイバ増幅器で増幅、空間光として出力する。ここまでをファイバレーザシステムと呼ぶ。この出力をネオジウム添加 イットリウム・スカンジウム・アルミニウム・ガーネット結晶(Nd:YSAG)を用いた全固体アンプシステム[2]で 5-6 桁の増幅を行い 1J 級の 1062.78nm 光を得る。この基本波より、LBO 結晶中での 2 倍波発生、CLBO 結晶中で 4 倍波発生、CLBO 結晶中での基本波との和周波発生を行うことで 5 倍波として 212.556nm 光を得る。

オメガ 2 については帯域 230GHz、オメガ 1 との同期、オメガ 1 と共に高ビーム品質が必要とされている。このため、第一に準 CW 駆動の横マルチモードのブロードエリア半導体レーザーからの線幅 2nm 程度の出力をソリッドエタロンにて帯域制限をかけ、シングルモード光ファイバに結合することにより 821nm 種光(帯域 230GHz、25Hz、100 マイクロ秒幅)を得る。ここまでをオメガ 2 シーダと呼ぶ。この種光を、KTP 結晶を用いた光パラメトリック増幅により多段増幅[3]する。ポンプ光としてオメガ 1 発生系の 2 倍波を分岐して用いることにより、オメガ 1 とピコ秒オーダーの精度で同期したオメガ 2 出力が得られる。シングルモードファイバ出力を増幅していくため高いビーム品質が得られる。

本発表では上記オメガ 1 及びオメガ 2 レーザーシステムのうち、ファイバレーザシステム及びオメガ 2 シーダについて現状報告を行う。

[1] Y. Miyake *et al.*, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B : 95 (1995) 265-275.

[2] Y. Oishi *et al.*, this meeting.

[3] K. Miyazaki *et al.*, this meeting.

ミュオニウム励起用 Lyman- α 光源の開発：1062.78nm 全固体増幅器および波長変換

大石 裕², 岡村幸太郎³, 宮崎洗治¹, 斎藤徳人¹, Oleg A. Louchev¹, 岩崎雅彦², 和田智之^{1,3}

¹理化学研究所 光グリーンテクノロジー特別研究ユニット

²理化学研究所 岩崎先端中間子研究室

³株式会社メガオプト

超低速ミュオンの生成にはレーザー共鳴イオン化解離法が有効な方法であり、我々A04 班はそこで必要とされる高輝度なライマン α 共鳴真空紫外コヒーレント光源の開発に取り組んでいる。

Lyman- α 光の発生は、Kr ガスの $4s^6$ および $4p^5-5p[1/2,0]$ のエネルギー順位差を利用した二光子共鳴四波混合を利用する。オメガ1 と呼ばれる二光子共鳴励起光 (212.556 nm) の発生システム概要を図1 に示す。波長制御半導体レーザー光を全固体増幅器により1 J程度に増幅した後、その半分を非線形光学結晶により周波数上昇変換することで得る。一方でオメガ2 と呼ばれる混合光 (820.43 nm) は増幅された残りの半分を励起光として、波長制御半導体レーザー光とのパラメトリック増幅によって得る。全固体増幅器は1062 nm 光の増幅が必要であり、1062 nm 付近に蛍光ピークが報告されている Nd:Y₃Sc₂Al₃O₁₂ (Nd:YSAG) を利得媒質として選択した[1]。今回、増幅器より一定の出力が得られた現状を報告する。

全固体増幅器は再生増幅と中間・最終の3段の増幅器により構成されている。波長制御半導体レーザーとその後のファイバアンプから得られるパルス (10 μ J, 100kHz, 1062.78 nm) は Nd:YSAG 再生増幅器内部で1.1 mJ まで増幅された。再生増幅器は加速器からの同期信号を受けることで25Hzでの動作が可能であり、そのタイミングジッタは数百ピコ秒以下に制御が可能である。再生増幅器からの出力はビーム径を拡大して中間増幅器へ入射した。中間増幅器は Nd:YSAG 結晶 (ϕ 4 mm, 80 mmL) を6個の LD で励起する増幅チャンバー2台で構成され、それぞれのチャンバーを往復することで合計4回利得領域を透過させた。LD へ印加する電流値を変化させた時、増幅チャンバー1回透過後の増幅パルスの出力特性を図2 に示す。1回の透過にておよそ3倍の増幅が得られることがわかり、中間増幅器でおよそ80 mJ の増幅パルスを得た。出力された増幅光の波長や空間ビーム特性、非線形光学結晶による212.556 nm 光の発生に関しては講演にて詳細を報告する予定である。

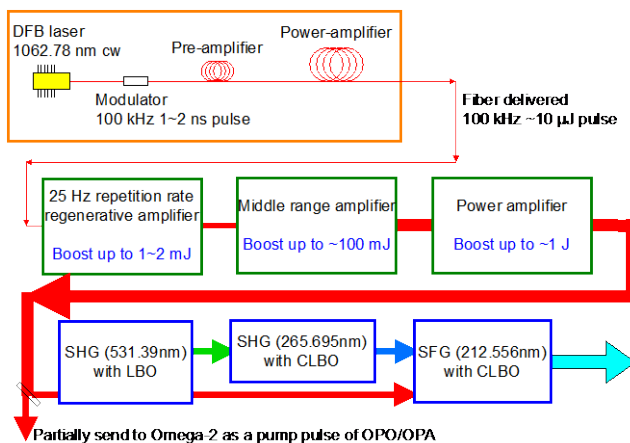


図1 オメガ1 システム概要

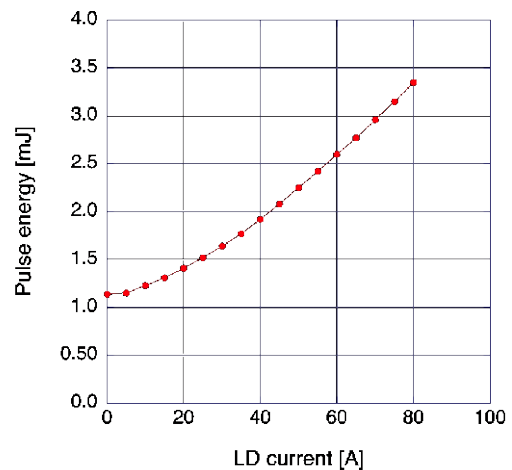


図2 中間増幅器チャンバーの増幅特性

[1] Y. Sato et. al., Opt. Mat. 29, 1277 (2007).

ミュオニウム励起用ライマン α 光源の開発： 波長可変 820.65 nm システム (OMEGA2) & ライマン α シフター

宮崎洗治¹, 斎藤徳人¹, 岡村幸太郎², 大石裕³,
Oleg Louchev¹, 横山幸司³, 岩崎雅彦³, 和田智之¹

¹ 理化学研究所 基幹研究所 光グリーンテクノロジー特別研究ユニット,

² 株式会社メガオプト

³ 理化学研究所 仁科加速器研究センター 岩崎先端中間子研究室

2 光子共鳴 4 波混合において、 ω_1 および ω_2 の 2 光波を励起光として、高い効率で、かつ安定にライマン α 共鳴放射線を発生させるためには、2 光波のパルス幅を同一にし、かつパルス間のジッターをなくす必要がある。そこで我々は、1062.78 nm パルスを 1 J/pulse まで増幅した後、2 方向に分離し、分離した一方を第 2 高調波発生によって 531.39 nm にシフトさせて、さらにこれを励起光とした光パラメトリック発生および増幅を行い、820.649 nm 光を出力する。このときシグナル光の波長が 820.649 nm、アイドラー光の波長が 1507.59 nm となる。これによって、212.556 nm と等しいパルス幅の 820.649 nm パルスを得ることができる。また、光パラメトリック増幅過程によって得られるパルスであることから、212.556 nm パルスに対してジッターのないパルス発生が可能である。遅延光学経路を設けるだけで、ジッターの生じない時間的重ねあわせが実現する。

図 1 に装置図を示す。半導体レーザーから出力された連続波の 820.649 nm 光をシード光として、光パラメトリック発生における出力パルスの波長およびスペクトル線幅を制御する。シードのスペクトル線幅はミュオニウム生成標的が常温である場合と高温である場合で異なり、常温標的、高温標的に対してそれぞれ 80GHz、230 GHz に設定する必要がある。1062.78 nm パルスを励起光として得た 531.39 nm パルスの出力エネルギーを 2 方向に分離する。そのうち 50mJ を光パラメトリック発生の励起光として用いる。発生した 820.649 nm パルスを残りの 200 m J の励起光と遅延光学系を介して同期させて光パラメトリック増幅器に入射する。光パラメトリック発生系には、KTP および LBO を用いて、820.649 nm パルス発生の実験を進めている。

また 2 光子共鳴 4 波混合を行う Kr チャンバーの製作も並行して行っている。講演では、これら OMEGA2 システムとライマン α シフターの開発状況について報告する。

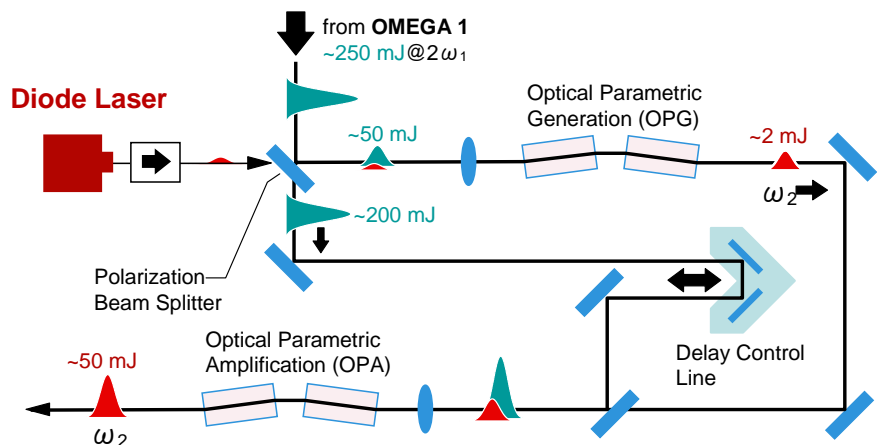


図 1 コヒーレント 820.649 nm 発生システム

RIKEN-RAL ミュオン施設からの開発報告: An injection seeded nanosecond-OPG/OPA for stable Lyman- α generation

横山 幸司¹, Pavel Bakule², Oleg Louchev³, 斎藤 徳人³, 和田 智之³,
三宅 康博⁴, 岩崎 雅彦¹

理化学研究所 仁科加速器研究センター¹,
European Light Infrastructure², 理化学研究所 基幹研究所³,
高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所⁴

RIKEN-RAL ミュオン施設ではミュオニウム(Mu)の光電離による超低速ミュオンの発生実験/開発を行なってきた。レーザーシステムは、ナノセカンド Nd:YAG レーザーを基礎とし、Mu Ly- α である 122 nm と、2P 状態から電離するための 355 nm を供給する。Ly- α 光は、希ガス原子(ここではクリプトン原子)を用いた、二光子共鳴差周波四波混合法により発生する。この手法では、ポンプ光 ω_1 (212 nm) が Kr 原子に二光子共鳴吸収され、同時にもう一つのポンプ光 ω_2 (800 nm 帯) が差周波で Ly- α 光を出力する。このように、共鳴吸収を利用することで非線形感受率の増大が期待でき、従ってエネルギーの変換効率も増大する。しかし、このように共鳴吸収を利用した場合でも、Ly- α 光への変換効率はせいぜい 10^{-4} 程度で、Mu の光電離を一定の体積で飽和させる程度のレーザー強度を得るためには、ポンプ光のエネルギー増強が必要になる。800 nm 帯の ω_2 のエネルギー増強は比較的簡単だが、 ω_1 は深紫外にあたり、大強度と安定性を実現するためには、波長変換の方法がカギを握る。さらに、Kr 原子のエネルギー準位間の遷移を利用するため、 ω_1 の線幅は非常に狭くなくてはならず、効率的な二光子吸収を行うためには、 ω_1 には Fourier 限界に近い程度の波長線幅が必要となる。現有の RIKEN-RAL ミュオン施設のレーザーシステムは、 ω_1 を狭線幅の 850 nm の第四高調波で出力する。ところが、従来の OPO (Optical Parametric Oscillator) で 850 nm を出力する場合、波長を保持するために共振器長の制御・フィードバック機構が必要で、アラインメントの難しい、非常に複雑な系になってしまう。そこで、850 nm のシングル縦モード光(CW)を出力する External Cavity Diode Laser (ECDL) をシード光源として使い、532 nm のナノセカンドパルスでシード光をパラメトリック増幅することを試みた。このようにすることで ECDL の波長安定性に加え、光学系はシングルパスの非常に単純な構造となり、得られる 850 nm の線幅も Fourier 限界近くまで狭くすることができる。そのような狭線幅出力の OPA を元に ω_1 を出力し、上述の四波混合を試みたところ、非常に安定な真空紫外光の出力を観測することができた。本講演では、我々が開発したシングル縦モード OPA を中心に、レーザーシステムの概要と開発の詳細を報告する。

レーザー誘起コヒーレンスによるライマン α 光発生の高効率化

中嶋 隆, DENG Li

京都大学, エネルギー理工学研究所

超低速ミュオニウムのイオン化や再偏極には高強度のライマン α 光源が不可欠であり、本新学術領域でも鋭意光源開発が進められているが、1970年台から始まったライマン α 光源開発の長い歴史が示すように、高強度のライマン α 光発生は決して容易ではなく、未だに決定的な効率の良い発生法は確立されていないと言うのが現状である。高効率でライマン α 光を発生できていない理由は以下に凝縮される:ライマン α 光は通常の光学レーザーで直接的に発生できないため、和周波発生や差周波発生などのような(一般的には変換効率の悪い)非線形波長変換に頼らざるを得ず、また、ライマン α 波長に対して透明な固体の非線形媒質は知られていないことから、非線形媒質も気体しか選択肢がない。

我々は今回、気体を非線形媒質という点ではこれまでに知られている様々な方法と同様ではあるが、非線形波長変換を行う媒質内に原子コヒーレンスを誘起することにより、変換効率を改善する新スキームを考案した [1]。新スキームを考案する際には、現在 A04 班で開発しているライマン α 光発生用の様々な設備のうち、なるべく多くの要素設備を流用できるよう考慮した。従って、非線形媒質としては Kr ガス、2光子励起レーザーの波長は 212.6 nm であるとした。唯一かつ最大の違いは、差周波発生を行う際に使用する 843.5 nm レーザーがブロードバンドのナノ秒ではなく、フーリエ限界ピコ秒パルスであるということと、非共鳴レーザー(Nd:YAG レーザー)を導入するという事である。この前者の仮定の結果、ピコ秒のライマン α パルスが発生する。ライマン α パルスがピコ秒であるという仮定は、我々が最近考案したミュオニウムの再偏極スキーム[2]でも用いており、また、パルスエネルギーが同一であると考えた場合には、ブロードバンドのナノ秒パルスよりフーリエ限界ピコ秒パルスの方が再偏極効率が良いという解析結果も得られている[3]。右図から明らかなように、スキーム自体には一見何の変哲もないが、非共鳴レーザーの導入により原子コヒーレンスが誘起され、変換効率が改善する。

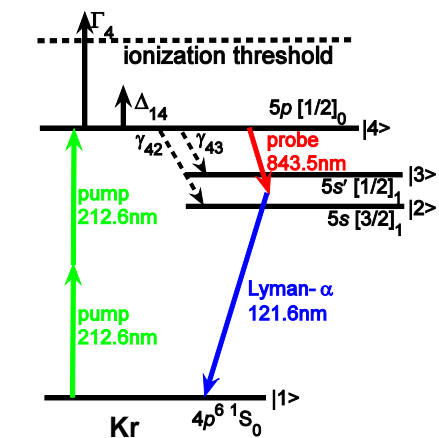


図. ライマン α 光発生スキーム

- [1] Li Deng and Takashi Nakajima, "Generation of vacuum-ultraviolet pulses with a Doppler-broadened gas utilizing high atomic coherence", Opt. Express **20**, 17566 (2012).
- [2] Takashi Nakajima, "A scheme to polarize nuclear-spin of atoms by a sequence of short laser pulses: application to the muonium", Opt. Express **18**, 27468 (2010).
- [3] Takashi Nakajima, "Spin-polarization of Doppler-broadened muoniums by the broadband nanosecond and transform-limited picosecond laser pulses", J. Opt. Soc. Am. B (in press).

超低速ミュオン線形加速器の開発

林崎規託¹, 齋藤洸一², 吉田光宏³

¹ 東京工業大学原子炉工学研究所

² 東京工業大学大学院理工学研究科

³ 高エネルギー加速器研究機構加速器研究施設

本研究は、今春採択された本領域研究の公募研究「研究項目 A01: 超低速ミュオン顕微鏡創成と極微 μSR 」に必要とされる超低速ミュオン線形加速器の開発をおこなうものであり、先行開始した $g\text{-}2/\text{EDM}$ 実験計画のための超低速ミュオン線形加速器の開発と連携しながら検討を進めている。

超低速ミュオン顕微鏡や $g\text{-}2/\text{EDM}$ 実験計画のように、ミュオンを超低速化後に再加速をおこなう超低速ミュオン加速器の先行研究は皆無である。このような状況のなか、昨年より我々は $g\text{-}2/\text{EDM}$ 実験計画用の低エネルギーミュオン加速器として、運転周波数が 324 MHz の高周波四重極線形加速器 (RFQ) と Interdigital-H (IH) 型ドリフトチューブ線形加速器 (DTL) の検討を進めてきた。

そこで本研究では、これまで検討してきた 2 種類の超低速ミュオン線形加速器のデザインを、超低速ミュオン顕微鏡に応用して研究開発をおこない、今後のビーム尖鋭化に必要とされる超低速ミュオン加速の基盤技術を開発する。また、その結果は、 $g\text{-}2/\text{EDM}$ 実験計画にもフィードバックをおこない、Made in Japan の超低速ミュオン加速技術として、スパイラル的に改良を重ねていくつもりである。

具体的な研究内容として、RFQ については、既存装置の有効利用を考慮し、J-PARC 主加速器のために製作された、負水素イオン加速用 RFQ の予備機を活用することを考え、負水素イオンの代わりにミュオンを入射・加速した場合のビーム特性を評価した。IH-DTL に関しては、これまで検討してきたデザインをベースにプロトタイプモデルを確立する。このとき、無酸素銅の一枚板から全てのドリフトチューブ電極 (DT) を立体的に削り出したセンタープレートに、半円形のサイドシェルを両側面から取り付ける構造を採用し、加速空洞の精度・性能の向上とコストダウンの両立を図る。

本領域会議では、これらの研究計画と進捗状況について報告する。

極冷ミュオンビームを用いた双極子能率の精密測定で物質の起源に迫る

齊藤 直人^{1,2},

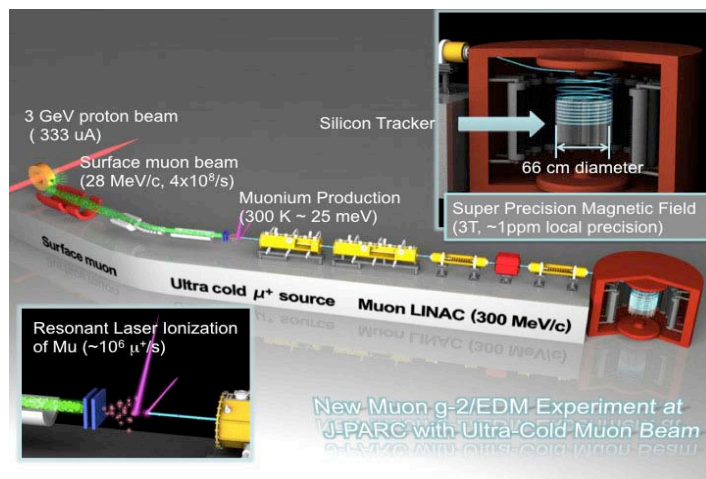
¹ 高エネルギー加速器研究機構 素粒子原子核研究所, および

² J-PARC センター

素粒子物理の標準模型は、自然界の基本構成要素と相互作用を記述し、物質の成り立ちや、初期宇宙の成り立ちをも説明する強靱な理論体系である。これまでに実験や観測で得られたデータをすべて説明し、この理論から外れる現象は、ごくわずかしき指摘されていない。ミュオンの異常磁気能率(通称 $g-2$)の実験測定値は標準模型から3標準偏差以上のズレを示しており、標準模型で説明出来ない稀少な例の一つである。とくにこのズレは、超対称性などの標準模型を超える物理の存在を示唆するものとして注目を浴びている。

我々は、超低速ミュオンビームを加速することで、従来とは全く違う手法で $g-2$ と EDM を精密に同時測定する方法を考案した[1]。この実験により $g-2$ のズレの理由を明らかに出来るだけでなく、EDM の探索が可能になるのは非常に重要な点である。というのも、EDM は時間反転対称性を破る物理量で、これは現代の素粒子物理学の枠組みでは CPT 定理を通じて CP 非保存(粒子と反粒子の非対称性)を意味する。これまで見つかっている CP 非保存現象はすべてクォークセクターで起こっている事であり、小林益川理論で説明可能である。一方、我々のすむ宇宙における物質の反物質に対する優勢は小林益川理論では説明出来ない事が知られている。つまり、他にも CP 非保存過程が存在するべきだと考えられている。これまで CP 非保存現象が見つかっていないニュートリノ、電子、ミュオンを含むレプトンセクターでの EDM 探索は、物質の起源を知る上で重要な鍵を握っていると考えられる。

J-PARC の MLF-H ラインで計画されている本実験の現状について、報告する。



[1] Conceptual Design Report は、以下のリンクからアクセス可能です。

<http://kds.kek.jp/getFile.py/access?resId=0&materialId=2&confId=8711>

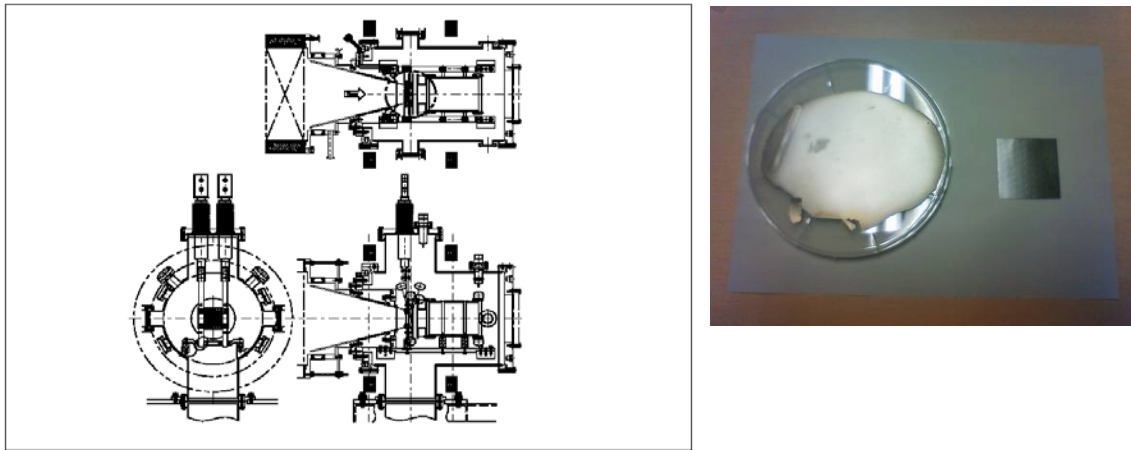
超低速ミュオンビームラインの製作

牧村俊助¹, ストラッサーパトリック¹, 長友傑¹, 池戸豊¹, 中村惇平¹, 三宅康博¹,
大久保隆治², 下村浩一郎¹, 西山樟生¹, 小林庸男¹

¹ 高エネルギー加速器研究機構, J-PARC センターミュオンセクション,

² 高エネルギー加速器研究機構, 機械工学センター

A01 班では超低速ミュオン発生および輸送のためのビームラインの設計、製作が進められており平成24年10月末の完成を目指しています。本会議における報告では、熱解析も終了し、最終仕様が決定され、製作に着手した状況をご報告いたします。特に 2300K まで加熱されるタングステン箔やその周辺機器の温度分布や、それに伴う熱伸び対策は重要な検討事項です。タングステン標的チェンバ下流の輸送系チェンバは四重極電磁石、静電ベンド、偏向電磁石、エレクトリックデフレクターなどで構成されますが、各機器の組立精度に関しても注意深い検討を行なっています。また現在では入手不可能となった高純度タングステン箔の製法についても開発・検討を行なっており、バルクの 3N タングステンから 50 ミクロン厚の箔を製作する手法は確立しつつあります。今後は 5N タングステン箔にて製作に取り掛かることを計画しています。超低速ミュオンの発生効率に大きな影響を与えると予測されるタングステン箔の表面積を大きくするために、エッチングによる表面処理を施した場合の表面観察に関しても議論したいと思えます。



図;タングステン標的チェンバ図面(左)とタングステン箔開発の写真(右)

GEANT4 ベースのモンテカルロシミュレーションによる 超低速ミュオンビームラインの評価

長友傑¹, ストラッサーパトリック¹, 池戸豊¹, 牧村俊助¹, 中村惇平¹, 西山樟生¹,
河村成肇¹, 下村浩一郎¹, 藤森寛¹, 小林庸男¹, 大久保隆治¹, 伊藤孝², 髭本亘²,
門野良典¹, 鳥養映子³, 三宅康博¹

¹ 高エネルギー加速器研究機構, ² 日本原子力研究開発機構, ³ 山梨大学

J-PARC M L F ミュオン施設では、大強度表面ミュオンビームを生成するスーパーオメガビームライン(U-ライン)の建設および、その下流に「超低速ミュオンビームライン」の製作・建設を進めている。「超低速ミュオンビームライン」から、「高単色性」・「mm のビーム径」・「高時間分解能」の特徴を併せ持つ超低速ミュオンビームを供給することで、「超低速ミュオン顕微鏡」の実現を目指している。

約 2000K の高温に加熱されたタングステン標的に表面ミュオン(~ 4 MeV)を停止させ、電子とミュオンの束縛状態である熱ミュオニウムを真空中に取り出す。その後、レーザー共鳴イオン化法によって熱ミュオニウムを再イオン化し、30kV の高電圧により再加速することで、超低速ミュオンビームを生成する。

「超低速ミュオンビームライン」を構成するビーム光学デバイス設計が完了した。図1に示すように、設計された電極の形状等をモデル化し、三次元有限要素法を応用した OPERA-3D コード(TOSCA)によって、現実的な三次元電磁場分布を計算を行った。その電磁場分布を、GEANT4 を基礎としたモンテカルロシミュレーション `musrSim`[1]に取り込むことで、ビーム輸送を評価した。

また、現在の超低速ミュオンビームラインの建設の現状も併せて報告する。

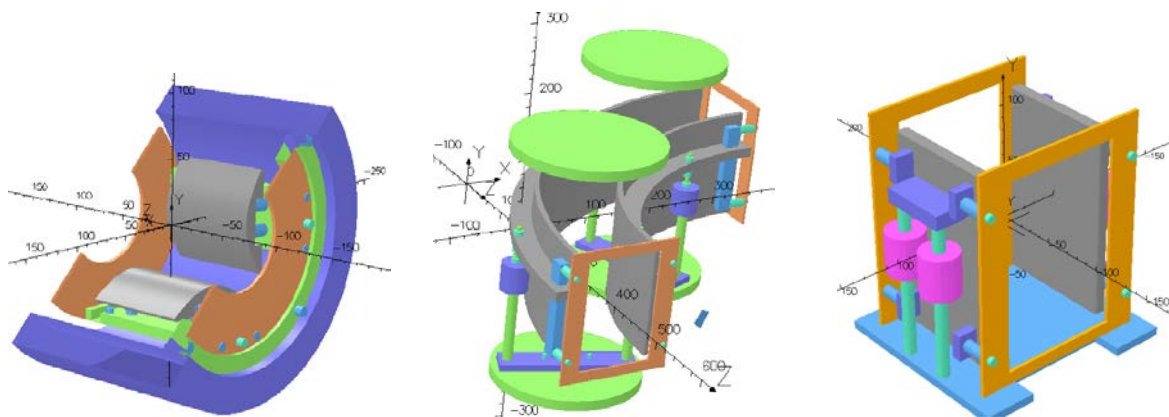


図1 モデル化された静電光学デバイス。静電四重極(左)、静電バンド(中央)、静電デフレクタ(右)

[1] K. Sedlac et al. <http://lmu.web.psi.ch/simulation/>

J-PARC/MUSE Ultra-Slow Muon Beamline

P. Strasser¹², S. Makimura¹², Y. Ikedo¹², J. Nakamura¹², T. Nagatomo¹², R. Ohkubo¹,
K. Nishiyama¹², K. Shimomura¹², A. Koda¹², N. Kawamura¹², H. Fujimori¹²,
W. Higemoto³², R. Kadono¹², and Y. Miyake¹²

¹*Muon Science Laboratory, High Energy Accelerator Research Organization (KEK)*

²*Muon section, Material and life science division, J-PARC Center*

³*Advanced Science Research Center, Japan Atomic Energy Agency (JAEA)*

At the J-PARC Muon Science Facility (MUSE), which is located in the Materials and Life Science Facility (MLF) building, we are now constructing a new ultra-slow muon beamline to extend the scope of the μ SR technique from bulk material to thin films, multi-layers, surfaces and extremely small samples. The soon to be completed Super-Omega muon channel (U-Line), which will produce the world strongest pulsed surface muon beam, will be used to generate ultra-slow muon beam. Low energy muons are produced by the re-acceleration of thermal muons regenerated by the laser resonant ionization of muonium atoms evaporated from a hot tungsten foil, a method that was originally developed at the Meson Science Laboratory of the High Energy Accelerator Research Organization (KEK). The re-accelerated beam (ultra-slow muon beam) has better energy resolution and space distribution compared to initial surface muon beam. The status of the ultra-slow muon beamline construction will be presented.

理研 RAL における超低速ミュオン生成、 ミュオン輸送ビームラインの系統的理解へ向けた取り組み

友野 大

理化学研究所 仁科加速器研究センター

For collaboration of RIKEN-RAL ultra-slow muon generation experiment

(理研、Institute of Physics ASCR, 東大院総合、KEK)

理化学研究所の理研 RAL ミュオン施設では、2000年から超低速ミュオンの生成実験を開始し、2007年度までの第 I 期で超低速のミュオン生成に成功した[1]。しかしながら、応用実験を推進するには更なる大強度化が必要である。そこで、この実験装置を引き継ぎ、第 II 期として超低速ミュオン発生装置の改良を行っている。予定ではレーザー改良によって、ライマン α 光の強度が10倍程度となり、ミュオンのイオン化効率が増強され超低速ミュオンの数は増えるはずである。しかしながら、レーザーの増強にともなう、空間的な光子の飽和によりミュオニウムのイオン化効率が落ちるといった問題も予想されており、実際に理研 RAL 超低速ビームラインを使ってテストできるようビームライン等の準備を行っている。そして、ライマン α 光の強度と超低速ミュオンの個数を系統的に調べ、今後の超低速ミュオン生成の基礎データ収集が当面の課題である。さらに、将来的な応用としては、超低速ミュオンの大強度化、先鋭化を推進し、ミュオン異常磁気能率精密測定など、素粒子実験のミュオン源としての利用や、表面界面などのミュオン物性測定のプローブへとしての利用を考えている。そのために私たちのグループではビーム生成の系統的理解を進めるべくいくつかの準備を行っている。超低速ミュオン生成の主要部分はレーザー発生装置、ミュオニウム生成メカニズムおよび標的、ミュオニウムイオン化、ビームラインおよび超低速ミュオン検出で構成されるが、現在までに理研 RAL で行われた改良による進展をいくつかをまとめると

- 1) 改良されたライマン α 光発生装置により超低速ミュオン生成が確認された。
- 2) 超低速ミュオンビームラインの電源安定化等が行われ、系統的なテストができる環境が整った
- 3) ライマン α 光強度測定のためのフォトダイオードのインストールを行っている。

などがあるが、また問題点、課題も多い。さらに、理研 RAL 実験とは別に標的の最適化も行われており、これと合わせて超低速ミュオンの個数を増強する研究が行われている。

本講演では理研 RAL におけるビームラインの改良の進展および超低速ミュオン検出、今後の展望について報告する。

[1] P. Bakule *et al.*, Nucl. Inst. Meth. B266 (2008) 355.

負ミュオンによるタンパク質活性部位の定量化の可能性

田中伊知朗^{1,2}, 新村信雄²

¹茨城大学工学部

²茨城大学フロンティア応用原子科学研究センター

生体高分子は酵素のほか、生体内の様々な機能に関係している。その機能の中で、水素という原子番号最小の元素が主役を演じているとともに、原子番号の大きい金属原子が活性中心に存在して重要な役割を担っていることが多い。金属原子近傍の水素原子や活性部位の反応性の高い水素原子の位置情報は、大強度陽子加速器 J-PARC のパルス中性子源を利用した生体高分子中性子回折計 (iBIX) を用いて、より小さな結晶でより短時間で、取得することが可能となってきた[1]。これらの情報は、他の手法では得ることが困難な貴重なものではあるが、これだけでは生命現象の解明は不十分である。

そこで、重い電子の性質を持つ負ミュオンが、タンパク質活性部位のキーとなる原子 (核種) とミュオン原子を形成し、そこから放出される特性 X 線や崩壊時に電子を放出する性質に注目した。うまく目的とする原子からの信号としてとらえることができれば、以下の興味のある状態を同定・定量化できる可能性がある。これらは医学的な診断にも応用される重要な基礎となるであろう。

- 1) タンパク質活性部位の金属元素[2]の同定
- 2) 膜タンパク質の活性部位[3]やプロトンチャンネルの *in situ* 特性測定
- 3) 反応性の高い水素の低障壁水素結合[4]等の強さの定量化
- 4) 試料の水素原子や含有金属原子を核偏極した状態の同定

当日の発表では、上記状態における注目すべき核種について、X線・中性子結晶構造解析の現状を紹介するとともに、それらに対するミュオンの性質[5]を整理して議論したい。

[1] I. Tanaka *et al.*, Acta Cryst. D, 66, 1194-1197 (2010)

[2] O. Einsle *et al.*, Science, 297, 1696-1700 (2002)

[3] Y. Umena *et al.*, Nature, 473, 55-60 (2011)

[4] S. Yamaguchi *et al.*, Proc. Natl. Acad. Sci. USA, 106, 440-444 (2009)

[5] 永嶺謙忠, ミュオンの科学(丸善), 39-49 (1988)

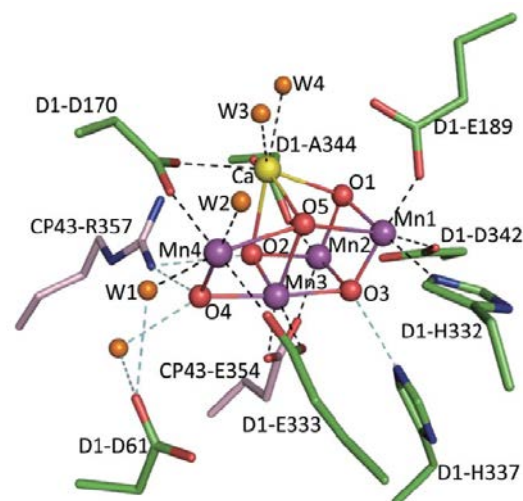


図1 光合成関連膜タンパク質 PSII の活性部位

μ SR による生体分子における電子伝達の解明

菅原洋子¹、永嶺兼忠²、石田勝彦²、鳥養映子³、Amba Pant⁴、下村浩一郎⁴、髭本亘⁵
¹ 北里大学理学部、² 理化学研究所、³ 山梨大学大学院医学工学総合研究部、⁴ 山梨大学大学院医学工学総合教育部、⁵ KEK、物質構造科学研究所、⁵ 日本原子力研究開発機構、先端基礎研究センター

細胞内呼吸における電子伝達に係わる酸化還元酵素であるシトクロム *c*、遺伝情報を担うとともにその電子伝導特性に関心がもたれている DNA、癌化の医療診断と関わった水溶液中の溶存酸素の観測など、生命現象と係わる様々な系で、 μ SR 実験が興味ある成果を生み出している。ミュオン顕微鏡が完成すれば、高感度、高分解能の測定が可能となり、研究対象は格段に広がると期待されるが、それまでに解決しておかなければならない課題の一つとして、 μ SR 信号の解釈を実験的に確定することが挙げられる。

DNA の μ SR 実験からは、A-DNA と B-DNA では緩和時間の外部磁場依存性等に顕著な差異が認められている。これが A-DNA と B-DNA の二重らせん構造の違いを直接的に反映しているのかは、または、A-DNA と B-DNA では水和量および水和サイトが異なるので、これを介した差異であるのかは実験的には確定していない。DNA 鎖に沿った電子伝導は、グアニル基に生じたホールがグアニル基をホッピングしていくことに由来することが電子移動速度の塩基配列依存性より検証されているが、ミュオンはグアニル基にホールを生み出すことに寄与しているのか、それとも電子を持ち込んで、共鳴オージェ分光法により提案されたリン酸骨格に由来する非常に高エネルギーの伝導帯が関与する電子伝導を引き起こしているのか等を明らかにすることも興味ある解決すべき課題といえる。これらを実験的に検証するためには、A-DNA、B-DNA と共により低含水量のランダムコイル状態の DNA 試料や、poly(rG)四重らせんおよび poly(rG)同様グアニル基が水素結合を介して形成する四量体が積層構造を形成しているグアノシン-リン酸凝集体、およびリン酸基をもたないグアノシン凝集体等の μ SR スペクトルの比較が有効と考えられ、現在準備を進めている。また、重水素効果の有無などにも関心がもたれる。

一方、酸化還元酵素など蛋白質における電子伝達においても、長距離の電子伝達には DNA 同様、水和水の寄与が欠かせないことが理論計算より指摘されている。この問題と取り組むためには、酸化還元酵素の活性部位近傍の水和状態を明らかにすることが必要である。水和水の形成する水素結合を確定するには、水素原子位置が決定できる中性子構造解析が有効である。ミトコンドリアにおける電子伝達に関わるシトクロム *c* の結晶(正方晶および三方晶)について 1mm³ 程度の単結晶の作成に成功し、2012A 期において J-PARC/MLF 茨城県生命物質構造解析装置(iBIX)において中性子回折強度測定の実験を行った。正方晶について 2.4 Å の分解能で回折が観測されることが確認できた。早ければ 2012B 期において中性子回折強度収集の本測定を行い、構造解析を進めることを予定している。

Muonium Relaxation Spectroscopy of Biological Aqueous Solution

K. Nagamine^{1,2,3}, E. Torikai⁴, A.D. Pant⁴, K. Shimomura², K. Ishida⁵, F.L. Pratt⁶
and J.S. Schultz⁷

¹Atomic Physics, RIKEN, ²Muon Science, KEK, ³Physics, U. of California, Riverside,

⁴Medicine and Eng. Yamanashi U., ⁵Adv. Meson Science, RIKEN, ⁶ISIS, RAL,

⁷Bio-Eng., U. of California, Riverside

Muon in water is known to take a form of long-lived diamagnetic μ^+ (60 %) and muonium (Mu, 20 %) with a missing fraction of very rapidly relaxing component (20 %). The spin polarization of Mu is quite sensitively responding to the existence and dynamics of dilute magnetic impurities. In fact, the Mu spin depolarization rate in water at room temperature depends linearly on concentration of the dissolved paramagnetic molecular O₂, [O₂] due to electron spin exchange interaction with the bound electron of Mu; $\lambda_{\text{Mu}}/[\text{O}_2 \text{ (mole/l)}] = (1.8 \pm 0.1) \times 10^{10} \text{ (s}^{-1}\text{)}$ [1].

Recently, in our experiment at RIKEN-RAL, the muonium was found to take a characteristic spin relaxation change against oxygen impurities not only in pure water but also in water with 1 % Tris Buffered Saline water solution. Also similar O₂ response was detected in 0.4 g Albumin and 10 g Tris Buffered Saline (TBS) in 1 μl water. These results suggest for the present muon method to be able to be applied to the systematic studies on the various types of biological water solutions. Application to dilute heme-protein or deoxy-hemoglobin water solution will also be possible.

The use of ultra-slow muon is quite significant in this aqueous solution studies. Because of the conservation law of the normalized emittance, beam acceleration makes beam confinement, leading to the confinement of the stopping region competing against the increase of multiple scattering inside the matter. Thus, by accelerating ultra-slow muon up to 1 MeV, the stopping region will be confined to the size below 10 μm at the depth of 100 μm in water. Thus, the present method will be applied to the living cell non-invasively.

The straight biomedical application will be to Hypoxia, or low oxygenation, which is known as an important factor in tumor biology and the response of tumors to treatment by radiation. In cancer patients, an accurate measurement of hypoxia in specific regions may have important predictive value in the management of treatment and outcome of the disease. The National Cancer Workshop in 2006 [2] on hypoxia imaging techniques points the need for improved O₂ detection methods for cancer treatment. Numerous noninvasive imaging methods have been developed for clinical applications by employing e. g. PET, MRI and EPR. However, because of the limited sensitivity and spatial resolution of these methods there is a definite need for a breakthrough approach. Here, we propose the use of muonium and apply its spin response to paramagnetic O₂ as a new probe for the measurement of dissolved oxygen for monitoring hypoxia. Particularly desirable feature of the present muon method is a capability of noninvasive and sensitive imaging; spatial resolution at the mm level at the depth of up to 20 cm; and the range of O₂ concentration sensitivity is pO₂ of 0.3~3.0 $\times 10^2$ mm Hg, matching to the range of Hypoxia.

[1] E. Roduner et al., *J. Chem. Soc. Faraday Trans.* **91** (1995) 1935.

[2] J.L. Tatum et al., *Int. J. Radiat. Biol.* **82** (2006) 699.

STM/STS から見た銅酸化物高温超伝導体の擬ギャップ / 電荷秩序と超伝導

小田 研¹, 黒澤 徹¹, 戸田泰則², 桃野直樹³, 伊土政幸¹

¹北海道大学, 物理学部門

²北海道大学, 応用物理学部門

³室蘭工業大学, 応用理化学系専攻

銅酸化物高温超伝導体の大きな特徴の一つは、ギャップ様構造(擬ギャップ)が T_c より高温の T^* 付近でクロスオーバー的に発達することである。擬ギャップは、その発見当初(1990年代初め)から最近に至るまで、「超伝導ギャップの前駆的な現象か？」あるいは「超伝導とは競合する新たな秩序(隠れた秩序)によるか？」を巡って活発に議論されてきた。その間にビスマス系銅酸化物高温超伝導体 Bi2212 でプリンストン大のグループにより行なわれた STM/STS 実験では、電子系の新奇な電荷秩序が擬ギャップ状態で発達することが示され、これが擬ギャップ状態の隠れた秩序である可能性が指摘された。また、我々の STM/STS 実験では、擬ギャップ状態で発達する電荷秩序は、 T_c 以下でも存続し、実空間で超伝導と共存することが明らかになった。最近の ARPES 実験によると、擬ギャップのエネルギー・スケールは(d波の)超伝導ギャップと比べ数倍大きく、両者はフェルミ面を二分して発達する。さらに、ARPES 実験では、 T_c が低下する低キャリア(ホール)濃度領域において擬ギャップの発達が顕著となり、その結果として超伝導ギャップが抑制されることも明らかにされた。これらの STM/STS と ARPES の結果から最近では、(大きなエネルギー・スケールの)擬ギャップ/電荷秩序は超伝導と競合する現象と考えられている。

擬ギャップ/電荷秩序の起源に関しては、電荷とスピンのストライプやフェルミ面のネスティングによる電荷密度波などが提案されているが、未だ明らかになっていない。我々の Bi2212 における STM/STS 実験からは、電荷秩序は試料の内部で動的に揺らいでおり、表面(劈開面)では(何らかの結晶不整によりピン止めされて)静的なものになると考えられる。したがって、銅酸化物高温超伝導体における電子系電荷秩序の有力候補であるストライプ秩序のようにスピン系も関わっているのであれば、試料の表面と内部でスピンのダイナミクスが異なる可能性があり、このことは深さ方向に高い分解能を持つ超低速ミュオン顕微鏡で検証できるものと期待される。

本講演では、STM/STS から見た銅酸化物高温超伝導体の擬ギャップ/電荷秩序の性質と超伝導との関係を紹介する。また、擬ギャップ/電荷秩序の起源に関する研究において超低速ミュオン顕微鏡が有力な手段に成り得ることについても触れたい。

鉄カルコゲナイドとランタン系銅酸化物における 磁性と超伝導の μ SR による研究

足立匡¹, 鈴木謙介¹, 今泉真人¹, 田邊洋一¹ (現: 東北大 WPI), 佐藤秀孝¹, 野地尚¹
リスディアナ² (現: Padjadjaran 大), 石井康之² (現: 東医大), 大石一城² (現: CROSS)
鈴木栄男² (現: 芝浦工大), 渡邊功雄², 小池洋二¹

¹ 東北大学, 大学院工学研究科,
² 理化学研究所, 仁科加速器研究センター

本講演では、我々のグループで近年行ってきた鉄系、銅系超伝導体における磁性と超伝導の μ SR による研究について紹介する。

鉄カルコゲナイド超伝導体 $\text{FeSe}_{1-x}\text{Te}_x$ において横磁場 μ SR の測定を行い、 ab 面内磁場侵入長 λ_{ab} を求めた結果、バルクの超伝導が出現する $x=0.6$ と 0.7 において、 0 K に外挿した λ_{ab}^{-2} の値 (超伝導電子密度 n_s / キャリアの有効質量 m^* に比例) が x の増加とともにわずかに減少することを見出した。この結果と電子比熱係数の結果を併せて考えると、 x の増加とともに $x=1.0$ の磁性相に向かって m^* が増大している可能性が高いと言える。これは、光電子分光から見たバンド分散の結果と一致する。一方、 λ_{ab}^{-2} の温度依存性からは、 $x=0.6$ と 0.7 で定性的に異なる振る舞いが観測された。すなわち、 x とともに超伝導の対称性が変化しているのかもしれない。

鉄を部分置換したランタン系銅酸化物超伝導体 $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_{1-y}\text{Fe}_y\text{O}_4$ においてゼロ磁場 μ SR の測定を行った結果、超伝導が出現する幅広いホール濃度域で不純物である Fe が誘起した磁気秩序を観測した。そして、アンダードープ領域での磁気秩序は電荷と Cu スピンのストライプ秩序であり、一方、オーバードープ領域での磁気秩序は RKKY 相互作用による Fe のスピングラスであることがわかった。これらのことから、銅酸化物の電子状態がホールドープとともに強相関状態からフェルミ液体的状態に移り変わっていると結論された[1,2]。

[1] K. Suzuki, T. Adachi, Y. Tanabe, H. Sato, Risdiana, Y. Ishii, T. Suzuki, I. Watanabe and Y. Koike, Phys. Procedia **30**, 275 (2012).

[2] K. M. Suzuki, T. Adachi, Y. Tanabe, H. Sato, Y. Koike, Risdiana, Y. Ishii, T. Suzuki and I. Watanabe, Phys. Rev. B (2012), in press.

フラーレン・芳香族超伝導体の超伝導状態

笠原裕一¹, 竹内裕紀¹, 岩佐義宏^{1,2}

¹ 東京大学, 大学院工学系研究科,

² 理化学研究所, 強相関電子○○グループ

有機超伝導体が発見されてから 30 年超を迎えるが, 凝縮系物理における超伝導研究のなかでも依然として重要な研究課題である. なかでも, フラーレン(C₆₀)および芳香族炭化水素化合物(C_nH_m)を母体とした超伝導体においてここ数年で大きな進展があり, 注目を集めている.

フラーレン超伝導体では, これまで困難であった Cs₃C₆₀ が合成され, さらには fcc, A15 構造の作り分けが英 Durham 大学のグループが成功した[1,2]. Cs₃C₆₀ は fcc, A15 両構造において反強磁性を示すモット絶縁体である. そして圧力実験から加圧によって超伝導を示すことが判明し, フラーレン超伝導体は他の強相関電子系超伝導体と類似の相図を示すことが明らかとなった. このことはフラーレン超伝導体が BCS 超伝導体であるという従来の理解に再考を促すものであり, 超伝導状態においても電子相関の効果が重要であると考えられる. 超伝導状態の詳細な実験的調査が必要不可欠である.

一方, 芳香族炭化水素超伝導体は 2009 年に発見された K₃picene[3]を始まりとした新しい超伝導体であり, 最近では dibenzopentacene[4]において 33 K の超伝導が報告されている.

これらフラーレン・芳香族超伝導体の研究の研究において問題となるのは, アルカリ金属をドーピングすることで超伝導が発現するために, 超伝導物質が大気中で極めて不安定かつ均質な試料の大量合成が困難であることである. そのため, 実験的研究が遅々として進まず超伝導状態の詳細などが明確でなかったことが挙げられる.

我々は物性研究の手法として極めてスタンダードかつ重要なプローブである比熱を用いた研究を行っている. 上記の大気不安定な問題を解決するための対策を講じることで, 系統的な比熱測定に成功したので, 最近の研究結果について紹介したい[5].

[1] Y. Takabayashi *et al.*, Science **323**, 1585 (2009).

[2] A. Y. Ganin *et al.*, Nature **466**, 221 (2010).

[3] R. Mitsuhashi *et al.*, Nature **464**, 76 (2010).

[4] M. Xue *et al.*, Sci. Rep. **2**, 389 (2012).

[5] Y. Kasahara *et al.*, Phys. Rev. B **85**, 214520 (2012).

URu₂Si₂ 隠れた秩序相の STM/STS 観察

金子真一¹、柿崎絵梨香¹、高橋洋介¹、松葉健¹、
芳賀芳範²、山本悦嗣²、大貫惇睦³、西田信彦¹

¹ 東京工業大学、理工学研究科

² 日本原子力研究開発機構、先端基礎研究センター

³ 大阪大学、理学研究科

重い電子系化合物 URu₂Si₂ では $T_0=17.5\text{K}$ で比熱に大きなピークを示し二次の相転移が起きる。しかしながら発見から 25 年以上たっており μSR を含めさまざまな手法で調べられているが T_0 以下の状態の秩序変数は未だにわかっていない。我々は「隠れた秩序相」の性質を調べるため、走査トンネル顕微鏡・分光法 (STM/STS) による研究を行った。STM/STS の研究では清浄表面の準備が非常に重要であるが、我々は単結晶の試料を液体ヘリウム温度で割ることにより URu₂Si₂ の c 面を準備した。STM でみた表面はテラス状の構造をしていて、それぞれのテラス内では U または Si に相当する原子像を観察することができた。清浄な表面を準備できたことがわかる。我々は STM の原子像やステップの高さによる考察から表面原子の同定を行った。次にテラスの上におけるトンネルスペクトルについて、まずは 20K 以上におけるスペクトルはフェルミエネルギー E_F 近辺で非対称な Fano 共鳴型のスペクトル形状を示した。これは金属表面に近藤不純物原子を置いたときに観測されている形状である。温度が T_0 以下になると Fano 型のスペクトルのうち、 E_F 近傍の数 meV の範囲でスペクトルに変化が生じてくるのが観測された。講演ではこれらの内容について発表する。

スーパーオメガミュオンビームラインの現状

池戸豊¹、三宅康博¹、下村浩一郎¹、Patrick Strasser¹、河村成肇¹、西山樟生¹、牧村俊助¹、
藤森寛¹、幸田章宏¹、小林庸男¹、中村惇平¹、長友傑¹、足立泰平²、荻津透³、
榎田康博⁴、吉田誠⁴、佐々木 憲一³、岡村崇弘⁴、大島洋克³、中本建志³、山本明³、
大久保隆治⁵、髭本亘⁶

¹ 高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所

² 東京大学 理学部

³ 高エネルギー加速器研究機構 低温センター

⁴ 高エネルギー加速器研究機構 素粒子原子核研究所

⁵ 高エネルギー加速器研究機構 工作センター

⁶ 日本原子力研究開発機構, 先端基礎研究センター,

J-PARC 物質生命科学実験棟ミュオン施設では、大強度ミュオンビームを生成する新しいビームライン(スーパーオメガ)の建設を行っている。スーパーオメガは全てソレノイドコイルで構成される新しいタイプのミュオンビームラインであり、 2×10^8 個/s の正ミュオン(30MeV/c)を実験標的(70 x 50 m m)に入射することができる。スーパーオメガは大立体角常伝導捕獲ソレノイド、超伝導輸送湾曲ソレノイド及び軸集束系から構成されている。現在、湾曲ソレノイドは、7 月初旬に遮蔽トンネル内に設置されており、今後冷却・励磁試験を行う予定である。軸収束系は、8 月中旬から設置作業を行い、9 月初旬には全てのビームラインが完成する。2012 年秋からのビームタイムで最初のビーム取出し実験を開始する。



図1 インストール作業中の超伝導湾曲ソレノイド。

超低速ミュオン顕微鏡計画のための レーザー輸送系の設計・製作の現状

中村淳平¹, 横山幸司², 大石裕², 斎藤徳人³, 岡村幸太郎⁴, 牧村俊助¹, 三宅康博¹,
ストラッサー・パトリック¹, 池戸豊¹, 長友傑¹, 下村浩一郎¹, 宮崎洗治³,
和田智之^{3,4}, 幸田章宏¹, 河村成肇¹, 西山樟生¹

¹ 高エネルギー加速器研究機構, 物質構造科学研究所

² 理化学研究所, 仁科センター, ³ 理化学研究所, 基幹研究所, ⁴ メガオプト

J-PARC/MLF/MUSE で建設中のミュオン U-line[1]では、大強度の低速ミュオンが輸送され、高温に加熱されたタングステン(W)標的に打ち込まれる[2]。W から超高真空中に蒸発してくる(熱)ミュオニウム($\mu + e^-$)をレーザー共鳴イオン化法[3]によりイオン化し、超低速ミュオンが生成される。超低速ミュオン顕微鏡計画では、このように生み出された大強度の超低速ミュオンビーム[4]を用いて、様々な物質研究が展開される。

ミュオニウムは 122 nm の光(真空紫外光=VUV 光) によって 1s から 2p 状態に励起され、355 nm の光によってミュオンと電子に解離される。従って、超高真空内で発生するミュオニウムに VUV と 355nm の大強度レーザー(A04 班で開発中)を重ね合わせて照射するプロセスが、超低速ミュオン顕微鏡計画では極めて重要である。VUV 光(酸素分子に吸収される)を輸送する超高真空チェンバ(VUV チェンバ)の、A01 班における現在の検討状況を図 1 に示す。この VUV チェンバは、次の特徴を持つように設計される。

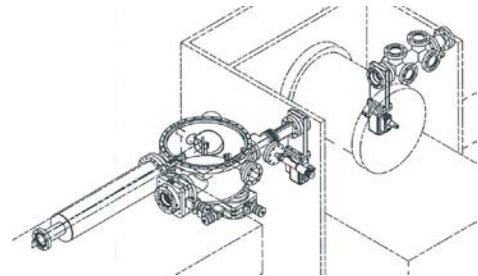


図 1 VUV チェンバ検討状況

(i) VUV 光と 355nm の光を重ね合わせるため内部にミラーを備える。また、真空を閉じた後もレーザーを調整するため、一部のミラーは真空の外から操作できるようにする。

(ii) 超高真空(10^{-8} Pa)の W 標的チェンバと接続し差動排気するため、適切な超高真空(10^{-6} Pa)を保つことができる。

(iii) チェンバ内のミラーサイズや配置はレーザーのフォーカス方法に従う。つまり、VUV 光を(二光子共鳴四波混合法の差周波で)発生させる Kr セル[5]の A04 班による仕様などを踏まえ、W 標的位置で 40×2 mm の縦長のビームとなるようにレーザーを輸送する。

本発表では、以上のようなレーザー輸送系である VUV チェンバ等について、A04 班関係者との綿密な打ち合わせ・議論を踏まえた、A01 班の枠組み内での作業分担について成果報告を行う。

[1] Y. Ikedo *et al.*, this meeting

[2] S. Makimura *et al.*, this meeting

[3] Y. Miyake *et al.*, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B : 95 (1995) 265-275

[4] T. Nagatomo *et al.*, this meeting; P. Strasser *et al.*, this meeting,

[5] O. A. Louchev *et al.* Phys. Rev. A 84, 033842 (2011)

シリカエアロジェル標的からのミュオニウム放出測定： 解析および結果の理解

¹藤原裕也, ¹加倉井拓也, ¹神田聡太郎, ¹廣田誠子, ²石田勝彦, ²岩崎雅彦, ²上野一樹, ²大西宏明, ²友野大, ²横山幸司, ³飯沼裕美, ³河村成肇, ³齊藤直人, ³下村浩一郎, ³深尾祥紀, ³三宅康博, ³三部勉, ³Patrick Strasser, ⁴Art Olin, ⁴Glen Marshall, ⁴Dagoberto Contreras, ⁵George Beer, ⁶Pavel Bakule, ⁷吉田慎哉, ⁷江刺正喜, ^{8,9}田端誠, ⁸河合秀幸, ¹⁰益田秀樹, ¹¹松田恭幸, ¹²塚田暁, ¹³大石一城
¹東大理, ²理研, ³KEK, ⁴TRIUMF, ⁵Univ. Victoria, ⁶Institute of Physics ASCR, v. v. i, ⁷東北大学原子分子材料科学高等研究機構, ⁸千葉大理, ⁹JAXA, ¹⁰首都大都市環境, ¹¹東大総文, ¹²東北大理, ¹³原研

ミュオニウム標的のうち常温で使用出来るものとしてシリカ粉末が挙げられる。。シリカエアロジェルはシリカの微細粒子が鎖状に連なることで形成される多孔質体で、シリカ粉末と同程度の比表面積、密度を持つことから、シリカ粉末に代わる常温ミュオニウム標的として使用できる可能性がある。

そこで、シリカエアロジェルをミュオニウム標的として、ミュオニウムの生成効率、標的内部でできたミュオニウムが外部へ脱出する効率、及び放出されたミュオニウムの空間分布の時間発展を測定する実験を行った。ミュオニウムが崩壊して放出される陽電子の飛跡と、開放される電子の位置を測定することで、3次元的にミュオニウムの崩壊点を再構成出来るようなセットアップを構築し、4種類の異なる密度(30 mg/cc, 50 mg/cc, 100 mg/cc, 180mg/cc)を持つシリカエアロジェル、及びミュオニウムを放出しないガラス板の5種類の標的に対して測定を行った。

結果を図1、図2に示す。図1は30 mg/ccのシリカエアロジェルを用いた場合での、陽電子トラックの光軸を含む平面への射影のZ座標と、ミュオン入射時刻から陽電子を捉えるまでの時間の相関を表す。図2はガラス板を使用した場合での同様の結果である。ミュオニウムと考えられる信号が時間とともに広がっている様子が見られる。

本講演では実験の解析と拡散モデルに基づくシミュレーション結果に関して発表する。

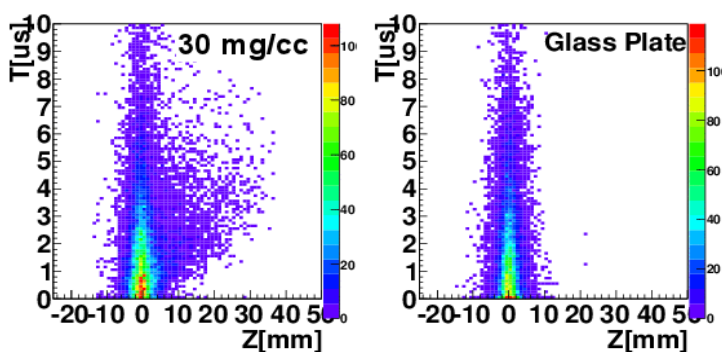


図1(左)シリカエアロジェル標的でのミュオニウムの崩壊時間と移動距離の相関。横軸は表面からの距離、縦軸は入射時刻を0とした時の崩壊時刻。
図2(右)ガラス板標的でのミュオニウム崩壊時間と移動距離の相関

muon g-2 実験のための低速ミュオン源標的探索

石田勝彦 (g-2 muon source group [1])

理化学研究所, 仁科加速器研究センター,

J-PARC で計画されている新 muon g-2 精密測定実験[2]においては、ミュオンビームが高精度一様磁場内を何回もサイクロトロン周回する必要がある、このためには超低速ミュオンの再加速によって実現されるであろう高品質ミュオンビームが適している。高精度測定に必要な統計量を得るためには大強度陽子加速器、高効率ミュオンビームライン、高効率ミュオニウム生成標的、大強度イオン化レーザー、高精度超低速ミュオンラインなどを用いて超低速ミュオンビーム強度を稼ぐ必要がある。特に muon g-2 測定に必要なのは時間幅の短い、平行度がそろったパルス状ミュオンビームであり、これは超低速ミュオン顕微鏡の性能にも寄与すると期待できる。

これらの設計を進める上で実測に頼らざるを得ないのが真空中にミュオニウムを高効率で放出する標的の選定である。我々は常温標的の持つ有用性に着目し、これまでミュオニウム生成で実績のあるシリカ粉末をベースに、ビームライン真空中でより取扱いやすい板状標的の開発を目指して試験を行った。藤原の報告[3]にあるように、我々はシリカエアロジェルに注目し、TRIUMF 研究所の連続上ミュオンビームを用いて、放出ミュオニウムの位置分布の時間発展を高精度で観測し、その速度分布などについて貴重な知見を得ることができた。一方、得られた生成量は似た内部構造を持つシリカ粉末のものより少なく、新 muon g-2 実験の1年の測定でこれまでの実験の5倍の精度を目指すには一桁程度不足となる。

本報告ではシリカエアロジェルを用いた超低速ミュオン強度の評価、シリカパウダーや高温タングステンとの比較、効率向上の可能性などについても述べる予定である。

[1] g-2 muon source group: P. Bakule (ASCR), G. Beer (Univ. Victoria), D. Contreras (TRIUMF), Y. Fujiwara (Univ. Tokyo), W. Higemoto (JAEA), H. Iinuma (KEK), K. Ishida (RIKEN), M. Iwasaki (RIKEN), S. Kanda (Univ. Tokyo), T. Kakurai (Univ. Tokyo), N. Kawamura (KEK), O. Louchev (RIKEN), G. Marshall (TRIUMF), Y. Matsuda (Univ. Tokyo), T. Mibe (KEK), K. Midorikawa (RIKEN), Y. Miyake (KEK), R. Muto (KEK), K. Nagamine (KEK), T. Ogawa (RIKEN), K. Ohishi (CROSS), H. Ohnishi (RIKEN), S. Okada (RIKEN), A. Olin (TRIUMF), N. Saito (KEK), N. Saito (RIKEN), K. Shimomura (KEK), P. Strasser (KEK), D. Tomono (RIKEN), K. Tsukada (Univ. Tohoku), K. Ueno (RIKEN), S. Wada (RIKEN), K. Yokoyama (RIKEN)

[2] P34 Proposal “A New Measurement of the Muon Anomalous Magnetic Moment g-2 and Electric Dipole Moment at J-PARC” to J-PARC PAC at KEK

[3] Y. Fujiwara et al, this symposium.

ポスター発表

超低速ミュオン顕微鏡における μ SR分光器

髙本亘^{1,2}, 幸田章宏^{2,3}, 小嶋健児^{2,3}, ストラッサー・パトリック^{2,3}, 下村浩一郎^{2,3},
宮崎正範^{2,3}, 長友傑^{2,3}, 伊藤孝^{1,2}, 西山樟生^{2,3}, 門野良典^{2,3}, 三宅康博^{2,3}

1 日本原子力研究開発機構, 先端基礎研究センター,

2 J-PARC センターミュオンセクション

3 高エネルギー加速器研究機構, 物質構造科学研究所

超低速ミュオン顕微鏡における実験は大部分が μ SR 実験となる。そのためどのような μ SR 分光器が設置されるのかは、そのまま可能な実験がどのようなものであるかを定めることになる。超低速ミュオン顕微鏡は、超高真空下、高電圧を印加する必要、低エネルギービームであるために窓が設置できないなどの条件があることから従来の実験装置に比べて制約が大きく、初期の段階では限られたパラメーターの範囲での実験となる。おもなパラメーターは以下のものとなる。

- 磁場 0-1400G (常伝導磁石による)
- 温度 15K 以上 (ヘリウムフロー冷凍機)
- 超高真空 (10^{-8} Pa)

ただしこれらは初期の装置性能であり、今後必要に応じて増強される。またロードロックチャンバーによる試料交換機構などを有し、ロードロックチャンバー側には RHEED 等の試料評価装置も設置される。

講演では分光器建設の現状を述べ、実験に関する意見交換を行いたいと思う。

GaAs(001)表面上の MnAs 初期成長表面の STM 観測

吉野 淳二, 加来 滋

東京工業大学大学院理工学研究科物性物理学専攻

GaMnAs は、低温で強磁性を発現するが、母体の GaAs の閃亜鉛鉱型構造を維持するため、絶縁体である GaAs との理想的な界面構造を維持できるため、スピン流と磁化の相互作用を調べる上で興味ある系と考えられる。一方、GaMnAs の磁性に関しては、精力的な研究が為され、その強磁性の起源や磁気異方性の振る舞いは、pd 交換相互作用により統一的に理解できたと考えられてきた。ところが、最近になって、Fermi 準位が、局在準位中に存在するという指摘がなされ、強磁性の起源を含め、再び論争が活発になっている。

我々は、GaMnAs 及び関連物質群、例えば、ハーフメタルの電子構造を有することが理論的に予言されている閃亜鉛鉱型構造を有する MnAs 等の形成、GaMnAs を磁性層とする磁性/非磁性ナノ構造中のスピン流による磁化のダイナミクスに関する研究を進めている。ここでは、GaAs(001)表面上の閃亜鉛鉱型構造を有する MnAs の形成を目指して MnAs の初期成長表面を走査トンネル顕微鏡を用いて調べた結果について報告する。

GaAs(001)表面は、温度と気相の雰囲気により As 過多の $c(4 \times 4)$ 構造から、Ga 過多の 6×6 構造など大きく構造が変化し、成長初期の振る舞いは、一般的には再構成構造に依存する。図1は、GaAs(001) $c(4 \times 4)\alpha$ 表面と 6×6 表面上に MnAs を 1ML 以下の成長した際の STM 像を示している。下地となる再構成表面(図 1(a), (d))が異なるにもかかわらず、成長初期表面は、何れも $[110]$ 方向に $2 \times$ 周期をもつ As-As ダイマー列により構成されている事を示唆する。一方、見かけの被覆率は、図 2 に示すように堆積量と大きく異なる。この被覆率異常について GaAs 再構成表面の元素構成と電子数モデルから説明できると考えている。

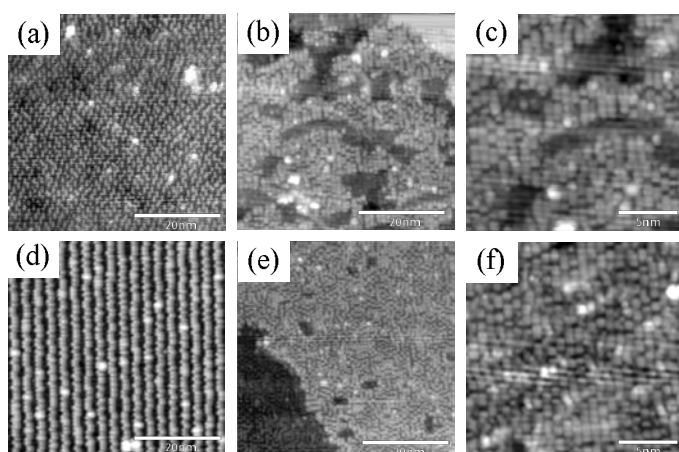


図1 GaAs 基板表面の再構成と MnAs 初期成長表面の STM 像. GaAs(001) $c(4 \times 4)$ 再構成表面(a)とその上の MnAs 成長表面(b),(c). GaAs(001) 6×6 表面(d)とその上の MnAs 成長表面(e),(f).

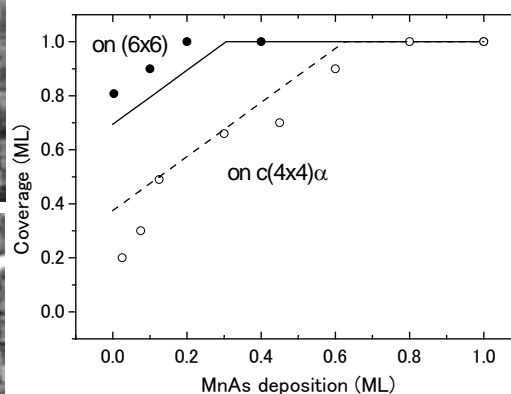


図2 $c(4 \times 4)$ 再構成表面上と 6×6 再構成表面上の MnAs 成長における、見かけの被覆率の MnAs 堆積量依存性。

SrTiO₃ 表面における酸素欠損・吸着水素の分布と電子状態変化

武安光太郎, 深田啓介, 小倉正平, 松本益明, 福谷克之
東京大学生産技術研究所

1. はじめに

固体表面における分子の挙動は、分子と表面の電子状態を反映する。SrTiO₃ は劈開による表面二次元電子系の創出など、構造変化や分子吸着によって電子系が大きく変化する物質の一つだが、水素、酸素等の基本的な気体に関しても吸着構造やそれに伴う電子状態変化に関して未解明である点が多い。本研究では、電子線照射によって生成した SrTiO₃ 表面の酸素欠損と酸素吸着、無欠陥表面への水素原子吸着、酸素欠陥表面への水素分子吸着における分布、電子状態変化を調べたので、その結果を報告する。

2. 実験結果

SrTiO₃ (001) 無欠陥表面に 1500 eV の電子線照射を行った際の紫外光電子分光 (UPS) の変化を図 1 (a) に示す。電子線照射前には、バンドギャップ中 (束縛エネルギー 0–3.2 eV) に特徴的な電子構造は見られなかったが、電子線照射によりフェルミ面の 1.2 eV 下方に酸素欠損由来と考えられる新たな電子状態ピークが生じた。挿入図のように、ピーク面積は電子線照射量が $3 \times 10^{18} \text{ cm}^{-2}$ に至るまで上昇し、対応して伝導帯下帯がフェルミ面の下方に移動した。つまり、表面に伝導層が生じたと考えられる。また、続く酸素分子 10 L の暴露によってピークは消失し、伝導帯下端もフェルミ面の上方へ移動した。酸素吸着量から見積もった電子線照射による飽和酸素欠損量は $7.3 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ だった。

¹H(¹⁵N, $\alpha\gamma$) ¹⁵C 核反応を利用して、無欠陥表面に (H+H₂) 混合気体を、電子線照射後の酸素欠陥表面に H₂ を暴露した際の水素深さ分布を調べたものを図 1 (b) に示す。それぞれの場合に、水素は表面に $5.6 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$, $2.1 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ 吸着していることが分かった。UPS 測定に基づく水素・表面間の電荷移動を合わせて議論する。

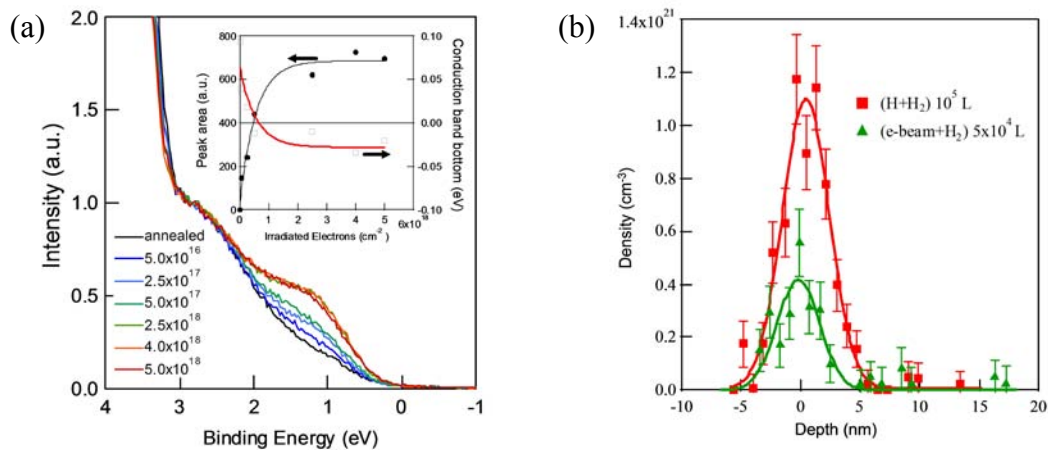


図 1. (a) 電子照射した SrTiO₃(001) の UPS スペクトル. (b) SrTiO₃ (001) 無欠陥表面・酸素欠陥表面にそれぞれ (H+H₂), H₂ を暴露した際の NRA スペクトル.

PSI 低エネルギーミュオンを用いた高温超伝導体薄膜の測定と J-PARC 超低速ミュオン顕微鏡での展開

小嶋健児^{1,2}, 平石雅俊¹, 宮崎正範¹, 幸田章宏^{1,2}, 門野良典^{1,2}, Andreas Suter³, Hubertus Luetkens³, Zaher Salman³, Thomas Prokscha³, Elvesio Morenzoni³, Yoshi Krockenberger⁴, 山本秀樹⁴, 池田 愛⁵, 内藤方夫⁵

¹ 高エネルギー加速器研究機構, 物質構造科学研究所

² 総合研究大学院大学

³ Paul Scherrer Institute (PSI), Laboratory of Muon Spectroscopy

⁴ NTT 物性基礎研究所

⁵ 東京農工大学, 工学部

PSI の低エネルギーミュオン施設 (LEM) は、現在のところ、物性測定が可能な強度で keV 領域のミュオンビームを供給する、世界で唯一の実験施設である。超低速ミュオン顕微鏡建設に先立って、keV 領域ミュオンを使った物性測定を予め経験し、超低速 μ SR 測定装置の開発に役立てる意味合いも含めて、我々は、PSI-LEM で銅酸化物高温超伝導体薄膜の測定を行ってきた。

具体的には、いわゆる電子ドープ型の T' 型銅酸化物高温超伝導体 (RE_2CuO_4) を研究対象としている。近年、ゼロドープ超伝導の出現[1,2]が有機金属塗布 (MOD) 法[1]と分子線エピタキシー (MBE) 法[2]の作成試料で主張されている。これまで、表 1 に示す試料に関して、PSI-LEM 施設を用い、約 10-20nm 程度の深さ分解能で、表面近傍から内部への磁性の体積分率と(可能な試料は)マイスナー磁場分布を測定した。

表 1 : これまで LE- μ SR 測定した薄膜試料と明らかになった特性 (太字)

	過還元	最適還元	非還元
La _{1.9} Y _{0.1} CuO ₄ (MBE)	---	T _c =20K λ ~400nm · T _N ~80K	T _N ~120K
Eu ₂ CuO ₄ (MOD)	絶縁体 · 非磁性	T _c =26K · T _N ~80K	T _N ~140K

MOD と MBE 膜の双方において、磁性の体積分率は超伝導試料において約 30~50%程度、超伝導を示さない非還元試料ではほぼ 100%と、超伝導と静的磁性の競合を確認した。さらに絶縁体化する過還元試料(MOD 膜)では磁性も失うことが明らかになり、過還元で面内酸素も抜け始めたことを示唆する。超伝導を示す MBE 膜 (厚さ ~300nm) においては、マイスナー状態の磁場分布を低エネルギー(LE-) μ SR で直接測定することができ、ゼロドープ超伝導はバルクな超伝導であることを示した。同時にこの試料の磁性体積分率は表面付近で大きく(~50%)、内部で減少することを明らかし、磁場侵入長の深さ依存性と合わせて、(表面)磁性と超伝導の競合が明らかになった。

上記の経験に基づき、J-PARC/MLF の超低速 μ SR 測定装置にどのような設計指針を反映させるべきかを議論する。

[1] O. Matsumoto *et al.* *Phys. Rev. B* 79, 100508(R), (2009).

[2] Y. Krockenburger *et al.* *Phys. Rev. B* 85, 184502, (2012)。

T'-214 型銅酸化物における反強磁性秩序と近藤効果と超伝導

足立匡, 森陽介, 高松智寿, 加藤雅恒, 小池洋二
東北大学, 大学院工学研究科

所謂 T' 構造をもつ銅酸化物 T'-RE₂CuO₄ (RE: 希土類元素) は、モット絶縁体であり、+3 価の RE の代わりに +4 価の Ce を置換することによって CuO₂ 面に電子キャリアがドーピングされ、超伝導が発現すると理解されてきた。しかし、この物質特有の過剰酸素をうまく除去すれば、電子ドーピングを施さなくても超伝導が発現すると、内藤ら[1]によって報告された。

そこで、我々は、T' 型銅酸化物の電子状態を詳しく調べるために、T'-Pr_{1.3-x}La_{0.7}Ce_xCuO_{4+δ} の x=0.10 の単結晶を作製し、過剰酸素量 δ による物性の変化を調べた。その結果、以下のことが分かった。

- (1) δ が大きい場合は、キャリアは強局在状態にあり、反強磁性秩序が形成される。
- (2) δ が小さくなると、キャリアは金属的伝導を示すようになり、反強磁性秩序は壊れ、近藤効果が観測され、超伝導が発現する。
- (3) δ がさらに小さくなると、近藤効果は観測されなくなり、超伝導が発現する。

これらの結果は、強相関を考慮したモデルで、以下のように理解することが可能である。

- ・過剰酸素がなければ、電荷移動型ギャップが消失し、電子キャリア (ダブルロン) とホールキャリア (ホロン) による超伝導が発現する。
- ・過剰酸素が導入されると、局所的に電荷移動型ギャップが開き、Cu3d_{3z²-r²} のフリースピンによる近藤効果が現れる。
- ・過剰酸素がさらに導入されると、静電ポテンシャルの乱れによって、キャリアが強く局在し、Cu3d_{x²-y²} のスピンによる反強磁性秩序が現れる。

しかし、これらの結果は、強相関を考慮しないバンドモデルでも理解することは可能であり、μSR や中性子散乱による磁性の理解が今後の重要な課題である。

T'-RE₂CuO₄ にホールキャリアをドーピングした超伝導体はこれまでに見つかっていなかったが、我々は、ノンドーピングとホールドーピングした T' 型超伝導体 T'-La_{1.8-x}Eu_{0.2}Sr_xCuO₄ (x=0, 0.05) のバルク試料の合成に成功した[2]。超伝導転移温度 T_c は、それぞれ 20K と 13K であるが、ホールドーピングによる T_c の低下が本質的なものであるかどうかを調べるのが、今後の課題である。

[1] A. Tsukada *et al.*, Solid State Commun. **133**, 427 (2005).

[2] T. Takamatsu *et al.*, Appl. Phys. Express **5**, 073101 (2012).

La 系銅酸化物高温超伝導体のオーバードープ領域における Fe 誘起磁気秩序

鈴木謙介¹, 足立匡¹, 佐藤秀孝¹, 渡邊功雄², 小池洋二¹

¹ 東北大学大学院工学研究科, ² 理研仁科加速器研究センター

La 系銅酸化物高温超伝導体 $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_{1-y}\text{Fe}_y\text{O}_4$ において、Cu サイトを 1% の Fe で置換すると、幅広いホール濃度領域で磁気秩序が誘起される。アンダードープ領域で誘起される秩序は、所謂電荷とスピンのストライプ秩序である可能性が高いが、オーバードープ領域で誘起されるものはストライプ秩序とは異なっている可能性が高い[1-3]。そこで、我々は、オーバードープ領域において Fe が誘起した磁気秩序を詳しく調べるために、Fe を高濃度に置換して超伝導を抑制した試料について、直流磁化率とミュオンスピン緩和 (μSR) 実験を行った。

図に、 $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_{1-y}\text{Fe}_y\text{O}_4$ のホール濃度 $p (= x - y) = 0.20$ におけるゼロ磁場冷却(ZFC)と磁場中冷却(FC)の直流磁化率の温度依存性を示す。 T_{g1} 以下の低温で ZFC と FC の磁化率にヒステリシスが見られる。また、 T_{g1} は Fe 濃度の増加とともに単調に増大する。時間分解能が高い直流ミュオンビームを用いた μSR を行ったところ、 $T \sim T_{g1}$ で静的磁気秩序の形成を示すアシンメトリの速い緩和が見られたが、長距離磁気秩序の特徴を示すミュオンスピン回転は見られなかった。これらの結果は、 $T \sim T_{g1}$ で Fe のスピングラスが形成されたことを示す。

一方、 T_{g1} 以下の低温 T_{g2} でも磁化率の異常が見出された。また、 T_{g2} も Fe 濃度とともに単調に増大している。 T_{g2} でのスピン状態の起源は明らかではないが、Cu スピンが関与したものかもしれない。

[1] R .-H. He *et al.*, Phys. R ev. L ett. **107**, 127002 (2011).

[2] K. Suzuki *et al.*, Physics Procedia **30**, 275 (2012).

[3] K . M . S uzuki *et al.*, P hys. R ev. B **86**, 014522 (2012).

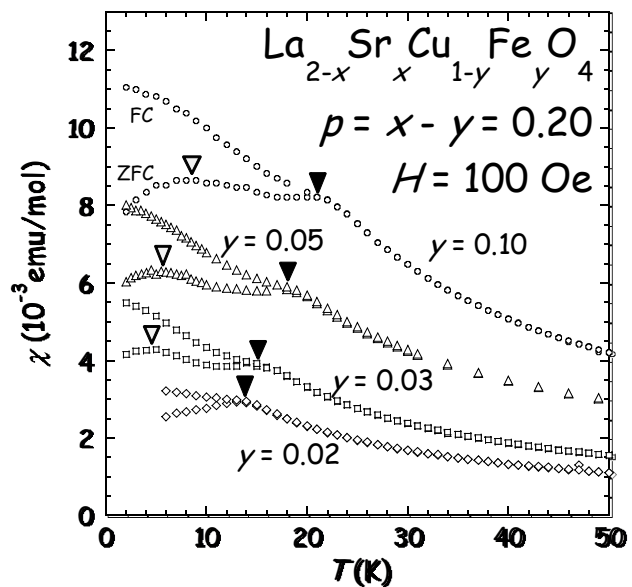


図. $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_{1-y}\text{Fe}_y\text{O}_4$ のホール濃度 $p (= x - y) = 0.20$ 、 $y = 0.02 - 0.10$ におけるゼロ磁場冷却 (ZFC) と磁場中冷却 (FC) の直流磁化率の温度依存性. \blacktriangledown と ∇ は ZFC で極大を示す温度 T_{g1} 、 T_{g2} をそれぞれ表す。

化学輸送法による FeGe 系化合物の 単結晶作製と物性評価

宮川真里奈¹、西原禎文^{1,2}、高阪勇輔³、秋光純³、井上克也^{1,2}

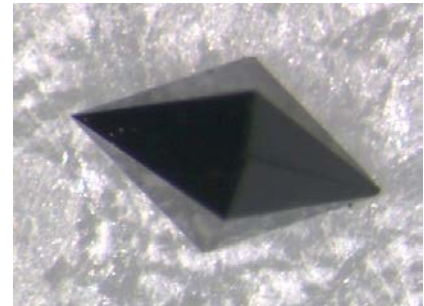
¹ 広島大院理、² 広島大 IAMR、³ 青学大理工

反転対称性が破られた磁性体は、Dzyaloshinsky-Moriya 相互作用によってスピンをらせんを巻く磁気構造を持つことがある。このような磁性体はキラル磁性体と呼ばれおり、それらの物性開発や物性測定など様々な研究が行われている。近年では、強磁性や強誘電性などの強制的秩序を合わせ持つ Multiferroics[1]やスピンを渦を巻く Skyrmion[2]など多くの興味深い物性が注目されている。

しかし、キラル磁性体となる物質は、磁気転移点が低く物性測定が困難であったり、結晶作製が難しいものもある。キラル磁性体の種類は多くはないので、一般性を見出すためにも新しい磁性体を発見する必要がある。そこで本研究では、新規キラル無機磁性体の単結晶合成を目的としている。

空間群が $P2_13$ である FeGe はキラル磁性体として知られており、磁気転移点は 280 K と非常に高い[3]。よって今回は、新たなキラル磁性体を獲得するため FeGe 系化合物の合成を試みた。

以前、当研究グループは管状炉を用いた化学輸送法によって新規単結晶 Fe_2Ge_3 を獲得したことを報告した。単結晶 X 線構造解析の結果から、晶系は Tetragonal、空間群は $P-4c2$ 、セルパラメーターは $a = 5.59 \text{ \AA}$ 、 $c = 8.98 \text{ \AA}$ 、 $V = 280 \text{ \AA}^3$ であることがわかった。磁性は Pauli 常磁性を示した。また、管状炉の中心温度を変えることで空間群の異なる 2 つの FeGe の単結晶を得た。[4] 構造解析の結果から、1 つは晶系が Hexagonal で $P6/mmm$ の空間群であり、セルパラメーターは $a = 5.05 \text{ \AA}$ 、 $b = 4.10$ であった。もう 1 つは、空間群が $P2_13$ でキラル磁性体である FeGe であった。キラル磁性体の FeGe については磁気測定を行い、磁気転移点やキラル磁性体に見られる特徴的な挙動を確認している。



当日は、これら一連の FeGe 系化合物の合成、構造、物性などについて報告する。

[1] W.Eerenstein, N.D.Mathur and J.F.Scott, *Nature*, **2006**, 442, 759-765.

[2] X. Z. Yu, Y. Onose, N. Kanazawa, J. H. Park, J. H. Han, Y. Matsui, N. Nagaosa & Y. Tokura *Nature*, **2010**, 465, 901-904

[3] B. Lebech, J. Bernhard, T. Freltoft, *J. Phys.: Condens. Matter* **1989**, 1 6105

[4] Marcus Richardson, *Acta Chemical Scandinavica*, **1967**, 21, 2305-2317.

構造不規則希土類合金における重い電子と超伝導

¹雨海有佑, ¹村山茂幸, ²小尾倅久, ²高梨弘毅

¹室蘭工業大学大学院 しくみ情報系領域, ²東北大学金属材料研究所

希土類金属を含む強相関電子系の研究は、一般に純良な単結晶による研究が行われる。一方近年、スクッテルダイト・準結晶・金属ガラス等の複雑構造固体の合成・作製が精力的に行われ、その強相関電子状態にも注目が集まっている。我々は、結晶構造を持たない希土類アモルファス合金を作製し、不規則構造体における強相関電子状態について研究を進めている。アモルファス合金の研究におけるユニークな点は、結晶化合物では存在しない合金を作製したり、組成比を不規則構造のまま自由に变化させたりすることが出来ることである。今回、このような特徴を生かし幅広い組成範囲での作製に成功した、希土類金属の Ce と 2 元結晶化合物を持たない磁性遷移金属の Mn を相手元素としたアモルファス (*a*-)Ce-Mn 合金および CeRu₂ 等の結晶化合物を持つ 4*d* 遷移金属の Ru を相手元素とした *a*-Ce-Ru 合金について紹介する。

(1) *a*-Ce-Mn 合金[1]

Ce 低濃度側の 25 K 以下の低温でスピングラス相が出現する。スピングラス転移温度は、Ce 濃度の増加と共に減少し、Ce60at%以上ではスピングラス相は消失する。Fig. 1 に電子比熱係数 γ の Ce 濃度依存性を示す。 γ は、Ce 濃度の増加と共に線形的に増大し、Ce 高濃度側では、通常金属の 200 倍もの値を示す($\gamma \sim 200 \text{ mJ/molK}^2$, Ce80at%)。さらに Ce 高濃度側の電気抵抗の低温において、巨大な係数 A を伴った T^2 依存性と ⁵⁵Mn NMR 測定において $1/T_1T = \text{constant}$ が観測されている。これらの結果から、*a*-Ce-Mn 合金の Ce 高濃度側では、不規則構造においても重い遍歴電子状態を形成していると考えられる。

(2) *a*-Ce-Ru 合金[2]

Ce 低濃度側では、超伝導に伴う電気抵抗 $\rho = 0$ と巨大な反磁性磁化が観測された(Ce15at%、 $T_c \sim 3.6 \text{ K}$)。Fig. 2 に超伝導転移温度 T_c と電子比熱係数 γ の Ce 濃度依存性を示す。 T_c は、Ce 濃度の増加と共に減少し、Ce50at%付近で消失する。一方、 γ は 50at%付近から急激に増大し、Ce80at%で $\gamma \sim 200 \text{ mJ/molK}^2$ の巨大な値を示す。XAFS 測定から Ce の価数は、Ce 低濃度の超伝導の組成領域では約+3.45 で Ce 高濃度の重い電子の組成領域では約+3.1 であることがわかった。

[1] S. Kikegawa *et al.*, J. Magn. Magn. Mater. **272-276** 72(2004); Y. Amakai *et al.*, Phys. Rev. B, **79** 245126(2009).

[2] Y. Amakai *et al.*, J. Magn. & Magn. Mater. **310** 416 (2007); Y. Li, *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn, **78** 094717(2009).

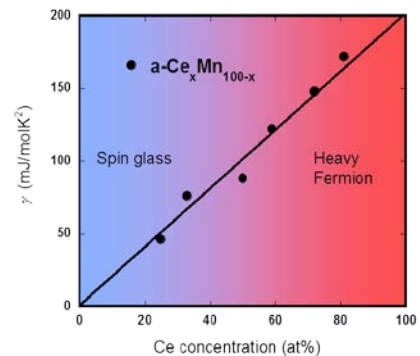


Fig. 1 *a*-Ce-Mn 合金の電子比熱係数 γ の Ce 濃度依存性

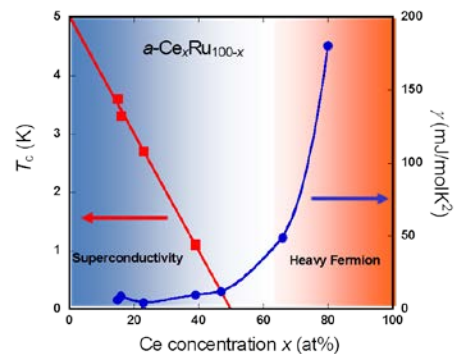


Fig. 2 *a*-Ce-Ru 合金の超伝導転移温度 T_c と電子比熱係数 γ の Ce 濃度依存性

URu₂Si₂ のパルス磁場下における超音波実験

柳澤 達也¹, 門別 翔太¹, 日高 宏之¹, 網塚 浩¹, 赤津 光洋², S. Yasin², S. Zherlitsyn²,
J. Wosnitza², K. Huang³, M. B. Maple³

¹北海道大学理学研究院, ²Hochfeld-Magnetlabor Dresden, ³Department of Physics, UCSD

URu₂Si₂ は体心正方晶 ThCr₂Si₂ 型(空間群 No.139, I 4/mmm)の結晶構造をとり、 $T_{HO} = 17.5$ K において「隠れた秩序(Hidden Order)」と呼ばれる、秩序変数・秩序波数が共に未解明の相転移を示す [1]。また、本系はさらに $T_c = 1.4$ K で異方的超伝導転移を示す重い電子系物質である。隠れた秩序において、零磁場 μ SR や ²⁹Si-NMR 実験では T_{HO} 以下で顕著な内部磁場が観測されないことから、内場が零か、もしくはあっても極微少であることがわかっている [2]。そのため、隠れた秩序変数の候補として、非磁性の電気多極子が提案されている [3]。一方、URu₂Si₂ の隠れた秩序相内($T \sim 1.5$ K)で c 軸に磁場を印加した場合、35 T から 3 段のメタ磁性転移が起こり、 c 軸磁化率が增大することがこれまでにわかっている [4]。本研究ではドレスデン強磁場センターにあるパルスマグネットを用いて最大磁場 68.7 T のパルス磁場下で超音波測定を行い、強磁場下における弾性応答の観点から URu₂Si₂ の低温電子状態を調べた。一般に、 $5f$ 電子状態を局在的に扱う場合、弾性応答は局在 $5f$ 電子が持つ電気四極子の応答として理解できる。一方、 $5f$ 電子を遍歴的に扱う場合、弾性応答は電子格子相互作用を通じてバンドの状態を反映する。このように超音波によって試料中に誘起される歪み場は磁場と直交するため、磁場中での超音波測定は上記の電子状態を分光学的に調べる上で強力な実験手法である。

$T = 1.5$ K において c 軸方向にパルス磁場をかけて弾性定数 $(C_{11}-C_{12})/2$ を測定した結果、メタ磁性転移近傍で $(C_{11}-C_{12})/2$ は階段状の異常を示しつつ、50 T まで約 0.5 % 増大した。その変化量は零磁場下の温度変化において 100 K 付近から T_{HO} までに生じる緩やかな弾性定数の減少(ソフト化)の大きさ(0.63 %) とほぼ一致する。一方、 c 軸磁化率も $(C_{11}-C_{12})/2$ と良く似た磁場・温度依存性を示すことから、それらの起源が共通の根を持っている可能性が示唆される。温度依存性において低温で生じる c 軸磁化率と $(C_{11}-C_{12})/2$ の減少は、 $5f$ 電子の混成効果と結晶場効果の複合によって説明できると考えられるが、遍歴性と局在性の二重性を持つ $5f$ 電子系を記述するための基本描像が未だ定まっていないため、その判別は難しい。いずれにせよ、 $(C_{11}-C_{12})/2$ モードは対称性を低下させる正方晶歪み (Γ_3 : 基底関数 x^2-y^2)に対応することから、URu₂Si₂ では Γ_3 対称性の格子不安定性を伴う電子状態が低温で形成されており、 c 軸磁場で生じるメタ磁性転移によって隠れた秩序が壊れるのと同時にその電子状態が回復していることが、本研究結果より推測される。

[1] T. T. M. Palstra *et al.*, Phys. Rev. Lett. **55**, 2727 (1985); M. B. Maple *et al.*, Phys. Rev. Lett. **56**, 185 (1986); W. Schlitzky *et al.*, Z. Phys. B **62**, 171 (1986).

[2] S. Takagi *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **76**, 033708 (2007).

[3] H. Kusunose *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **80**, 084702 (2011).

[4] M. Jaime *et al.*, Phys. Rev. Lett. **89**, 287201 (2002).

カゴ状化合物 SmBe_{13} の低温物性

日高宏之, 山崎聖悟, 清水悠晴, 門別翔太, 田端千紘, 柳澤達也, 網塚浩
北海道大学, 理学研究院

これまで希土類元素 Sm を含む化合物は, “磁気的な Sm^{3+} ($J = 5/2$)”と“非磁気的な Sm^{2+} ($J = 0$)”間の価数揺動に起因した特異な物性(例えば SmS などの金属-非金属転移 [1])を示す系として主に研究が行われてきた. しかし近年, Sm イオンが他の元素で構成されたカゴの内部に閉じ込められた構造を持つ“ Sm 系カゴ状化合物”が強相関係における新たな興味の対象となっている. この系においては磁場に鈍感な重い電子状態や秩序状態が発見されており, カゴ状構造に起因した“ラットリング”と呼ばれる局所的な非調和格子振動や $4f$ 電子の持つ多極子自由度との関連が指摘されている[2, 3].

SmBe_{13} もまたカゴ状構造を有する金属化合物である. その結晶構造は NaZn_{13} 型立方晶で, Sm イオンは 24 個の Be で構成されたほぼ球状のカゴに囲まれている(図 1 参照) [4, 5]. 基礎物性に関しては 1975 年の Bucher らによる唯一の報告があり[4], 温度 9 K 付近で反強磁性秩序を起こすことが指摘されている. しかし, それ以降の研究報告はなされておらず, Sm の価数や結晶場状態など多くのことが不明のままである.

そこで最近, 我々の研究グループでは SmBe_{13} の単結晶を Al-Flux 法により育成し, 磁場中比熱, 磁化, 電気抵抗測定を行った. 我々の試料を用いた比熱測定では $T_0 = 8$ K 近傍に大きなピーク型の異常が現れ, 他の測定でも同じ温度で異常が観測された. 高温側の帯磁率からは Sm イオンの有効磁気モーメントが $0.72 \mu_B/\text{Sm}$ (Sm^{3+} 自由イオンの場合 $0.846 \mu_B/\text{Sm}$)と見積もられ, さらに磁気エントロピーは約 40 K で $R \ln 6$ に達することが明らかになった. これらの結果は Sm の価数はほぼ 3 価であり, 立方晶場で期待される Γ_7 二重項と Γ_8 四重項の結晶場分裂幅が 40 K 以下と比較的小さいことを示唆している. 最も興味深いのは T_0 での異常が少なくとも 8 T までの磁場に対して鈍感であることである. この結果から我々は, T_0 異常は Bucher らが指摘したような単純な反強磁性秩序ではなく, 上記の化合物同様カゴ状構造に起因した新奇な現象が起きているのではないかと考えている.

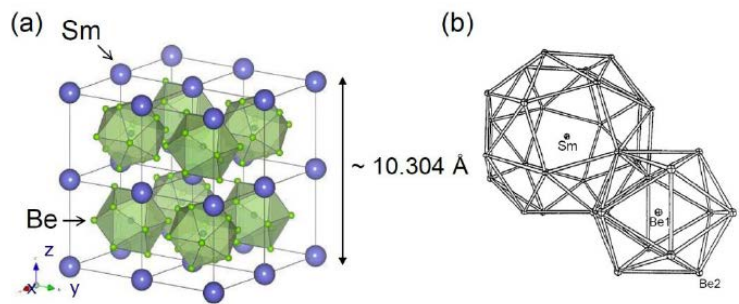


図 1 SmBe_{13} の結晶構造:(a)単位胞 (b)カゴ状構造

- [1] M.B. Maple and D. Wohlleben, Phys. Rev. Lett. **27**, 511 (1971).
- [2] S. Sanada *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **74**, 246 (2005).
- [3] R. Higashinaka *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **80**, 093703 (2011).
- [4] E. Bucher *et al.*, Phys. Rev. B **11**, 440 (1975).
- [5] M.W. McElfresh *et al.*, Acta Cryst. C **46**, 1579 (1990).

パルス磁場を用いた $\text{SmOs}_4\text{Sb}_{12}$ の超音波測定

門別翔太¹, 柳澤達也¹, 日高宏之¹, 網塚浩¹, 赤津光洋², 根本祐一²,

後藤輝孝², S. Yashin³, S. Zherlitsyn³, J. Wosnitza³

¹北大理, ²新潟大, ³HLD

充填スクッテルダイト化合物 $\text{SmOs}_4\text{Sb}_{12}$ は, 空間群 $Im\bar{3}$ に属するカゴ状化合物である. 本物質の比熱から見積られる電子比熱係数は $\gamma \sim 820 \text{ mJ mol}^{-1} \text{ K}^{-2}$ と大きく[1], 32 T の高磁場中でもほとんど変化しないことが分かっている[2]. このことは, 単なる g 因子の違いや, Ce や Yb 化合物でみられる従来型の磁気近藤効果では説明できない. また, 本物質は $T_c = 2.5 \text{ K}$ で弱い強磁性転移を示す. 静水圧下において, 電気抵抗の T^2 の項がピークを持ち, T_c において Sm イオンの局所電荷揺らぎに伴う NQR 信号が消失するなど[3], 低温秩序相への多極子自由度の関与が指摘されている. 本物質の Sm の価数は, 20 K 以下で 2.76 価であることが見積られている[4]. Sm^{3+} の J 多重項の基底状態は $J = 5/2$ で, 立方晶の結晶場中で Γ_7 二重項と Γ_8 四重項に分裂する. 過去に行われた実験からは, 結晶場基底状態は Γ_8 四重項であることが示唆されているが[1], いまだ確証は得られていない. もし, Γ_8 四重項基底状態であるとする, 低温秩序相への多極子秩序の関与の可能性が残る.

本研究では, 150 ms のパルス磁場を用いて弾性定数 $C_{11} = C_B + 4/3(C_{11}-C_{12})/2$ の磁場変化の超音波測定を 62 T まで行った. 実験には, Sb 自己フラックス法を用いて作成した 1 mm^3 程度の単結晶試料を, 慎重に研磨して使用した. 超音波の発振には厚さ $100 \mu\text{m}$ の LiNbO_3 トランスデューサーを使用し, その基本周波数である 30 MHz で測定を行った. 図1に本実験で得られた, 1.5 K, 4.2 K, 10.27 K における弾性定数 C_{11} の磁場依存性を示す. 超音波の伝播方向, 磁場方向はともに $\langle 001 \rangle$ 方向である. 各温度で見られる振動成分は, 残留フラックスの Sb による $1/H$ に比例した音響ドハース振動として説明できる. その振動成分を除けば, 4.2 K において, 励磁につれて弾性定数 C_{11} が増大する傾向が見られる. 本実験の結果は, バルクモジュラス C_B の変化が小さいと仮定すると, 結晶場基底状態が Γ_8 四重項であることを仮定した場合の Γ_3 対称性の四極子感受率の磁場依存性で説明できる.

[1] S. Sanada *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **74** (2005) 246.

[2] Y. Aoki, 日本物理学会 2010 年秋季大会 24pTA-7.

[3] H. Kotegawa *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **77**(2007)Suppl. A 90.

[4] M. Mizumaki *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **76** (2007) 053706.

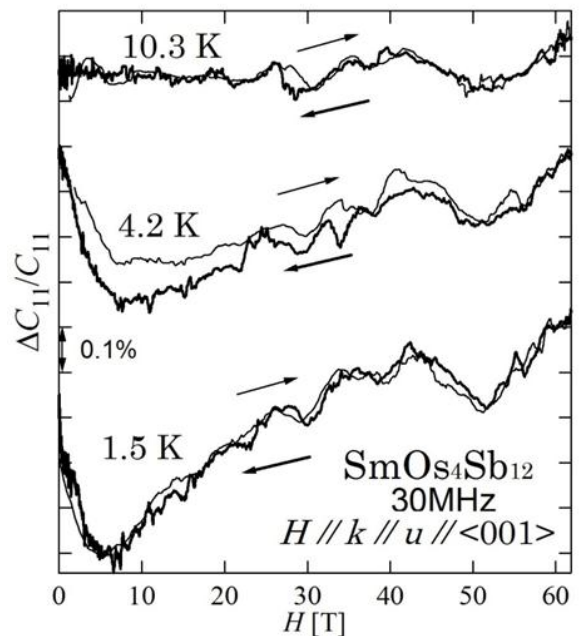


図1 $\text{SmOs}_4\text{Sb}_{12}$ の弾性定数 C_{11} の磁場依存性. 各データ点を 500 点で, 平均して表した.

URu₂Si₂ の X 線構造解析

田端千紘¹, 三浦植幸¹, 安孫子和弘¹, 日高宏之¹, 柳澤達也¹, 横山淳², 網塚浩¹,
小林賢介³, 熊井玲児³, 中尾裕則³, 村上洋一³
北大理¹, 茨城大理², KEK-PF³

URu₂Si₂ (ThCr₂Si₂ 型体心正方晶, 空間群 *I4/mmm*) は、 $T_0 = 17.5$ K で起こる相転移の秩序変数が明らかにされておらず、25 年以上の間多くの関心を集めてきた物質である[1-3]。この「隠れた秩序」と呼ばれる相転移の謎を解明するために、今日まで様々な理論的・実験的研究が行われている。ミュオンスピン緩和法による研究も行われており、 T_0 以下で緩和率がごく僅かに増加する振る舞いが観測されている[4,5]。縦磁場効果を含めた詳しい解析から、この振る舞いはミュオンの感じる微弱な静的内場分布の幅が T_0 以下で僅かに増大する (0.1 G のオーダー) ことによるものと解釈される。しかし、この内部磁場の変化が、隠れた秩序によって自発的内場が生じている、すなわち隠れた秩序が時間反転対称性を破ることを示しているのか、あるいは、結晶構造の内部変化によってミュオンサイトの結晶学的な環境が変化したことによるものなのかは、内場の変化が極めて小さいので判別が難しい。

この系の結晶構造 (図 1) に関しては、X 線や中性子線による回折実験や熱膨張測定などによって格子の低対称化の有無について調べられており[6-8]、*I4/mmm* からの対称性の低下が実験の精度内で無いことが報告されている。その一方、結晶構造の内部パラメータについては室温での値の報告が 1 件あるのみで[9]、転移温度付近を調べた例は報告されていない。

本研究では放射光 X 線を用いて、URu₂Si₂ の単結晶試料に対して X 線回折実験を低温で行い、結晶構造の内部パラメータ (Si 原子の z パラメータと各原子の原子変位パラメータ) の温度変化を調べた。構造精密化プログラム Shelx[10]を用いて行った解析の結果、Si 原子の z パラメータと U 原子の原子変位パラメータに T_0 付近で小さな異常がみられた。20 K 以下の低温で原子変位パラメータが実際に変化しているとは考えにくいと、我々は U 原子の周りの電子密度分布に何らかの変化が起こっているのではないかと考えている。特に、Shelx による解析は球対称の原子散乱因子を仮定しているため、得られたパラメータの変化は電荷密度分布の異方的な変化を反映している可能性がある。

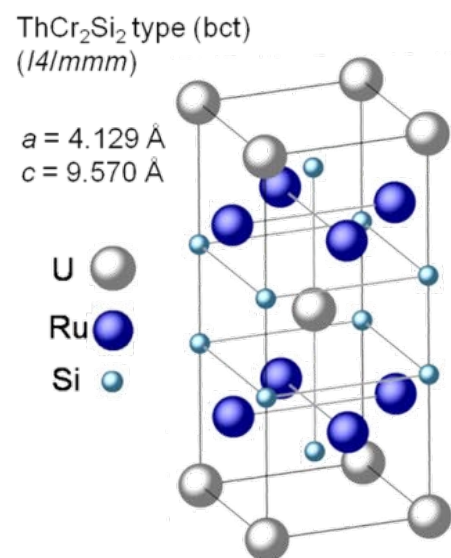


図 1 URu₂Si₂ の結晶構造

- [1] T.T.M. Palstra *et al.*, Phys. Rev. Lett. 55, 2727 (1985).
- [2] M.B. Maple *et al.*, Phys. Rev. Lett. 56, 185 (1986).
- [3] W. Schlabitz *et al.*, Z. Phys. B 62, 171 (1986).
- [4] M. W. Mcelfresh *et al.*, Phys. Rev. B 35, 43 (1987).
- [5] H. Amitsuka *et al.*, Physica B: Condens. Matter 312, 319 (2002).
- [6] N. Kernavanois *et al.*, Physica B 259-261, 648 (1999).
- [7] P.G. Niklowitz *et al.*, Phys. Rev. Lett. 104, 106406 (2010).
- [8] A. de Visser *et al.*, Phys. Rev. B 34, 8168 (1986).
- [9] G. Cordier *et al.*, J. Less-Common Met. 110, 327 (1985).
- [10] Sheldrick. G.M, Acta Cryst., A64, 112-122, (2008).

強磁性体 CeAg の圧力効果

大谷真也, 日高宏之, 巽かおり, 清水悠晴, 五十嵐英紀, 柳澤達也, 網塚浩
北海道大学, 理学研究院

CsCl 型体心立方晶構造を持つ CeAg は常圧において, $T_Q = 16\text{ K}$ で強四極子秩序 (正方晶への構造相転移を伴う) を示し, さらに低温の $T_C = 5.5\text{ K}$ で強磁性秩序を起こすことが知られている[1]. 高压下ではわずか 0.2 GPa で強四極子秩序はバンドヤーンテラー効果による正方晶への構造相転移に切り替わり, さらに 2 GPa 以上では正方晶から未解明の結晶構造への相転移が誘起される. さらに, これら圧力誘起高压相における磁気特性なども未だ不明である. 一方, 強磁性転移の圧力効果に関してはいくつかの先行研究があるものの, 2 GPa 以上の振る舞いにコンセンサスが得られておらず, 強磁性の消失する臨界点の存在も確認されていない[2,3,4]. 最近, 我々は CeAg における圧力誘起構造相転移および強磁性秩序に関する圧力効果を再検証するためにアーク溶解によって作成された多結晶試料を用いた高压下電気抵抗測定を行った.

本研究で得られた構造相転移の圧力依存性はそれぞれ過去の結果と良く一致した. また, 本研究で得られた強磁性転移の圧力依存性を過去の文献の結果とあわせて図 1 に示す. 2.5 GPa 以上で電気抵抗の二階微分に新たな異常が観測された. 低压域における T_C の圧力依存性は過去の結果と良く一致している. しかし, 2.5 GPa 以上では電気抵抗の温度変化の二階微分に 2 つの異常が観測された. この 2.5 GPa 以上における高温側の異常は Kurisu らの結果に, 低温側の異常は Eiling や Cornelius らの結果にそれぞれ対応しているように見える. Cornelius らの結果が交流帯磁率によるものであることを考慮すると, 高温側の転移は非磁性的な転移であり, 低温側の転移が強磁性転移に対応すると考えられる. この結果から, 強磁性転移は高压で消失し, その臨界圧力は $4 - 5\text{ GPa}$ 近傍にあると期待される.

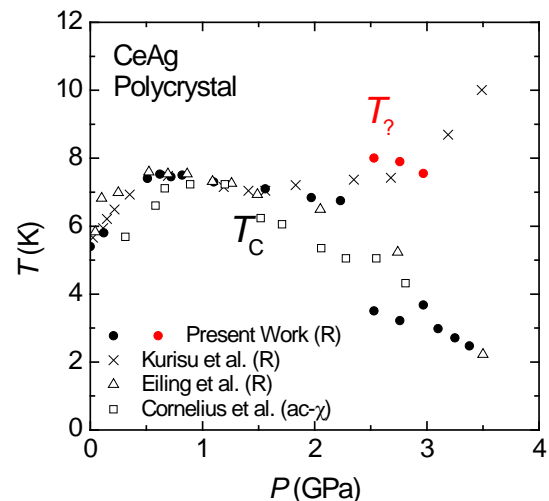


図 1: CeAg における強磁性転移の圧力依存性 [2,3,4]

- [1] M. Kurisu *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **52** (1983) 4349.
- [2] M. Kurisu *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **56** (1987) 4064.
- [3] A. Eiling and J.S. Schilling, Phys. Rev. Lett. **46** (1981) 364.
- [4] A.L. Cornelius *et al.*, Phys. Rev. B **55** (1997) 14109.

FeNi 薄膜成長過程における表面構造と磁気異方性観察

酒巻真粧子, 雨宮健太

高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所

垂直磁気異方性を有する磁性薄膜の候補の一つとして、高い一軸異方性を示す $L1_0$ 型の FeNi 規則合金が期待されている。この構造を実現するには fcc(001)基板に Fe と Ni を 1 層ずつ交互に蒸着すればよいはずだが、基板や成長条件の最適化が難しく、思うような垂直磁気異方性は得られていない。本研究では Fe や Ni と整合性の高い Cu(001)単結晶を基板として用い、FeNi 多層膜の作製と成長過程における表面構造と磁気異方性の観察[1]を *in situ* で行った。表面構造と磁気異方性の観察はそれぞれ RHEED と X 線磁気円二色性 (XMCD) を測定して行った。XMCD からは元素選択的に磁気異方性の情報を得ることができだけでなく、原子層レベルの分解能を有する深さ分解法[2]を適用することにより、表面一層や埋もれた層(例えば Ni に挟まれた Fe 層)からの情報を、内部層からのものと区別して抽出することができる。

実験は KEK Photon Factory BL-7A と 16A において同じ超高真空チャンバー内で行った。Fe と Ni は電子衝撃加熱法によって蒸着した。ウエッジ状の Ni(0-21 ML)を下地層として用い、その上に Fe と Ni を 1 ML ずつ交互に積層した。Cu(001)上の Ni は 7-11 ML で面内から面直へのスピン再配列転移があり、また膜厚に応じて格子定数が変化することが知られている。このことを利用し、FeNi 層や Ni 下地層の膜厚を系統的に変えながら格子定数を制御し、各条件において面内あるいは面直の XMCD を得た。図は Ni に挟まれた Fe 層の軌道磁気モーメントの面内格子定数(a)依存性を示す。 a が小さくなる程面直の軌道磁気モーメントは増大し面内のモーメントは減少することから、垂直磁気異方性が増大することがわかる。一方 Fe に挟まれた Ni 層は a に対する磁気異方性の変化は小さいことから、高い垂直磁気異方性を実現するためには適当なバッファ層を挟むなどして Fe 層に圧縮歪みを与えることが有効であると予想される。

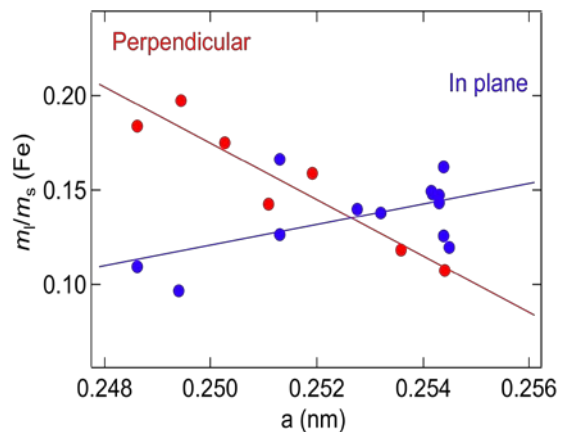


図 Ratio of orbital magnetic moment (m_l) to spin moment (m_s) of Ni-sandwiched Fe layer as a function of in-plane lattice constant a .

[1] M. Sakamaki and K. Amemiya, Appl. Phys. Express 4 073002 (2011)

[2] K. Amemiya, S. Kitagawa, D. Matsumura, H. Abe, T. Ohta and T. Yokoyama, Appl. Phys. Lett. 84 936 (2004)



First-Principles Study of Adsorption of Lithium on Graphene for High Capacity Hydrogen Storage

Amba Datt Pant^{1,2}, Chiranjivi Bhattarai¹, Narayan Prasad Adhikari¹, Sitaram Prasad Byahut¹, and Eiko Torikai²

¹Central Department of Physics, Tribhuvan University, Kathmandu, Nepal

²Interdisciplinary Graduate School of Medicine and engineering, University of Yamanashi, 4-3-11 Takeda, Kofu, Yamanashi 400-8511, Japan

Developing safe and efficient hydrogen storage is essential in green energy conversion technology for sustainable environment and society [1]. The theoretical prediction of high-capacity hydrogen storage by metalized graphene by Ataca et al. [2] and hydrogen chemisorption by Elias et al. [3] called increasing attention of theoretical works. The prediction of hydrogen storage on Li adsorbed graphene system attains up to 16.0 wt. % with the optimum Li coverage in the latest work by Zhou et al. [4]. The theoretical works so far concentrate on the stability and location of the Li and hydrogen as shown in Fig. 1.

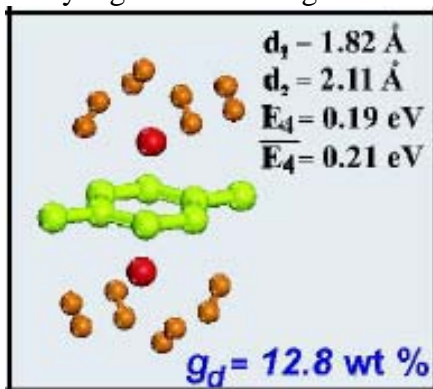


Fig. 1 Absorption of upto 4H₂ molecules by adsorbed Li on (2x2) cell of graphene [2].

In order to verify the microscopic picture of hydrogen storage in metalized or passivated graphene, the muon spin rotation method is expected to be powerful tool as demonstrated for NaAlH₄ by Kadono et al [5] and for LiBH₄ by Sugiyama et al. [6]. For the purpose of theoretical interpretation of muon and muonium hyperfine interaction in hydrogen chemisorptions and physisorptions, we intend to establish the theoretical model based on our preliminary study on Li adsorption on hydrogen passivated graphene system by three steps as follows:

First step: Li adsorption on hydrogen passivated graphene by using Hatree-Fock (HF) methods and density functional theory (DFT) implemented by Gaussian 03 set of programs with 3-21G basis set [7].

We found that the binding energy of the graphene cluster increases with increasing the number of carbon atoms in the graphene sheets. In the study of Li adsorption, we used boundary of the graphene terminated with the hydrogen atoms (H-graphene), since the system Li-graphene is not stable due to the significant edge effect of the finite size of the graphene. The binding energy of Li on H-graphene clusters that is adsorption energies of Li-C₁₆H₁₀, Li-C₃₀H₁₄, Li-C₄₈H₁₈ and Li-C₇₀H₂₂ are 0.47, 0.97, 1.33 and 1.42 eV, respectively. The Fig. 2. shows the optimized geometry for the adsorption of the Li atom on the H-passivated graphene sheet that shows optimized geometry of Li is above the centre of hollow position of hexagon rather than the top and the bridge position which agrees with the previous work [8].

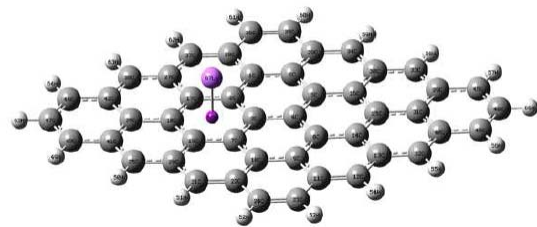


Fig. 2. Optimized geometry for the adsorption of Li atom on the H-passivated graphene C₄₈H₁₈ cluster. Adatom distance (h) from H-graphene is 1.76 Å.

Second step: Hydrogen chemisorptions and graphene with Li adsorption to reproduce the results by Zhou et al.[4] in preparation.

Third step: By using the model established in the second step, we will study the hyperfine problem of muon and muonium in graphene with Li adsorption.

References:

- [1] R. Coontz and B. Hanson, *Science* **305**, 957 (2004).
- [2] C. Ataca et al., *Appl. Phys. Lett.* **93**, 43123-43126 (2008).
- [3] D.C. Elias et al., *Science* **323**, 610 (2009).
- [4] Weiwei Zhou et al., *J. Phys. Chem. Solids*, **73**, 245-251 (2012).
- [5] R. Kadono et al., *Phys. Rev. Lett.* **100**, 26401 (2008).
- [6] J. Sugiyama et al., *Phys. Rev.* **B81**, 092103 (2010).
- [7] Gaussian 03, Revision E.01, M. J. Frisch, et al., Gaussian, Inc., Wallingford CT, (2004).
- [8] Kevin T. Chan, et al., *Phys. Rev.*, **B 77**, 235430 (2008).

La₂CuO₄におけるミュオン位置の再検討 ==ミュオン位置計算プログラム開発へ向けて==

Budi Adiperdana^{1,2}, 渡邊功雄^{1,2}, Irwan A. Dharmawan², Rustum Siregar², Risdiana²,
川崎郁斗¹, Shukuri Slaiman³, M. Ismail M. Ibrahim³

¹ 理化学研究所仁科加速器研究センター,

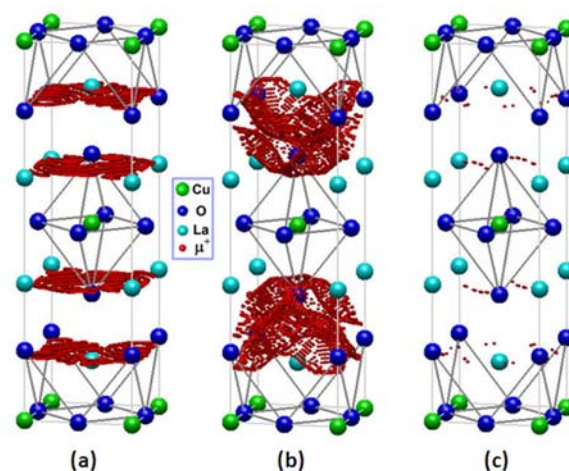
² Universitas Padjadjaran,

³ Universiti Sains Malaysia

物質中のミュオン位置は μ SR 研究において極めて重要な情報である。物質中のミュオンの位置がわかれば超微細場計算などを通じたスピン構造の研究や電子状態に関するより深い議論が可能になる。ミュオンの位置を実験結果から探る試みは過去にさまざまな試みがなされてきているが、多くは計算機科学の専門知識を必要とするために限られた研究者のみが実施可能であった。このため、 μ SR を展開する多くの研究者が強く欲する情報であるにも関わらず、簡便に活用できる計算ツールが存在しおらず、 μ SR の研究展開に様々な律速をかけているといえる。我々は、 μ SR の活用を開始したばかりであるような研究者も含め、より多くの結晶系・物質系におけるミュオン位置計算が簡便に行えるようなプログラムの開発に取り組んでいる [1]。

プログラムの構築に先立って、計算方法や手法の確立のために、La 酸化物高温超伝導体の簿物質である La₂CuO₄ におけるミュオン位置の再計算を展開している。La₂CuO₄ は発見初期より μ SR データが蓄積されており、かつ中性子散乱実験よりスピン構造等が明確されている。一方、ポテンシャル計算等も数多くなされており、実験・計算の両面からプログラム構築のための情報を提供可能ない物質例である [1]。

図1に現在構築を進めているプログラムの一部で磁気双極子情報を計算した結果を示す。磁気情報からもある程度のミュオン位置情報がつかめるが、我々はさらにポテンシャル計算を用いてこれらの候補点の有効性を確認するためにポテンシャル計算を実施している。講演においては、ポテンシャル計算の現状およびプログラム開発の現状を報告する。また、プログラム開発に関してミュオン位置計算の国際会議の実施を計画している (Universiti Sains Malaysia, Penang, Malaysia, 11月1日・2日) ので、その情報も合わせて報告する



超低速ミュオンと偏極電子銃によるスピントロニクス物質開発

永嶺謙忠^{1,2}, 鳥養映子³, 下村浩一郎², 髭元亘⁴, 伊藤孝⁴,

吉岡正和⁵, 小林仁⁵, 栗原俊一⁵, 大場俊幸⁵, 松本浩⁵, 山本将博⁵

¹理研原子物理, ²KEK ミュオン科学研究系 ³山梨大学医学工学総合研究部,

⁴JAEA 先端基礎研究センター, ⁵KEK 加速器研究施設

スピン偏極正ミュオンに束縛された電子とのスピン交換相互作用を用いて、半導体中の伝導電子スピン偏極を観測する方法が提唱され、予備実験が実施されている [1]。最近 n 型 GaAs 中に円偏光レーザーで誘起されたスピン偏極伝導電子について、このミュオン法が本格的な成功をみている[2]。この手法を多種の半導体に一般化し、伝導電子スピン偏極の物性を究めるために、スピン偏極電子銃を用いて電子を加速注入し、同時入射された超低速ミュオンによって調べる実験を準備している。

この実験手法には次の特徴がある。

1)ミュオニウム・負ミュオニウムは殆ど全ての半導体中に安定に存在するので、この方法は多種多様な系に適用出来る。Si, Ge, グラファイト等光学的手法で電子スピン偏極が観測出来ない系にも使える。

2)超低速ミュオンによってミュオンの飛程が短くなり、薄膜試料を対象に出来ると共に、加速注入する電子密度を増大させる事が容易で、通常の電子銃を用いて、このミュオン法にとって十分な感度を得ることが出来る。状況を表 1 に纏めた。この手法が成功をみた n 型 GaAs のレーザー誘起の場合と同じ電子密度を得るための、電子銃のエネルギーと電流値を示した。超低速ミュオンの実現で電子銃の持つべき性能が容易となる。

残された検討課題は、加速注入されたスピン偏極電子が、伝導電子として機能するまでに、偏極を如何に維持できるか、である。十分な理論計算は存在しない。

現在、これまでの KEK 加速器グループでの実績[3]を踏まえて、スピン偏極電子銃の設計・製作が進行中で、平成 25 年度中の実験開始を目指している。

表1 n 型 GaAs 実験で使用されたレーザー誘起スピン偏極電子密度 $8 \times 10^{13}/\text{cm}^3$ を実現するための、色々なミュオンエネルギーに対する電子のエネルギーと強度

R(muon&electron) in Cu (μm)	E(muon) (keV)	E(ele.) (keV)	Intensity of 1cm^2 dia per Pulse	Electron for $8 \times 10^{13}/\text{cc}$ Av.(25Hz)	Stopping Peak(10ns)	
0.008		1	0.07	6.4×10^7	0.26 nA	1.0 mA
0.05		10	0.7	4.0×10^8	1.6 nA	6.4 mA
0.5		100	7	4×10^9	16 nA	64 mA
20		1000	70	1.6×10^{11}	640 nA	2.56 A

[1] E. Torikai et al., *Physica B* **289-290** (2000) 558.

[2] K. Yokoyama et al., *Physic B* **404** (2009) 856-858; *Physic B* in press (2012).

[3] T.Omori et al., *Phys. Rev. Lett.* **67** (1991) 3294.

銅酸化物 $\text{Cu}_6\text{O}_8\text{MCl}$ ($\text{M} = \text{cation}$)の磁気・輸送特性

川島健司, 竹田裕貴, 安田慎吾, 秋光純

青山学院大学, 理工学部

銅酸化物 $\text{Cu}_6\text{O}_8\text{MCl}$ ($\text{M}=\text{cation}$, $\text{X}=\text{anion}$) は、銅酸化物超伝導体の CuO_2 面に類似した CuO_4 ユニットからなる籠状構造(Cu_6O_8 ケージ)を取り、その Cu_6O_8 ケージ内には、陰イオン (Cl^-)を内包している[1]。また、 Cu_6O_8 ケージ同士は互いに面共有で繋がっており、その隙間に陽イオン(M)が入る込み、全体としては 3 次元ネットワークを形成している[1]。 $\text{Cu}_6\text{O}_8\text{MCl}$ では、現在までに数種物質の化合物の存在が報告されているが、詳細な物性の解明には至っていない[2]。

本研究では、多結晶 $\text{Cu}_6\text{O}_8\text{MCl}$ ($\text{M}=\text{In, Pb, Y, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu}$)の単相試料の合成に成功し、各種物性評価を行なった。直流電気抵抗率測定の結果、 M サイトを 3 価 (Y^{3+} etc)のイオンが占有するときは金属的、4 価(Pb^{4+})イオンが占有するときは半導体的振舞いをする事が判明した。このことより、 $\text{Cu}_6\text{O}_8\text{MCl}$ では M サイトイオンの価数を変化させることで基底状態がコントロール可能であることが考えられる。直流磁化率測定の結果、 $\text{M} = \text{Pb, Tb}$ を除く化合物では、常磁性的振舞いを確認した。また $\text{Cu}_6\text{O}_8\text{MCl}$ ($\text{M} = \text{Pb, Tb}$)では、100K 以下において磁気転移点を確認した。有効ボーア磁子(P_{eff})を計算した結果、 $\text{M} = \text{In, Pb, Y, Lu}$ では、 $P_{\text{eff}} = 1.77 \sim 1.96 \mu_B$ となり、系の中に Cu^{2+} ($S = 1/2$)イオンが存在していることを示唆する結果を得た。その他の化合物では、算出した P_{eff} の値より、 M サイトの希土類イオン上に局在スピンの存在していることが示唆される。過去に行った $\text{Cu}_6\text{O}_8\text{YCl}$ の室温における構造解析より、隙間に存在する Y^{3+} イオンや Cl^- イオンの等方性温度因子(U_{iso})は、ケージを形成する O イオンや Cu イオンと比較して、4~6 倍前後の大きな値を取ることが判明している[3]。そこで、全ての化合物に対し、熱電特性の評価を行った。その結果、低い熱伝導度($\sim 0.3 \text{ W/Km@350K}$)を確認した。また、ゼーベック係数は、低温で符号が反転後、最大 $\sim 20\text{mV/K}$ の値を示した。これらの値は、他の籠上構造化合物と同程度の値を示していることから[4]、 $\text{Cu}_6\text{O}_8\text{MCl}$ でもは、隙間イオンが系の物性に参与していることが考えられる。

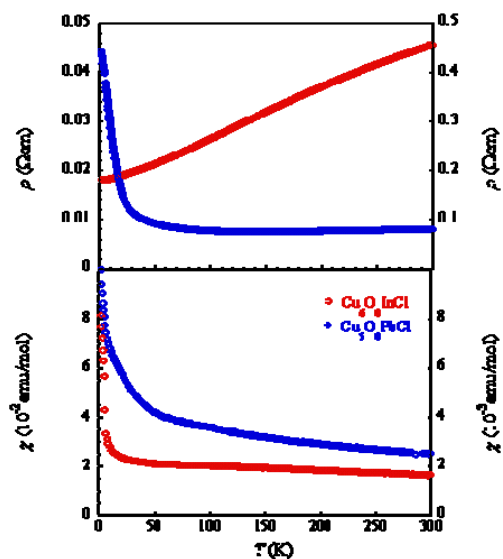


Fig. 1 $\text{Cu}_6\text{O}_8\text{MCl}$ ($\text{M} = \text{Y}^{3+}, \text{Pb}^{4+}$)の磁化率及び電気抵抗率の温度依存性。

[1] M. D. Nunez-Regueiro *et al.*, *J. Phys* **4** (1994) 160-174.

[2] I. Yazawa *et al.*, *Jpn. J. Appl. Phys* **29** (1990) L1693.

[3] K. Kawashima *et al.*, *Physica C to be published in J. Phys: Conf. ser.*.

[4] L. Qui *et al.*, *Phys. Rev. B* **70** (2004) 035208.

研究成果報告のお願い

本学術領域の成果に基づきました発表につきましては、以下のようにまとめてお知らせいただくようお願いいたします。

班名：（研究計画班 A01(02, 03, 04) または公募班と記入ください。）

研究代表者氏名

（1）発表論文

著者名（全員）、論文標題、発表雑誌の名称、巻、発行年、最初の頁－最後の頁、査読の有無

- ・研究代表者・研究分担者・連携研究者に下線をお願いいたします。
- ・図書の場合は、著者名、出版社、書名、発行年、総ページ数を記載してください。

（2）口頭発表

発表者名（全員、フルネーム）、発表標題、学会名等、発表年月日、発表場所

- ・研究代表者・研究分担者・連携研究者に下線をお願いいたします。

（3）研究成果による産業財産権（特許等）

産業財産権の名称、発明者、権利者、産業財産権の種類、番号、出願年月日、国内・外国の別

- ・出願中と取得済みを分けて記入ください。

（4）その他

受賞、注目論文、新聞発表、その他（1）－（3）に当てはまらない成果についてお知らせください。

本新学術領域研究の成果を論文などで出版する際には、次のような謝辞を入れてください。

This work was supported by a Grant-in-Aid for Scientific Research on Innovative Areas "Ultra Slow Muon" (No. #####) of The Ministry of Education, Culture, Sports, Science, and Technology, Japan.

[和文例]

本研究は、文部科学省科学研究費補助金新学術領域研究「超低速ミュオン」(No. #####)を受けて行われた。

#####には各課題の課題番号が入ります。

第二回領域会議 プログラム

	8月30日		8月31日		9月1日
9:45	挨拶の辞	9:00	セッション3 表面界面磁性と伝導 壬生、坂井、兩宮、橋詰	9:00	セッション6 超低速ミュオン顕微鏡 牧村、長友、ストラッサー、友野
10:00	各班の進展(各班代表)			10:40	休憩
11:40	休憩	10:40	休憩	10:55	セッション7 生命と水 新村、菅原、永嶺
11:50	基調講演 大谷	10:55	セッション4 埋もれた界面とスピン流 竹田、金、鳥養、伊藤	12:10	昼食
12:30	昼食(拡大総括班会議)	12:40	事務連絡、写真撮影	13:05	セッション8 超伝導と隠れた秩序 小田、足立、笠原、金子
14:00	セッション1 触媒と表面反応 朝倉、有賀、下村、大野、杉山	12:55	昼食	14:50	休憩
16:05	休憩	13:50	ポスターセッション	15:05	セッション9 ビーム/レーザー輸送と 熱ミュオニウム源 池戸、中村、藤原、石田
16:20	セッション2 カイラル磁性と分子性導体 岸根、戸川、高阪、妹尾	15:30	セッション5 レーザーと加速器 大石、宮崎、岡村、横山、中嶋、林崎	16:45	講評
19:00	会食(札幌アспенホテル)	18:00	装置、施設への要望(~18:30)	17:00	閉会
20:30	超低速ミュオン顕微鏡に関する意見交換会				