

# 平成25年度 新学術領域研究（研究領域提案型） 中間評価結果（所見）

## 研究領域名

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

## 研究期間

平成23年度～平成27年度

## 領域代表者

鳥養 映子（山梨大学・医学工学総合研究部・教授）

## 研究領域の概要

「超低速ミュオン顕微鏡」によるイメージング法を確立し、スピン時空相関という概念に着目して、界面に関わる多様な物理・化学・生命現象の発現機構を理解する新しい学術領域を開拓する。深さ方向にナノメートル、横方向にサブミクロンの分解能で、局所的な電子状態とそのダイナミクスを明らかにすることにより、界面のスピン伝導や触媒反応、表面-バルク境界領域のヘテロ電子相関など、表面・界面・薄膜・微小領域における基礎研究、応用研究を展開する。そのために超低速ミュオン顕微法を確立し、さらに物質創成の原理に迫るミュオンの超冷却と尖鋭化に取り組む。これにより、大強度陽子加速器施設 J-PARC の世界最強パルスミュオンを生かした、物質・生命・素粒子基礎物理研究の世界的研究拠点を構築する。

## 領域代表者からの報告

### 1. 研究領域の目的及び意義

#### 目指す新たな研究領域：

本計画の目的は、「超低速ミュオン顕微鏡」によるイメージング法(超低速ミュオン顕微法)を確立し、多様な物理・化学・生命現象の発現機構を、スピン時空相関という概念を導入して理解する新しい学術領域を開拓することにある。

スピン偏極した正ミュオンは、物質に止まり崩壊する際にスピン方向に対し、空間異方的陽電子を放出する。これにより、多くの臨界現象が起こるピコ秒からマイクロ秒までの広い時間域において、その微視的状态を高感度に検出するプローブとなる。核磁気共鳴(NMR)や中性子回折法では見えない時間域において、磁気秩序や電子状態を、温度・圧力・磁場などの外部条件に制約されずに測定できる。この大きな特徴により、世界各地の加速器施設において、物質科学研究に用いられている。超低速ミュオンは、熱エネルギー状態にある真空中のミュオニウム(正ミュオンと電子からなる水素状原子;  $\text{Mu}$ )からレーザー解離法で得られるものである。さらにこれを加速、収束させて3次元的な顕微プローブを創る。このようにして深さ方向にナノオーダーの局所性と走査性を創りだし、界面のスピン伝導や触媒反応、表面-バルク境界のヘテロ電子相関などの機構を微視的に解明する、新たな超低速ミュオン科学領域を拓く。

「超低速ミュオン顕微法」は、物質の表面近傍から内部にわたる現象の走査的な観測により、表面とバルクの関係性を明らかにし、また界面という境界条件自体が作り出す諸現象の微視的機構を解明するものである。一方、生命科学においても生体の空間イメージングなどの新たな可能性を拓く。加えて、さらなるビームの低温化・尖鋭化により、「標準理論」を越える素粒子/基礎物理のフロンティアを推進する。

図1-1に、超低速ミュオン顕微鏡の特徴的な観測の空間スケールを示す。

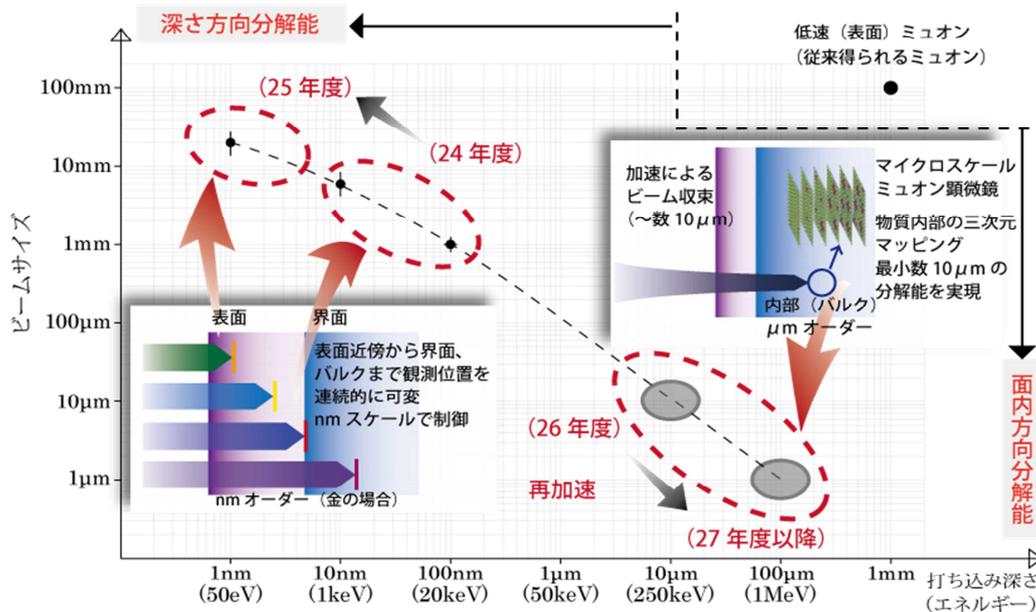


図1-1 超低速ミュオン顕微鏡で見える空間スケール

物質・生命の研究のプロープとして最も必要なのは、①物質表面から深さ方向にナノメートル (nm) の分解能での連続走査性能、②サブミクロン ( $\mu\text{m}$ ) 分解能での物質内部3次元走査性能、および、③マイクログラム ( $\mu\text{g}$ ) 以下の試料に対する測定感度である。第一段階ではミュオンの超低速化により、表面近傍の打ち込み深さ(図1-1 横軸)を連続的に変化させ、nm分解能での走査性能を実現する(超低速ミュオン分岐)。第二段階では超低速化技術に加えて加速によりビームを尖鋭化した超高密度マイクロビームを完成させて、 $\mu\text{g}$ オーダーの微量試料の観測や、物質深部をサブ $\mu\text{m}$ オーダーのビームサイズ(図1-1縦軸)で2次元マッピングする機能の完成を目指す(ミュオンマイクロビーム分岐)。世界の研究者が、これらの局所性を目標としながら、他の方法では原理的な壁を越えることができなかった。この2つの新しい量子ビームを用いた顕微法により、大強度陽子加速器施設(J-PARC)に物質・生命・素粒子基礎物理研究の世界的研究拠点を構築する。

新しい測定方法の導入による現象の多角的な理解は、それぞれの分野に飛躍的な発展をもたらす。超低速ミュオン顕微法の持つ潜在能力を十分活用し、異分野への展開を積極的に図ること、ミュオンが活躍する領域を拡げることが、我が国の学術の進展のために重要である。最高性能のミュオン顕微鏡を完成させるためには、物性、化学、生命科学はもとより、加速器科学、レーザー科学、素粒子原子核物理にわたる広範な分野からの最先端の知識と技術を結集する必要がある。

**学術的背景：**ミュオンスピン回転法 ( $\mu\text{SR}$ )による物質科学研究は、弱い相互作用の空間反転対称性の破れが発見された1957年に原理が提案され、その後、着実に物性研究の新技术として発展してきた。零磁場ミュオンスピン緩和法(山崎他; PRL, 1978年)、高エネルギー物理学研究所(KEK: 現在は機構)における世界初のパルス状ミュオンビーム発生(永嶺他; Hyperfine Interactions, 1981年)、パルス状ビームの特徴を活かした新しい研究方法(鳥養、門野、下村、西山他; PRL, 1994年他)等を、本領域の研究者が主導する形で創出してきた。現在では、磁性、半導体、超伝導、化学反応、蛋白質の研究等の多彩な分野に拡がりを見せている。しかしながら従来得られてきたミュオンは、ビームサイズが数 $10\text{mm}\phi$ 、打ち込み深さが $\text{mm}$ オーダーで、 $\mu\text{SR}$ 法はバルクの性質を見るものであった。超低速ミュオンは、KEKで20年余りに原理実証された(三宅、岩崎、下村、永嶺他; PRL, 1995年)。その後、KEKと理化学研究所(理研)の共同開発研究によって、強度は毎秒20個ながらも深さ分解能(nm)と時間分解能(ns)の画期的な性能が確認された。この優れたビームの実用化が世界の研究者から待望されている。

一方、物質の表面・界面では並進対称性の破れにより、バルクと異なる特有の性質を持つ低次元の新物質

相が出現することが知られている。これらの発現機構の解明のためには構造のみならず、その性質の根源にあるスピン時空相関の理解が重要である。例えば、触媒反応や水素貯蔵物質における、表面及びその近傍(サブサーフェス)における水素電子状態とそのダイナミクスの解明は、クリーンエネルギーの実用化につながることからグリーンイノベーションのための緊急の課題である。超低速ミュオンは、これらに対する他の追従を許さない決定的なプローブとなるであろう。また走査型プローブ顕微鏡(SPM)技術の飛躍的な発展によって、物質の表面からバルクに至る性質の統一的な理解が重要であることが一層明らかとなってきた。表面、サブサーフェス、バルクと電子状態を連続的に走査検出できる超低速ミュオン顕微法は、まさにこの目的に相応しい微視的研究手段である。

**本領域の発展による学術水準の強化：**表面・界面・薄膜に関わる諸現象の微視的機構解明は、基礎研究においても、グリーンイノベーションにつながる応用研究においても、緊急の課題である。超低速ミュオン顕微法で得られる、電子状態とスピン状態の時空相関に関する局所的かつ俯瞰的な理解は、これらの解明に不可欠である。この新しい量子測定手法は、これまで本領域の研究者らによって開発された画期的な超低速ミュオン発生技術に加えて、KEKの旧ミュオン施設を3桁上回るJ-PARCの超強パルスミュオンビームをもって初めて実現できるものである。J-PARCが完成した今こそ、超低速ミュオン顕微鏡の夢を実現できる時である。この新しい測定法により、世界の物質・生命科学の進展に貢献したい。

## 2. 研究の進展状況及び成果の概要

超低速ミュオン顕微鏡は、表面・界面が関与する物理、化学、生命の諸現象の解明から、ミュオン異常磁気能率測定といった基礎物理定数の精密測定まで、さまざまな分野において、従来の研究を飛躍的に発展させる突破口となる。対象となる広い分野の研究者との協力体制のもとにこれを用いた超低速ミュオン顕微法を確立し、様々な研究に適用することにより新たな融合領域を創生する。これを基盤にしてさらなる新分野の開拓をめざす。

研究期間前半(平成23-25年度前半)は、A01班とA04班を中心に計画班全体が連携して、本領域の共通基盤装置である超低速ミュオン顕微鏡の開発を集中的に行った。この結果、平成24年度に超低速ミュオン顕微鏡の基幹部を構成する、熱ミュオニウム発生装置、高強度ライマン $\alpha$ レーザー装置、光学系の開発を一通り完了することができ、平成25年度中の超低速ミュオン発生と実験開始に目途がついた。超低速ミュオンは、加熱したタングステン標的にミュオンを打ち込むことで生成される。この際に用いる4MeVミュオンビームは、超伝導電磁石を用いたビームライン(Uライン)より取り出される。Uラインにおいては、平成24年11月に現有のDラインの強度を10倍以上(英国RALの80倍)上回るミュオン発生が確認された。この強度は、すでにUラインの最終目標値にほぼ達しており、加速器の陽子ビームパワーが目標の1MWになった際には、目標値の4倍という未踏の強度となることが見込まれる。また、ライマン $\alpha$ レーザーのための高利得レーザー媒質として、本領域の計画時には育成困難とされた新規セラミクス(特許出願準備中)が、産業界との共同開発により成功したことも著しい成果である。

本領域は4つの計画研究と公募研究により研究を展開している。

**A01 超低速ミュオン顕微鏡：**超低速ミュオンビーム源と $\mu$ SR実験装置からなる超低速ミュオン顕微鏡の開発、製作、設置を先導して行い、ビームの最適化と高度化を図る。また微小領域を3次元的にマッピングする顕微法を確立し、極微試料での研究を可能にする。さらにエネルギーが揃ったミュオンの干渉性を用いて、物質内部を探る「回折ミュオン顕微鏡」の基盤を創る。

**A02 界面のスピン伝導と反応：**正ミュオンの物質中での電子の捕獲・放出を伴う素過程を利用することにより、磁性を持たない物質の性質を超高感度で探ることができる。スピントロニクス材料界面における伝導電子のスピン寿命、高分子膜・生体中の電子伝達や、2次電池の電極反応におけるイオン伝導の経路同定に焦点をあて、伝導現象の本質に迫る。さらに界面水素、細胞中の酸素、金属触媒や光触媒などが関わる表面・界面反応の機構を解明する。

A03 表面-バルク境界領域のヘテロ電子相関：超低速ミュオン顕微鏡を用いて、表面近傍からバルクへの境界領域における、様々な長さスケール(1~10<sup>3</sup>nm)で生起する協同現象(界面の電子状態、空間的制限下での異方的超伝導の秩序変数と渦糸状態、金属表面を持つトポロジカル絶縁体の準表面電子状態等)を観察し、通常の電子相関(< nm)とこれらが絡み合う複合的(ヘテロ)電子相関の物理を明らかにする。

A04 物質創成の原理を極める超冷却と尖鋭化：超低速ミュオン基幹技術として高強度ライマンαレーザーを開発する。さらに生成される超低速ミュオンのエネルギーを室温以下にまで冷却することにより、エミッタンスの良い偏極ミュオンビームを実現し、ミュオン異常磁気能率(g-2)測定実験など、標準理論を超える素粒子物理研究に貢献する。ここで実現されるビームの冷却と短バンチ化技術は、物性研究のさらなる拡大に不可欠な極限性能を実現するための基幹技術としても重要である。

以下に各班の進展を述べる。

**A01 班**: J-PARC 物質生命科学実験施設のミュオンエリア U ラインにおいて超低速ミュオン顕微鏡の建設を進めた。超低速ミュオン顕微鏡の基幹部である熱ミュオニウム発生装置および超低速ミュオンビーム光学系は、(1)ミュオニウム生成チェンバ、(2)タングステン標的、(3)大強度表面ミュオンビームライン、(4)レーザーシステム、(5)レーザー導入系、(6)ビーム輸送系及び(7)μSR 実験用分光器、から構成され(番号は図 3-1 に対応)、これらの開発と製作を平成 24 年度までに完了した。先に述べた通り、U ラインでは平成 24 年 11 月に(陽子ビーム強度 200kW 運転時)パルス当たり 250 万個の表面ミュオン発生が確認された。陽子ビームのパワーが計画の 1MW に達する平成 27 年には、U ラインではパルス当たり 1200 万個という当初の目標値を大きく超えた強度となり、それを元に作られる超低速ミュオンも目標を上回る数が期待できる。またタングステン標的に関しては、ミュオニウム発生効率を目的値まで上げるため、新たな高純度化の手法を確立するとともに、標的材料の最適化を進めた。

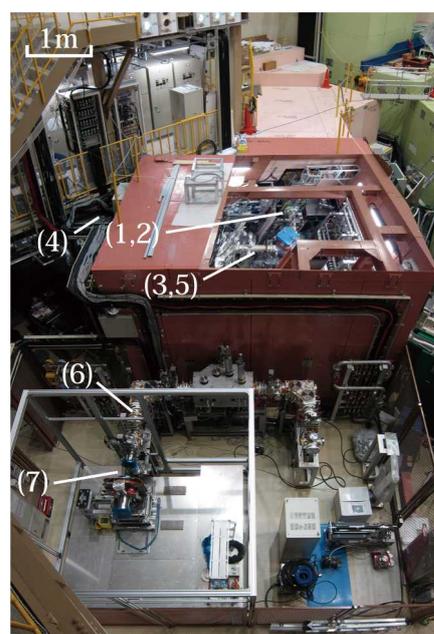


図3-1 Uラインに設置された超低速ミュオン顕微鏡の基幹部

**A04 班**：平成 25 年 2 月に、理化学研究所で開発中の全固体高強度パルスレーザー光発生装置において、初のライマンα光発生を確認した(図 3-2)。また高利得レーザー媒質として、Nd:YAG セラミックスの産業界との共同開発に成功した(特許出願準備中)。今後この媒質を導入することにより、平成 25 年度中に、212.556 nm、820.649 nm の各波長において 50 mJ を実現し、目標の 1 パルス当たり 100 μJ のライマンα共鳴放射を達成できる見通しを得た。さらにミュオンビームのエミッタンスを向上させるため、常温ミュオニウム生成標的については、エアロジェル他の候補で生成試験を進めている。シミュレーションに基づいた表面形状の加工により、生成効率を 5 倍程度上げることを目指している。

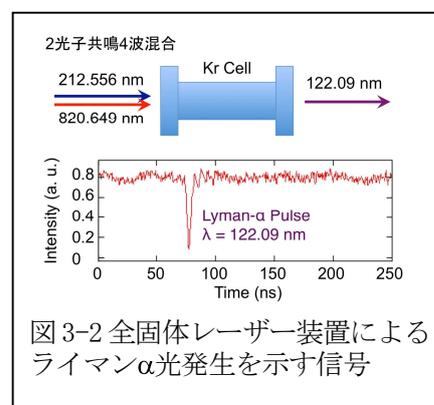


図 3-2 全固体レーザー装置によるライマンα光発生を示す信号

一方、A02 班、A03 班は、これまでミュオンの応用が進んでいなかった分野、特に触媒化学、生命科学分野との共同研究を積極的に進めている。

**A02 班**：次の4つのモデルシステムについて、超低速ミュオンを応用するための準備研究が計画通り進んでいる。さらに、触媒化学、生命科学、スピントロニクス研究会により、隣接分野からの関心も高まった。

1. 界面近傍におけるスピン伝導：伝導電子のミュオンによる散乱がスピンに依存することを原理的に実証

したGaAsの円偏光光励起実験では、負ミュオニウムの荷電揺動に基づくスピン依存散乱の理論を前川らが解明、半導体中のスピン伝導測定の理論的根拠を確立した。実用材料開発では、(Ga,Mn)As超薄膜の磁性及び磁気輸送特性の強い膜厚依存性を発見、その機構と電子構造を解明、注入用電極としての高性能化に成功した。

2. 触媒化学反応：光触媒の量子効率を左右する格子欠陥、特に酸素欠陥の構造とその動的性質をミュオンで直接観測できることを、欠陥を制御したアナトース粉末結晶におけるミュオン緩和率の粒径(表面積/体積比)依存性及びルチル単結晶の還元処理効果の実験によって検証した。
3. 電気化学を担うイオン伝導：液体溶媒に迫る固体溶媒中のイオン伝導の測定に成功した。各種電池材料(正極・電解質・負極)について、 $\mu$ SR法によりLi及びNaの拡散挙動と係数を求め、他の手段と比較してキャリア濃度と電極の反応面積を導く手法を示した(図3-3)。また磁石材料の内部磁気構造、水素貯蔵材料の水素脱離挙動の解明に $\mu$ SR法を適用する道を拓いた。
4. 生命反応を司る電子伝達：電子伝達系を担う蛋白質の1つであるシトクロムcについて、水和水による分子間電子伝達の促進効果を見出した。また、アルブミン蛋白質を含む緩衝溶液において、ミュオニウムのスピン緩和が純水中と同様に酸素の混入により敏感に変化することを示し、血液中の酸素濃度の解析への道を拓いた。

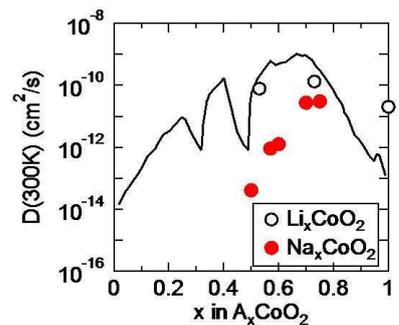


図 3-3  $\mu$ SR 法により求めた電池材料のイオン拡散係数

**A03 班**：表面-バルク境界領域のヘテロ電子相関の解明を目的とし、超低速ビームを用いて初めて観測可能となる薄膜およびその表面研究に携わる研究者を連携研究者として加えることで、超低速ビーム実験に向けた研究を展開している。

#### 1. 薄膜・表面研究者との研究連携による進展

電子ドーピング系銅酸化物 T'相 La214 薄膜の超伝導の研究では、超低速ビーム利用への準備としてポール・シェラー研究所(スイス)の低エネルギーミュオンビームを用いた $\mu$ SR(深さ分解能 $\sim$ 20nm)測定を行い、非ドーピング母物質薄膜の超伝導について重要な知見が得られつつある。界面に現れる磁性の研究では、電子デバイス応用を目指した工学分野の研究者との連携により、遷移金属酸化物複合構造の成膜条件等の最適化が進展した。

#### 2. 他のプローブとの連携による超伝導と磁性の空間的に不均一な描像の理解

ホールドーピング系銅酸化物(La214系、Bi2201系、Bi2212系、Y123系)や鉄系超伝導体(FeSe<sub>1-x</sub>Te<sub>x</sub>)の研究が進展し、とくにSTM/STS測定により超伝導エネルギーギャップの実空間での不均一さについての理解が進んだ。またSTS測定によって磁束格子のダイナミクスを調べる新手法を開発した。

#### 3. カイラル磁性体におけるカイラルソリトン格子の研究

カイラル磁性体 Cr<sub>1/3</sub>NbS<sub>2</sub>単結晶について、ローレンツ電子顕微鏡を用いてカイラルソリトン格子発生の観測に成功した。この新奇な磁気状態の解明にむけて、新たな不斉合成手法の開発とともに、さまざまなカイラル磁性体におけるカイラルソリトン格子の研究が進んだ。

平成25年2月までに超低速ミュオン顕微鏡の主要装置がUラインに設置された。3月22日にはレーザー装置をJ-PARCに搬入し、平成25年前半における超低速ミュオン発生を目標に着々と準備を進めてきた。レーザーの安全検査に合格し、5月27日には法定の放射線に関する施設検査が予定されていた。しかし5月23日に、J-PARCハドロン実験施設における放射能汚染事故が発生し、J-PARCは事故原因究明と安全対策の見直しのために現在完全停止となっている。本来のスケジュールでは、7月まで超低速ミュオンビームのコミッションングと性能実証実験を行う予定であった。その後8月から翌年1月まではJ-PARCの加速器性能改良のための停止期間であり、その間にレーザー増強を図る計画であった。しかしながら超低速ミュオン発生実験は来年1月以降に持ち越さざるを得なくなった。超低速ミュオン発生のため

めの基幹装置の準備は完了しており、J-PARC が再開され次第、基礎データを蓄積して本領域研究の後半の実験計画に反映させる。

## 審査部会における所見

A (研究領域の設定目的に照らして、期待どおりの進展が認められる)

### 1. 総合所見

本研究領域は、原子核物理に応用されてきた加速器技術を基礎とし、原子物理学やレーザー物理学、さらにイオン光学を利用して、従来想像し得なかった高分解能の超低速ミュオン顕微鏡を開発するものであり、まさに新興・融合領域研究の好例である。超低速ミュオン顕微鏡を使って、固体物理のみならず、触媒化学や表面科学、さらに生命科学や素粒子科学にまで貢献するという研究構想は大変魅力的であり、大きな期待を抱かせる。J-PARC ハドロン施設の事故による中断にもかかわらず、現在、ほぼ予定通りに研究が進展していることは高く評価できる。

ほぼ完成し設置も完了した超低速ミュオン顕微鏡については、中心部となるミュオニウムのレーザーイオン化に用いるレーザーの高強度安定運転の達成が今後のポイントであり、一層の努力を期待する。また、超低速ミュオン顕微鏡を利用する様々な実験研究は、研究期間のかなり後半にずれ込むことが予想されるため、モチベーションを高く持ち続け、J-PARC の状況に応じて柔軟な対応を図る努力が求められる。

### 2. 評価に当たっての着目点ごとの所見

#### (a) 研究の進展状況

超低速ミュオン顕微鏡の開発という目標に対して、研究項目 A01 及び A04 に参画している研究者を中心に基幹部の熱ミュオニウム発生装置の開発と設置が順調に行われている。また、研究項目 A02 及び A03 に参加して顕微鏡を用いた物性実験を実施する予定の研究者も関連する様々な実験や理論開発を進めてきている。J-PARC の事故によりビームの高度化を図る計画が中断しているにもかかわらず、準備研究が各計画研究で着実に進められている点は高く評価できる。さらに、様々な研究会を通じたプロジェクトの普及や異分野の学会などへのアウトリーチ活動に努めながら、応用展開を積極的にアピールしている点も評価できる。

#### (b) 研究成果

低速ミュオンビーム開発は、日本が長年の間、研究開発を担ってきた実績があり、J-PARC における大強度ミュオンビームの供給を得て、研究期間の前半はビームラインとレーザー整備を中心に研究開発が進んだ。特に、研究項目 A01 及び A04 における集中的な開発により、J-PARC におけるミュオンビームライン、熱ミュオニウム発生、レーザーイオン化、ビーム輸送系、SR 実験用分光器などの整備が、短期間で完成したことは特筆に値する。さらに、イオン化用のレーザーが全固体結晶レーザーを使って発振に成功したことも高く評価できる。現段階で、超低速ミュオン顕微鏡はほぼ完成し設置されている。また新たなターゲット材料の開発も順調に進められている。

#### (c) 研究組織

本研究領域の推進に向けて、加速器物理、レーザー物理、物性研究者が一丸となって研究開発を実施しており、ミュオンビームの最適化のほか、研究項目 A01 と A04 に参加するメンバーによるレーザーシステムの構築や研究項目 A01、A02、A03 に参加するメンバーによる分光器の構築など異分野連携の共同研究が多彩に行われている。また、若手研究者の自由な発想による自立した研究活動を促すために所属機関の協力を得てエフォート 15%分の裁量研究を保証するなど、若手研究者育成に向けた取組も評価できる。

#### (d) 研究費の使用

特に問題点はなかった。

#### (e) 今後の研究領域の推進方策

本研究領域において鍵を握るのは、超低速ミュオン顕微鏡の中心部であるミュオニュームのレーザーイオン化であり、その成功がなければ後に続く研究展開にも困難が生じる。現在は、必要な光の生成に一応の目途がついたという段階であり、今後、セラミック材料の採用による高出力化と高安定化という挑戦的な取組を成功させるための一層の努力が必要であろう。さらに、超低速ミュオン顕微鏡を利用する立場の研究者（すなわち、研究項目 A02 及び A03 に参画している研究者）の活躍は、顕微鏡が計画通りに完成しても研究期間のかなり後半にずれ込むことが予想されるため、それまでの間モチベーションをいかに高められるかが大切であり、J-PARC の今後の運転状況に応じて柔軟に計画変更する必要も予想される。

#### (f) 各計画研究の継続に係る審査の必要性・経費の適切性

各計画研究共に、開発研究（研究項目 A01 及び A04）や準備研究（研究項目 A02 及び A03）が着実に進められている。本研究領域の重要な舵取りを担う総括班においても、様々に連携する仕組みを強化する取組がなされている。今後、超低速ミュオン顕微鏡の本格運用に向けて、総括班を中心に各計画研究代表者は、研究の進展に応じて優先度の再検討や推進計画の修正を加えられる多面的な研究計画を準備しておく必要はあるものの、いずれも現時点で継続に係る審査の必要はない。また、研究経費は妥当であると認められる。