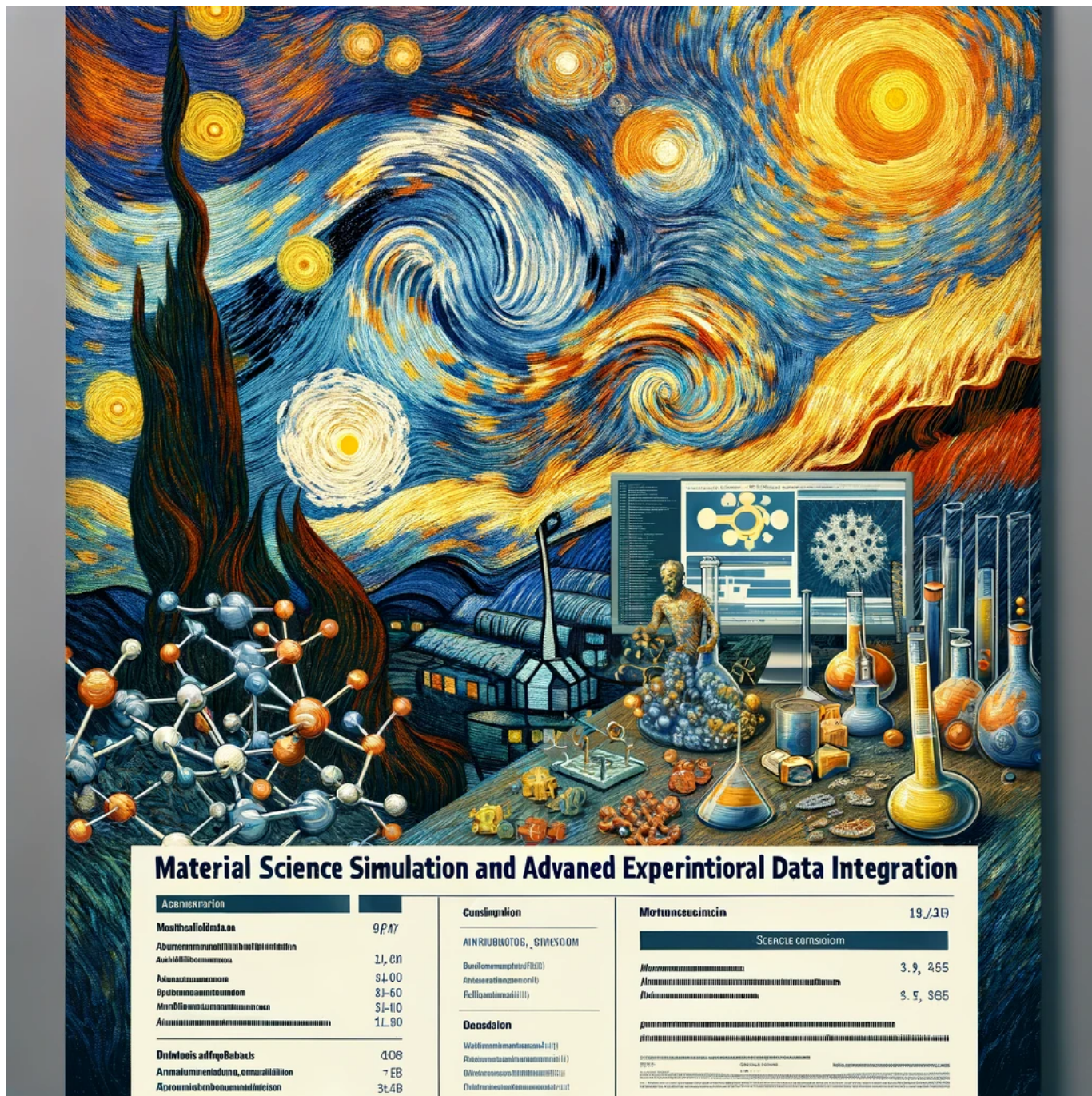


ISSP短期研究会 「物質科学シミュレーションと先端実験のデータ連携」 アブストラクト集



generated by chatGPT

物性研大講義室 (6 階)/Zoom
2024.Feb.19-20

マテリアル DX プラットフォーム構想の実現に向けて

NIMS 出村 雅彦

社会課題の高度化、深刻化が進む中、革新的な材料をいち早く開発し社会に供していくことが求められている。この期待に応えるために、デジタルトランスフォーメーション（DX）による研究手法の刷新を目指して進められているのが、文部科学省マテリアル DX プラットフォーム構想である。本構想は図に示すように3つの事業で構成されている。すなわち、データをつくる「マテリアル先端リサーチインフラ事業（ARIM）」、データをためる「データ中核拠点事業（DICE）」、データをつかう「データ創出・活用型マテリアル研究開発プロジェクト（DxMT）」である。ARIM では装置の共用からデータの共用へと新しい挑戦を始めており、共用装置利用者の理解のもと生み出されるデータを預かり、エンバゴ期間後に広く共用化していく。DICE では、データを構造化して預かるための RDE というシステムを開発し、これを ARIM、DxMT に提供している。加えて、世界最大級の材料データベースである MatNavi の開発も続け、閲覧及びライセンスサービスを提供している。さらに、これらのデータを活用するための AI 解析アプリ pinax の開発も実施しており、2025 年度の本格運用を目指している。DxMT では、これらのデータを活用しながらデータ駆動型の材料研究を展開していくことになる。同時に、研究で生み出されるデータについても構造化して蓄積し、広く共用化していくことになっており、RDE の活用が始まっている。

日本全国をDX化して、マテリアル革新力強化*へ

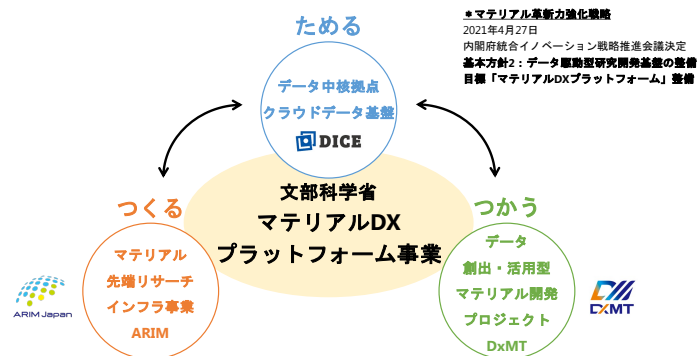


図 マテリアル DX プラットフォーム構想における3つの事業

DXの本質は横断する力であると考えます。データを効率的に収集し活用していくという課題はマテリアル研究の随所で現れ、これからのデータ駆動時代の共通課題と言える。この共通課題に対して有効な解決方法を提示し、日本全体のマテリアル研究を高度化していくこと、これこそがマテリアル DX プラットフォーム構想の目標と言える。講演では、NIMSにおいて開発を続けているデータ時代のマテリアル研究のための各種システムについて紹介しながら、マテリアル DX プラットフォーム構想の実現に向けた取り組み[1]について説明したい。

ここで紹介する成果の一部は文部科学省データ創出・活用型マテリアル研究開発プロジェクト事業 JPMXP1122684766 の助成によって実施されました。感謝します。

文献

[1] 出村 雅彦; ぷらすとす, **5**, 193 (2022); 高分子, **71**, 379 (2022); 情報の科学と技術, **71**, 257 (2021).

非金属材料中の点欠陥に関する第一原理計算

東北大金研¹ 熊谷 悠¹

半導体・絶縁体材料中では、点欠陥や不純物元素が普遍的に存在し、電気・光学・機械特性やイオン輸送特性など多様な材料物性を支配する。このため、点欠陥の性質を詳細に理解することが、優れた材料開発を行う上で重要となる。近年、計算手法の改善や計算機性能の向上に伴い、点欠陥を対象とした第一原理計算が盛んに行われており、最近では欠陥形成エネルギーや熱力学的遷移準位のみならず、欠陥を介した光学遷移や、キャリアの非放射再結合速度の計算が行われるようになってきたている。

通常、点欠陥の計算は、周期的境界条件下で行うが、この際、有限サイズのモデルに起因する誤差がエネルギーや一電子エネルギーに内包される。欠陥形成エネルギーにおける補正法について長年研究されてきたが、2009年に Freysoldt らが提案した方法(FNV 法)[1]が、高精度に補正できる方法として認知されている。しかしながら、従来の FNV 法は立方晶系にしか適用できないことや、煩雑な手続きが補正に求められるなどの問題があった。そこで我々は、FNV 法を任意の物質系に応用できるように拡張し、また全自動で補正できる方法を提案した[2]。現在この方法は、多くのコードに実装され、広く一般に用いられている。また最近では、欠陥を介した光学遷移[3]や、キャリアの非放射再結合速度の計算で必要となる配位座標空間でのエネルギー曲面を高精度に行うための計算手法[4]を提案している。さらに、2次元物質中の点欠陥では異なる補正方法が求められるが、これに関しても自動化するための手法を提案している[5]。

本講演ではこれら補正に関する理論とその精度を紹介するとともに、酸素空孔の大規模計算[6, 7]や太陽電池材料の探索[7]などの応用例の紹介を行う。

文献

- [1] C. Freysoldt, J. Neugebauer, and C. Van de Walle, *Phys. Rev. Lett.*, **102**, 016402 (2009).
- [2] Y. Kumagai and F. Oba, *Phys. Rev. B*, **89**, 195205 (2014).
- [3] T. Gake, Y. Kumagai (共同第一著者), C. Freysoldt, and F. Oba, *Phys. Rev. B*, **101**, 020102 (2020).
- [4] Y. Kumagai, *Phys. Rev. B*, **107**, L220101 (2023).
- [5] Y. Kumagai, submitted.
- [6] Y. Kumagai, N. Tsunoda, A. Takahashi, and F. Oba, *Phys. Rev. Mater.*, **5**, 123803 (2021).
- [7] Y. Kumagai, et al., *PRX Energy*, **2**, 043002 (2023).

磁性材料における物性データ創出とその活用

産総研、福島鉄也

理論、実験に問わずマテリアル研究の目的は新奇物理現象・物性機能の発見、そしてそれらの微視的機構を解明することである。微視的機構の定量化が可能であるならば、自由に物理現象を制御し、望みの機能性物質を設計（デザイン）できることも期待される。しかし、室温をはるかに超える転移温度を持つ超伝導体、レアアースを使用しない超強力な永久磁石等が未だ存在しないことから推測できるように、物質設計（マテリアルデザイン）は容易ではない。その理由は、マテリアルデザインは物質が与えられ物理現象を解明する一般的な研究（順問題）とは異なり、膨大な自由度の中から目的とする機能を発現する最適なマテリアルの構成原子と構造配置を見つける逆問題だからである。従来の試行錯誤的なトライアル・アンド・エラーによる材料探索手法を用いて、このような逆問題を解くのは、時間・人的コストの観点から困難を極める。それゆえ、コンピュータ上で、経験的パラメータを用いず材料特性を定量的に評価可能な第一原理電子状態計算は、高効率にマテリアルデザインを実施するツールとして期待されてきた。

我々は長年にわたり基盤的シミュレーションコードである「AkaiKKR」の開発、それを用いた電子論的立場からの微視的機構の解明や高機能磁性材料のデザインを行ってきた。磁性材料のマテリアルデザインでは多様な物理量の高精度予測が求められる。例えば、スピントロニクス分野において TMR 素子を用いた MRAM を対象にするならばスピン伝導であり、それも有限温度における量を計算しなければならない。また、希土類永久磁石材料になると、磁化、キュリー温度、磁気異方性が計算対象となる。特に希土類を含む永久磁石材料では、f 電子を正確に取り扱う手法が未だ存在しないため、経験的パラメータなしでなるべく精度の良い近似的な計算手法を開発しなければならない。そのため、汎用の第一原理計算コードを単純に使用するだけでは、磁性材料のマテリアルデザインは困難である。

本発表では、我々が行なってきた磁性材料のマテリアルデザイン、磁気物性データの創出、それらのデータ解析について紹介する。時間があれば、最新のトピックである短距離秩序を記述可能なコヒーレントポテンシャル近似を用いた電子状態計算やフルポテンシャル KKR 法を用いた 2-14-1 系永久磁石における磁気異方性の高精度計算についても述べる。

ワニエ有効模型のデータベースと物質設計

東北大理、是常 隆

近年、第一原理計算を用いた電子状態の網羅的計算が盛んに行われるようになり、様々な自動化ツールが開発され、それに基づいた物質探索が行われるようになってきている。我々も、ワニエ軌道を用いた有効模型に着目し、自動生成するツールの作成およびそれに基づく物質探索を行ってきた[1]。ワニエ有効模型の利点としては、第一原理計算の結果をコンパクトに保存することができ、様々な物理量の解析を容易に実行できることにある。本発表では、このワニエ有効模型のデータベース作成や物理量との接続に向けた最近の成果を紹介したい。

まず、ワニエ有効模型の作成に関する対称性の取り扱いに関して紹介したい。これまでのワニエ有効模型構築においては、対称性を考慮した効率的な模型構築が行われていないという問題と、得られる模型が本来あるべき対称性を満たしていない、という2つの問題があった。そこで、我々はこれらを解決したコードを開発し、計算効率という点では、模型作成のコストを1/2から1/10に減らすことに成功した。また、対称性を考慮した模型を汎用的に生成することを可能にした[2]。これらにより効率よく精度のよいデータベースを構築していくことが可能になったといえる。

また、物質の探索範囲を広げるため、合金の計算を可能にする、ワニエ模型に基づいたコヒーレントポテンシャル近似(CPA)の開発も進めている。磁化のような一体の物理量に対してはこれまでのKKR-CPAの手法を概ね再現することを示しており[3]、現在は電気伝導度といった応答関数への応用を進めている[4]。他にもワニエ有効模型に対するクーロン相互作用の評価[5]に関する開発なども進めている。これらの手法とワニエ有効模型のデータベースを組み合わせることによって、より広範囲の物質に対して様々な物理量の網羅的な計算を可能にし、物質の提案や実験との比較を進めていければと考えている。

文献

- [1] A. Sakai et al. *Nature* **581** 53 (2020).
- [2] T. Koretsune *Comp. Phys. Comm.* **285** 108645 (2023).
- [3] N. Ito et al. *Phys. Rev. B* **105** 125136 (2022).
- [4] S. Namerikawa and T. Koretsune, in preparation.
- [5] K. Kurita et al. **292** 108854 (2023).

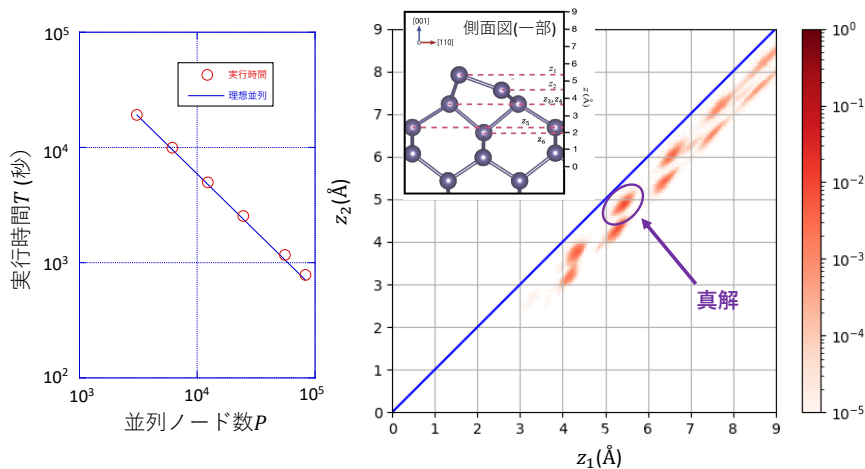
計測データ解析フレームワーク 2DMAT : 富岳を用いた 2 次元物質構造解析

核融合研¹, KEK², 東大物性研³, 鳥取大⁴星健夫^{1,2,3}, 岩本晴道⁴, 木下直希⁴, 中野陽斗¹, 寺地雄真¹, 本山裕一³, 吉見一慶³

自作計測データ解析フレームワーク「2DMAT」[1,2]の概要と応用例を報告する。2DMATでは、ベイズ推定（並列モンテカルロ法による事後確率分布計算）・最適化（並列化ベイズ最適化）などにおける先進アルゴリズムを用いて、高速高信頼なデータ解析を実現できる。また、一部モジュールをとりかえることで、多様な計測手法に対応している[2]。特に、超並列計算を用いたベイズ推定である、ポピュレーションアニーリングモンテカルロ法[3]を主に用いている。順問題関数ライブラリ化などのプログラム改良なども行い、富岳でのベンチマーク例（図1左）で高い並列効率（ノード数 $P=82,944$ までで強スケーリング型効率 $\alpha=0.91$ ）を達成した。対象は、陽電子を使った2次元物質むけ先端計測法である全反射高速陽電子回折(TRHEPD)を用いた、Ge(001)-c4x2表面構造解析である。図1右では表面第1-6層の z 座標(z_1, z_2, \dots, z_6)についてのベイズ推定（ベイズ事後確率分布計算）をおこない、真解・局所解を検出・区別できた。他応用研究もある[4]。現バージョンではTRHEPDを含めて4種計測に対応しているが、さらに最近、陽電子を使った新しい2次元物質構造計測法である低速陽電子回折(LEPD)[5]、構造と触媒性能との同時計測ができる2次元物質計測法であるオペランド偏光全反射蛍光-X線吸収微細構造(PTRF-XAFS)[6]にも対応した。実験室宇宙物理分野への応用[7]など、2次元物質構造解析以外にも適用している。計算高速化研究もある[8]。3月28日にはソフトウェア講習会が開催予定であり[9]、さらに多くの計測手法へと波及させていく。

[1] <https://github.com/issp-center-dev/2DMAT/> [2] Motoyama *et al.*, *Comp. Phys. Commun.* 280, 108465 (2022). [3] Hukushima and Iba, *AIP Conf. Proc.* 690, 200 (2003). [4] 深谷他, 本会. [5] 中野他, 本会. [6] 星他, 本会(ポスター). [7] 寺地他, 本会. [8] Kudo *et al.*, *Comp. Phys. Commun.* 296, 109029 (2024). [9] CCMS ハンズオン: 2DMAT 講習会, 2024年3月28日, <https://ccms.issp.u-tokyo.ac.jp/event/6432>

図1(左) 富岳でのベンチマーク結果（実行時間）。（右）Ge(001)-c(4x2)表面（内図）に対するTRHEPDデータ解析過程での、(z_1, z_2)ベイズ周辺事後確率分布（木下他, 物理学会, 2023年3月）。



陽電子回折・光電子分光・データ科学によるシリセンの構造探査

原子力機構¹、東大物性研²、核融合研³、東大生産研⁴ 深谷有喜¹、佐藤祐輔²、星健夫^{2,3}、
中野陽斗³、吉見一慶²、小森文夫^{2,4}、松田巖²

近年、グラフェンに代表されるように、原子1個分程度の厚みしか持たない2次元物質の研究が精力的に行われている[1]。最近では、自然界には存在しないその派生物質であるシリセン（グラフェンのSi版）やゲルマネン（そのGe版）なども創製され、2次元トポロジカル絶縁体といった新規物性の発現も期待されている。シリセンやゲルマネンは基板表面をテンプレートとして作製されるため、基板表面原子との相互作用により、自立した状態で予想されるものとは異なった構造をとる。したがって、用いる基板表面に応じて多様な構造が形成し、ユニットセルも基板表面と比べて大きくなる場合があることから、その構造決定はそれほど容易ではない。

これまで我々は、主に陽電子回折[2]と光電子分光を独立に用いて、二次元物質の構造・電子状態を解析してきた。陽電子回折からは原子配置の情報が得られ、光電子分光からは原子の化学環境の情報が得られる。最近、星らを中心としてデータ科学に基づいた構造探査手法(Nealder-Mead法による構造最適化、超並列モンテカルロ法によるベイズ事後確率分布等など)が開発され、陽電子回折の構造解析に適用され始めた[3]。光電子分光においても、コアレベルスペクトルとの直接比較が可能な結合エネルギーの絶対値計算[4]も可能となり、解析面においても両手法はさらなる進化を遂げている。両者は、それぞれ物質表面や二次元物質の研究において強力な手法として位置づけられるが、原子配置を決定するうえで相補的な情報が得られることから、両者を組み合わせることでさらに強力な構造決定法となる。

本講演では、Al(111)表面上に形成されるシリセン[5]を対象として、陽電子回折・光電子分光・データ科学を用いた構造探査の取り組みについて紹介する。

文献

[1] MONATOMIC TWO-DIMENSIONAL LAYERS: Modern Experimental Approaches for Structure, Properties, and Industrial Use, edited by I. Matsuda (Elsevier, 2018).

[2] Y. Fukaya, A. Kawasuso, A. Ichimiya, and T. Hyodo, J. Phys. D: Appl. Phys. **52**, 013002 (2019).

[3] T. Hoshi, D. Sakata, S. Oie, I. Mochizuki, S. Tanaka, T. Hyodo, K. Hukushima, Comput. Phys. Commun. **271**, 108186 (2022).

[4] T. Ozaki and C.-C. Lee, Phys. Rev. Lett. **118**, 026401 (2017).

[5] Y. Sato, Y. Fukaya, M. Cameau, A. K. Kundu, D. Shiga, R. Yukawa, K. Horiba, C.-H. Chen, A. Huang, H.-T. Jeng, T. Ozaki, H. Kumigashira, M. Niibe, and I. Matsuda, Phys. Rev. Materials **4**, 064005 (2020).

RHEED 測定における高精度データピックアップとフーリエ変換による解析

東北大 SRIS¹、東北大多元研² 虻川匡司^{1,2}、李博譔²

Weissenberg-反射高速電子回折法 (W-RHEED) を用いて表面構造解析を行っている。試料を方位角方向に回転しながら RHEED パターンを連続的に多数測定し、いわゆるワイゼンベルグ写真から回折スポットの強度をピックアップして、その強度を 3 次元逆空間へのマッピングを行う。得られた 3 次元逆格子マップをフーリエ変換する事によって得られる 3 次元パターン関数を用いて構造解析を行う。はじめに、この W-RHEED による表面構造解析の成功例として、

Si(110)3x2-Bi[1]および Si(110)3x2-Sb 表面構造解析結果について紹介する。これらの表面に関しては、いくつか構造モデルも提案されていたが、それらとは異なる Si の再構成も含む表面の 5 層目までの原子位置をモデルフリーに決定することができた。実験で得られた原子位置から結合長を見積もったが、ほぼ理想的な値に近く、しかも表面のダングリングボンドは完全に終端されており、計算するまでもなく安定な構造であることが分かる構造であった。このことは、W-RHEED で得られた電子回折データが十分運動学的に取り扱うことができることを示唆している。

次に Si(110)16x2 表面[2]をターゲットとした。16x2 表面は、長辺が 50.2Å、短辺が 13.3Å の大きなユニットセルを持つため、特に長辺方向に逆格子点の間隔が狭い。そのためワイゼンベルグ写真ではスポットが重なってしまう場所があり、強度を正確にピックアップすることが難しくなっていた。そこで新たに 1 枚 1 枚の RHEED パターンから強度をピックアップするプログラムを作成し、高い精度で回折強度をピックアップした。逆空間で細かな成分をピックアップできたことにより、得られたパターン関数には、遠く離れた原子間ベクトルに対応するスポットも現れた。得られた 3 次元パターン関数を、これまでに理論計算によって提案されている構造モデル [3]と比較したが、実験を満足するものはなかった。今後、さらに構造解析を進めたい。

Si(111)3x2-Bi と Sb では、ほぼ全ての表面原子の位置を 0.1Å 以下の精度で決定することができたが、このことは W-RHEED によるデータが高いレベルで運動学的に扱えることを示している。そこで、パターン関数による解析を一步進めて、反復的位相回復法によるより直接的な構造解析を試みた。まずは、シミュレーションによって W-RHEED データに必要な実空間、逆空間での拘束条件を探った。その結果、シミュレーションにおいては W-RHEED で測定できるデータで十分回復可能であることを確認した。実際に、Si(111)3x2-Bi のデータで位相回復を試みたが、部分的に正しい構造は再生できたが、全体の構造を再生するには至っていない。今後、実験データの処理や、反復時の実空間、逆空間での拘束条件を精査することで完全な構造の再生を実現したい。

[1] Hiroaki Aoyama and Tadashi Abukawa, Phys. Rev. Res. 3, 043164 (2021).

[2] Toshu An, Masamichi Yoshimura, Izumi Ono, and Kazuyuki Ueda, Phys. Rev. B 61, 3006–3011 (2000).

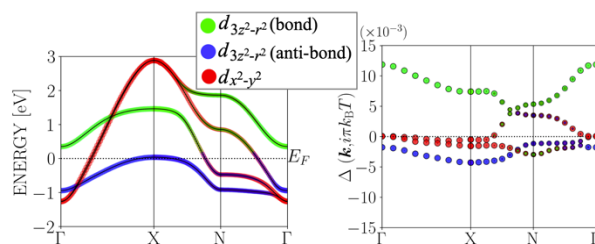
[3] Ruslan Zhachuk, Data Br. 28, 104847 (2020).

多層系ニッケル酸化物超伝導体の理論計算に基づく物性予測

鳥取大¹、阪大理² 榊原寛史¹、越智正之²、黒木和彦²

近年、銅酸化物超伝導体(超伝導転移温度 T_c 最大 135K)や鉄系超伝導体(同 55K)に続く新たな高温超伝導体として、ニッケル酸化物がにわかに注目を集め始めている。2019年に無限層ニッケル酸化物(Nd,Sr)NiO₂の超伝導が $T_c \sim 15$ K にて観測され[1]、続く 2023年には 15~20GPa 程度の静水圧力を印加した La₃Ni₂O₇において $T_c \sim 80$ K での転移が示された[2]。

La₃Ni₂O₇の超伝導は圧力によって orthorhombic から tetragonal な構造に転移した後に発現すると考えられている[2]。La₃Ni₂O₇は向かい合った二枚の NiO₂ 平面が絶縁ブロック層で挟まれた、いわゆる 2 層構造を持つ。このとき、 $d_{3z^2-r^2}$ 軌道は half-filled に近い状態になっており、面間で σ 結合的な強いボンドを組んでいる。ハバード模型に基づく先行理論研究として、面間結合の強い half-filled の 2 層物質では、面間のクーパ対形成による s_{\pm} 波超伝導の可能性が示唆されていた[3,4]。この観点に基づき、当著者のうちの一人は第一原理バンド計算に基づいて La₃Ni₂O₇の超伝導転移の可能性を予想していた[5]。本研究ではそこから進んだ内容として、La₃Ni₂O₇について第一原理バンド計算に基づいて有効模型を導出し、模型に基づいて多体計算を行い、超伝導の性質を評価した。有効模型のホッピング積分は最局在ワニエ軌道法を用いて、高圧下 La₃Ni₂O₇の現実的なバンド構造を再現するように決定した。La₃Ni₂O₇では $d_{x^2-y^2}$ 軌道及び $d_{3z^2-r^2}$ 軌道が強く混成しているため(図 1 左)、本研究では両方の軌道を考慮した 2 層 \times 2 軌道有効模型を構築した。模型に対し揺らぎ交換近似を適用し、多体相関効果を考慮したグリーン関数を計算し、エリアシュベルグ方程式に代入することでクーパ対の対称性を計算した。その結果、単一軌道の 2 層模型とよく似た s_{\pm} 波状態を得た(図 1 右)。また、 T_c の定性的指標である λ という値も計算し、それが銅酸化物($T_c \sim 100$ K)に迫る大きさであったため、今回の理論計算は観測された高い T_c をうまく反映していると解釈できる[6]。

図 1 : La₃Ni₂O₇の有効模型(左)とギャップ関数(右)。

また、NIMS の高野教授らの実験グループとの共同研究で、3 層構造のニッケル酸化物 La₄Ni₃O₁₀の研究にも取り組んだ。La₄Ni₃O₁₀は常圧では monoclinic な空間対称性を持つが、第一原理計算に基づく結晶構造最適化の結果、10~15GPa 程度の高圧で tetragonal な構造に相転移すると判明した。Tetragonal な領域で La₃Ni₂O₇と同様の理論手法を用いた結果、 λ の値は銅酸化物のうち T_c の低い物質($T_c \sim 40$ K)に近く、 T_c は低いながらも超伝導の可能性が理論的に示された[7]。その後、NIMS で行われた実験でも超伝導転移らしき兆候が観測されているため[7]、本研究は第一原理計算に基づく超伝導体予測の成功例であると期待される。

[1] D. Li et al., Nature **572**, 624 (2019).[2] H. Sun et al., Nature **621**, 493 (2023).[3] K. Kuroki, T. Kimura, R. Arita, Phys. Rev. B **66**, 184508 (2002).[4] T. A. Maier, and D. J. Scalapino, Phys. Rev. B **84**, 180513(R) (2012).[5] M. Nakata, D. Ogura, H. Usui, K. Kuroki, Phys. Rev. B **95**, 214509 (2017).

[6] H. Sakakibara, N. Kitamine, M. Ochi, K. Kuroki, arXiv:2306.06039 (2023).

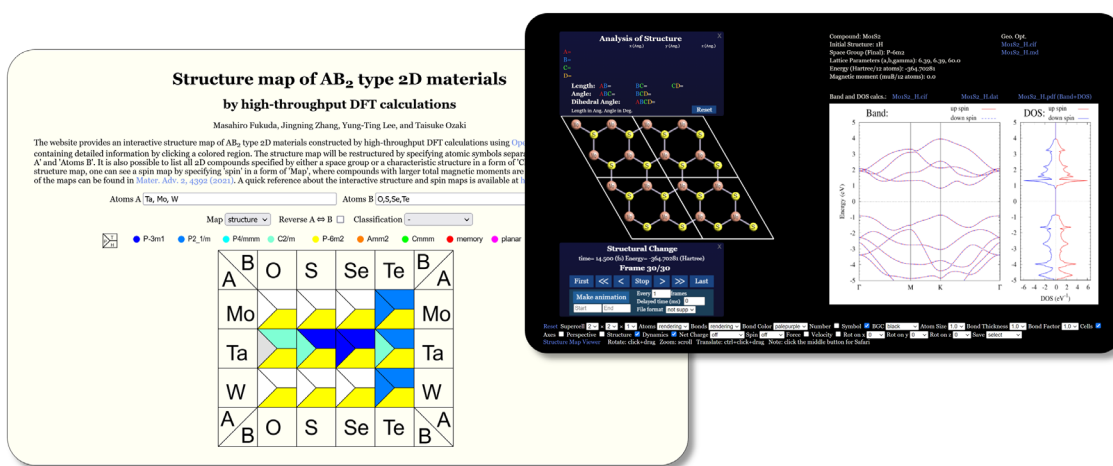
[7] H. Sakakibara et al., arXiv:2309.09462 (2023).

AB₂型2次元材料の構造探索およびデータベース化とその応用

東大物性研¹ 福田将大¹、尾崎泰助¹

近年、2次元材料はその多様な化学的・物理的性質と応用可能性から、非常に大きな関心を集めてきた。特に、AB₂型の遷移金属ダイカルコゲナイド (MoS₂ など) や MXene (遷移金属炭化物/窒化物) は、1T (三方晶単原子層) や 1H (六方晶単原子層) などの特徴的な幾何学的原子構造を持ち、大きな注目を集めている。この関心の高まりは、剥離や合成法などの実験技術の進歩の結果である。AB₂型の単層構造はすでに数多く実験的に研究されているが、AB₂化合物内でも元素の組み合わせが非常に多様であることから、計算物質科学を通じて未知の安定な単層構造を探索する余地が十分にあることが示唆される。

本研究では、OpenMX [1,2]を用いた密度汎関数理論に基づくハイスループット計算により、AB₂型単相構造の構造マップを構築した。また、この構造マップのWebベースのインタラクティブなデータベースを構築した[3]。また、データ利活用を促進するため、gitlabで構築されたISSPデータリポジトリに計算データを公開している[4]。さらに、ハイスループット計算で見出されたメモリ構造やバックルしたペンタ構造[5]などの新しいタイプの構造を提案し、2次元物質の構造特性をより包括的に理解するとともに、未知なる2次元物質の探索に新たな視点と方向性を与える。



図：AB₂型2次元物質の構造マップとwebインタラクティブなデータベース

文献

[1] M. Fukuda, J. Zhang, Y.-T. Lee, T. Ozaki, [Mater. Adv. 2, 4392 \(2021\)](https://doi.org/10.1039/C1MA00011A).

[2] OpenMX, <http://www.openmx-square.org/>.

[3] Our structure map and database are available on the interactive website (www.openmx-square.org/2d-ab2/).

[4] ISSP Data Repository (<https://datarepo.mdcl.issp.u-tokyo.ac.jp/repo/6>)

[5] M. Fukuda, T. Ozaki, Phys. Chem. Chem. Phys., (2024), [DOI: 10.1039/d3cp03135g](https://doi.org/10.1039/d3cp03135g)

14 族元素からなるポストグラフェン物質の創出に向けて

名大工 柚原淳司

近年、グラフェンを構成する炭素原子を他の 14 族元素で置き換えることにより、グラフェンの持つ高性能な性質とバンドギャップを合わせ持つ新規な二次元物質の創製ができるのではないかと期待の高まりから、ポストグラフェン物質の創製研究が盛んに行われるようになってきた。本講演では、ユニークな創製方法をいくつか紹介する[1-11]。

(1) 表面合金を利用した平面スタネンの創製

本実験では、平面スタネンの創製のために、Ag(111)表面にスズを真空蒸着し、真空加熱することで Ag_2Sn 表面合金を作製した。この表面合金の結晶周期性は平面スタネンと同じであり、また、この表面合金は表面化学反応性という観点でも利点があった。この表面合金を利用することで、平面スタネンを創製することができた[1]。

(2) 偏析法によるゲルマネンの創製

当時、ゲルマネンの実験的報告例は多数あったが、その結晶構造はどれひとつとして同じものはなかった。Ag(111)表面に限っても、多種多様なゲルマネン構造が報告されていた。Ag(111)/Ge(111)複合材料においてゲルマニウムが界面偏析する現象を応用し、ゲルマネンを偏析創製することで実験パラメータを減らし、かつ、最安定な構造を創製することとした。単位格子の長さがゲルマネンの理論的予測値と近いゲルマネンが創製されることが STM 像 (図) などにより明らかにされた[2]。

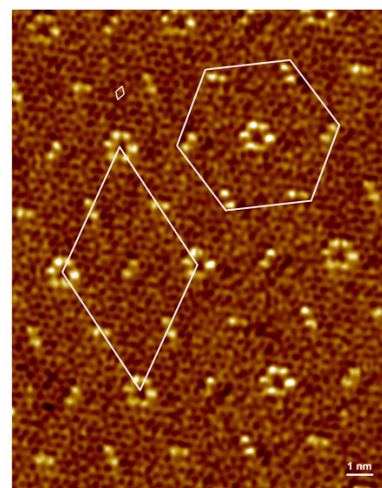


図 Ag(111)薄膜表面上のゲルマネンの STM 像

(3) 合金薄膜を利用したプランベンの創製

プランベンの創製は至高の目標とされ、世界各国で開発競争が行われている。銅やニッケル基板上のグラフェンの創製方法を参考にして、プランベンを偏析することにした。試料は、Pd(111)単結晶基板の上に多量の鉛を真空蒸着し、真空加熱することにより、Pd-Pb 合金表面を作製した。試料の加熱および冷却の過程で、鉛が表面に 1 層だけ偏析する条件を見出し、プランベンを自己組織的に創製させることに成功した[3]。

文献

- | | |
|--|---|
| [1] J. Yuhara <i>et al</i> , 2D Materials 5, 025002 (2018) | [7] J. Yuhara <i>et al</i> , Appl. Surf. Sci. 550, 149236 (2021) |
| [2] J. Yuhara <i>et al</i> , ACS Nano 12, 11632 (2018) | [8] J. Yuhara <i>et al</i> , Phys. Rev. Mater. 5, 053403 (2021) |
| [3] J. Yuhara <i>et al</i> , Adv. Mater. 31, 1901017 (2019) | [9] J. Yuhara <i>et al</i> , 2D Mater. 8, 045039 (2021) |
| [4] J. Yuhara <i>et al</i> , JJAP 59, SN0801 (2020) | [10] S. Mizuno <i>et al</i> , Appl. Phys. Express 14, 125501 (2021) |
| [5] T. Ogikubo <i>et al</i> , Adv. Mater. Inter. 7, 1902132 (2020) | [11] J. Yuhara <i>et al</i> , Surf. Sci., 738, 122382 (2023) |
| [6] W. Pang <i>et al</i> , Appl. Surf. Sci. 517, 146224 (2020) | |

二次元ホウ素薄膜の作製と構造解析：ホウ化物との共存、分離

九大総理工 中川剛志

二次元ホウ素薄膜はグラフェンに類似もしくは補完する物性が期待されている。最近ではホウ化物を形成しない Ag 表面上でのポロフェンをはじめ、主に貴金属表面上でホウ素薄膜が報告されている。単層ホウ素は様々な周期の欠陥を有する三角格子から成る薄膜および基板表面元素と安定な化合物を形成した薄膜が存在する[1]。このため二次元ホウ素薄膜の構造は非常に多様である。ホウ素薄膜の構造決定には DFT に基づいた大規模な構造探索が行われることがあるが、ホウ素化合物の可能性も含め、構造決定は困難である[2]。

我々は Ni を基板として二次元ホウ素薄膜の作製、構造解析を進めている。Ni はホウ素と安定な化合物を形成するが、表面構造は最安定な化合物構造ではなく準安定な構造がしばしば現れる。これらの状況を Ni 基板上に NiB 化合物を有する場合（高温での試料作製）と化合物を有しない場合（低温での試料作製）に分けて構造モデルを検討した。構造モデル探索には DFT と粒子群最適化法を使用した[3]。実験で得られた低速電子回折強度のエネルギー依存性、トンネル顕微鏡 (STM) の原子像を理論計算結果と比較して、構造モデルを提案する (図 1) [4]。これら方法による現状での構造モデルの信頼性などについて報告する。

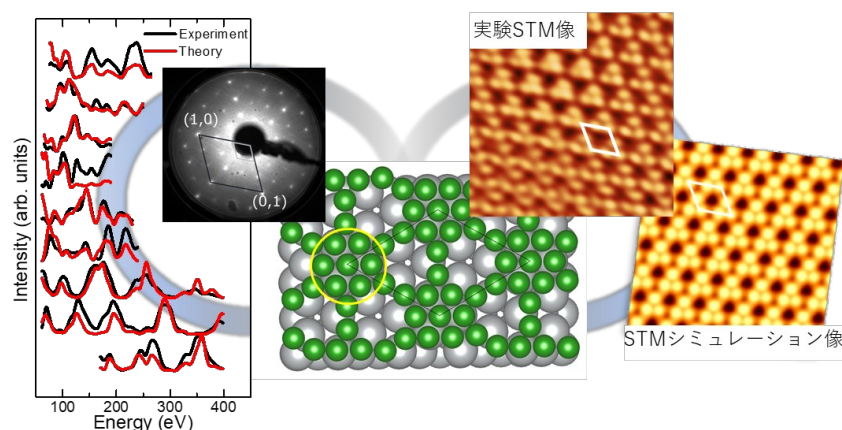


図 1. 低速電子回折のエネルギー依存性、STM 像、DFT による Ni 表面上での 2 次元ホウ素薄膜の構造モデル

- [1] F. J. Tuli *et al.*, *Surf. Sci.* **713**, 121906 (2021).
- [2] A. B. Preobrajnski *et al.*, *ACS Nano* **15**, 15153(2021)
- [3] Y. Wang *et al.*, *Comput. Phys. Commun.* **183**, 2063 (2012)
- [4] X. Chen, T. Nakagawa, *et al.*, in preparation.

Enhanced Superconductivity and Rashba Effect in a Buckled Plumbene-Au Kagome Superstructure

Chun-Liang Lin¹, Shu-Jung Tang²

¹Department of Electrophysics, National Yang Ming Chiao Tung University, Hsinchu 300, Taiwan. ²Center for Quantum Technology and Department of Physics, National Tsing Hua University, Hsinchu 300, Taiwan. Chun-Liang Lin¹, Shu-Jung Tang²

In this talk, I will give an introduction of the accidental discovery of a unique PbAu alloy layer grown on Pb thin films and the observation of its large Rashba effect in 2015 [1]. Two major features of the measured energy band structures are the V- and X- shaped bands centered at -0.56 and -2.65 eV at the surface zone center. From the simulation by the theoretic model, we figured out that unlike typical binary alloy layers, such as Ag_2Bi , Ag_2Pb , Ag_2Sn , etc., forming on the metal substrates, a single PbAu alloy layer is covered by a second Au Kagome layer to produce Rashba effect observed. Then I will show the subsequent uncovering of other interesting behaviors of this unique 2D material system, and finally using scanning tunneling microscopy and spectroscopy, we discovered enhanced superconductivity of the unique PbAu alloy layer ($T_c = 7.4$ K) with respect to the underlying Pb(111) substrate ($T_c = 6.9$ K) [2]. The PbAu alloy layer is also realized as a plumbene intercalated with Au atoms in the honeycomb centers, namely, Au-plumbene. The mechanism of the enhanced superconductivity in light of electron-phonon coupling will be discussed and the perspective of the further probing and developing this unique 2D material system will be indicated.

References

- [1] Significantly enhanced giant Rashba splitting in a thin film of binary alloy, Wei-Chuan Chen, Tay-Rong Chang, Sun-Ting Tsai, S Yamamoto, Je-Ming Kuo, Cheng-Maw Cheng, Ku-Ding Tsuei, Koichiro Yaji, Hsin Lin, H-T Jeng, Chung- Yu Mou, Iwao Matsuda and S.-J. Tang*, *New J. Phys.* **17**, 083015 (2015).
- [2] Enhanced Superconductivity and Rashba Effect in a Buckled Plumbene-Au Kagome Superstructure, Wan-Hsin Chen, Chin-Hsuan Chen, Guan-Hao Chen, Wei-Chuan Chen, Fu-Xiang Rikudo Chen, Pei-Jung Chen, Chun-Kai Ku, Chang-Tsan Lee, Naoya Kawakami, Jia-Ying Li, Iwao Matsuda, Wen-Hao Chang, Juhn-Jong Lin, Chien-Te Wu, Chung-Yu Mou, Horng-Tay Jeng*, Shu-Jung Tang*, Chun-Liang Lin*, *Advanced Science* **10**, 2300845 (2023)

シリコン表面インジウム原子層における準粒子干渉の観測とシミュレーション

NIMS¹ 吉澤俊介¹、鷺坂恵介¹

結晶中の不純物や欠陥の周辺に生じる電子定在波（局所状態密度の空間変調）は、しばしば準粒子干渉とよばれ、走査型トンネル顕微鏡（STM）により観測される[1]。準粒子干渉に含まれる周期成分は、運動量空間における電子構造を反映する。これは、波数 \mathbf{k} と \mathbf{k}' をもつ平面波状態の混成により波数 $\mathbf{k}-\mathbf{k}'$ の定在波が生じるという性質に由来する。したがって、あるエネルギー E における分光イメージ（微分コンダクタンス像）をフーリエ変換したときに特徴的な周期成分 \mathbf{q} があれば、そのエネルギーにおいて $\mathbf{q}=\mathbf{k}-\mathbf{k}'$ を満たすような波数 \mathbf{k} と \mathbf{k}' の状態が関与しているものと考えられ、バンド計算の結果 $E(\mathbf{k})$ と対応させて電子状態を考察できる。このような準粒子干渉の解析は STM 実験で広く活用されている[2]。

ところで、結晶中の電子状態は、第 1 ブリルアンゾーンで定義される結晶運動量 \mathbf{k} とバンドインデックス n でラベルされるブロッホ状態である。これは、結晶格子の周期性をもつ関数 $u_{n,\mathbf{k}}(\mathbf{r})$ と平面波 $\exp(i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r})$ の積の形に書ける。通常、バンド計算の結果は結晶運動量に対して得られるので、これを準粒子干渉の周期成分と素朴に対応させると、ブロッホ状態の $\exp(i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r})$ の部分の干渉だけ考慮して $u_{n,\mathbf{k}}(\mathbf{r})$ を無視することに相当する。この近似は、 $u_{n,\mathbf{k}}(\mathbf{r})$ が細かな構造を持たないと期待される（表面）ユニットセルの小さな系では問題無いかもしれないが、再構成表面のようなユニットセルの大きな系では破綻する可能性がある。

われわれは大きなユニットセルをもつ系として Si(111)-($\sqrt{7}\times\sqrt{3}$)-In 表面に着目し、準粒子干渉の特徴を調べた。この表面は Si(111) 基板上に In 二重層が乗った構造をしており、各 In 層ではユニットセルあたり 6 個の In 原子が歪んだ四角格子を組んでいる[3,4]。温度 4.5 K における STM 測定によりフェルミエネルギー近傍の分光イメージを取得し、フーリエ変換すると、準粒子干渉に起因する明瞭なパターンが得られた。興味深いことに準粒子干渉の主な周期成分は逆格子基本ベクトルより大きな波数をもっており、ブロッホ状態の平面波部分だけでなく結晶格子周期部分に含まれる高調波の干渉を考慮しなければ説明できない。スラブ模型を用いた密度汎関数理論（DFT）計算を行ったところ、フェルミエネルギー近傍、STM 探針高さにおけるスペクトル関数は、第 1 ブリルアンゾーンの外側で大きな振幅をもっていることがわかった。このとき得られた DFT 計算の出力を使って準粒子干渉のシミュレーションを行ったところ、実験で得られたフーリエ変換パターンの特徴をよく再現した[5]。

[1] Y. Hasegawa and Ph. Avouris; Phys. Rev. Lett. 71, 1071 (1993).

[2] 幸坂祐生; 物性研究・電子版 Vol. 6, No. 4, 064231 (2017).

[3] K. Uchida and A. Oshiyama; Phys. Rev. B 87, 165433 (2013).

[4] T. Shirasawa, S. Yoshizawa, T. Takahashi, and T. Uchihashi; Phys. Rev. B 99, 100502(R) (2019).

[5] S. Yoshizawa and K. Sagisaka; in preparation.

極低温走査トンネル顕微鏡とインフォマティクス手法による2次元電子系の物性評価

東大物性研 土師将裕

極低温走査トンネル顕微鏡及びトンネル分光測定(STM/S)は、2次元電子系をはじめとした様々な表面の物性測定に多大な貢献を果たしてきた。中でも、STM/Sを用いた分光イメージングによる準粒子干渉計測は、バンド構造に関連した情報が得られる非常に強力な手法の一つである。しかしながら、その測定は長時間に及ぶため、長時間安定した環境を保つことのできる装置が必要となる。そこで、スパースモデリングに基づいた手法を用いて、短時間での測定データからでも高品質の結果を得られる手法の開発に取り組んだ。貴金属表面に束縛された表面状態における準粒子干渉を例として、その結果についての講演を行う[1]。

極低温 STM/S 測定のさらなる強力な点の一つは、高いエネルギー分解能で局所状態密度の測定ができる点にある。したがって、超伝導体においては、超伝導ギャップを直接測定し渦糸の観察が可能となる。2次元超伝導体は、乱れによって量子相転移である超伝導-絶縁体転移を起こす非常に興味深い研究対象である。さらに、近年このような物質においては異常金属相など様々な量子相が発現することが見出された。しかしながら、微視的観点からこのような量子相についての理解はなされてこなかった。そこで、2次元超伝導体である、Si(111)上に形成されたPb薄膜のSTM/S測定を行い、様々な量子相における超伝導ギャップ及び渦糸の観察から、微視的観点における量子相の振る舞いを明らかにした。また、乱れとしてステップを導入することにより量子相の振る舞いの変化を観察した[2]。本発表では、それらの結果について講演を行う。

文献：

[1] Y. Nakanishi-Ohno, M. Haze *et al.*, *J. Phys. Soc. Jpn.* **85**, 093702 (2016)

[2] Y. Sato, M. Haze *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **130**, 106002 (2023).

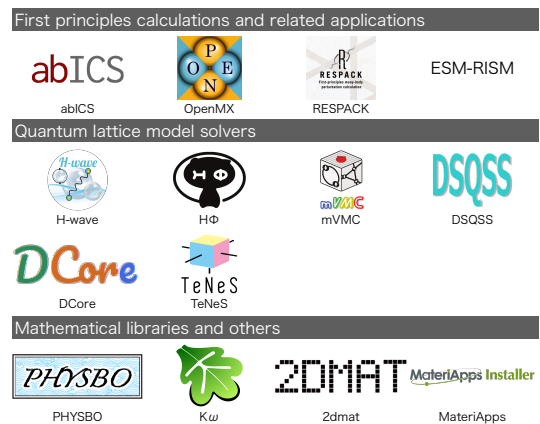
ポスターセッション

2024.Feb.19-20

物性研究所ソフトウェア開発・高度化プロジェクト： 大型計算機を活用した物質設計と評価

東大物性研 青山龍美、本山裕一、吉見一慶、川島直輝

東京大学物性研究所では、物性研究所共同利用スーパーコンピュータ（以下、物性研スパコン）の利用促進を目的として、2015年4月よりソフトウェア開発・高度化のプロジェクトを行なっている。このプロジェクトは、並列計算の高度化・複雑化に対応するため、物性研究分野で特に重要かつ物性研スパコン上での利用が見込まれるプログラムを対象に、その開発や機能拡張などの高度化を行うもので、利用者がより簡便に高度な並列計算を実施できる環境を整備することにより、新規現象の予測や実験結果との検証などを迅速に可能とするユーザビリティの高い計算機環境の提供を目指している。これまで、第一原理計算・量子格子模型ソルバー・数値ライブラリなど14件のソフトウェアが開発され、オープンソースライセンスの下で公開されている(右図)。また、物性研スパコンにプリインストールされており、その他の物性物理や物質科学分野で広く使われるアプリケーションとともに利用可能である。これらのソフトウェアと大規模並列計算環境とを組み合わせることにより、ユーザは大規模数値計算を通じたモデルの解析などの研究を進めることができる。



物性研究所ソフトウェア開発・高度化プロジェクトで開発されたソフトウェア

大型計算機を活用した物質設計と評価のための計算基盤の構築の一つとして、2023年度課題ではハイスループット計算を支援するソフトウェアパッケージ HTP-tools の開発を進めている。近年はマテリアルズインフォマティクスと呼ばれる機械学習を活用した物性予測や物質設計の手法が注目されており、機械学習の精度を左右する適切な教師データを迅速に作成するためのツールや環境の整備が研究の進展に不可欠となっている。HTP-tools はスパコンやクラスター計算機での大規模計算を管理するためのツールと、物質の構造データから各種第一原理計算ソフトウェアの入力ファイルを生成するツールからなり、ユーザは一連の物質群やパラメータセットに対する大量の第一原理計算を大型計算機上で容易に実行することができる。また、これまで物性研で開発高度化を行ってきたソフトウェアを組み合わせ、第一原理計算からの有効模型の導出や量子格子模型ソルバーによる解析を連携させたワークフローと網羅計算による新規機能性物質の探索などへの適用を目指している。発表では、本プロジェクト全般に関する紹介に加え、これらのソフトウェアについて簡単に紹介する。

文献

[1] <https://www.pasums.issp.u-tokyo.ac.jp>

[2] <https://www.pasums.issp.u-tokyo.ac.jp/http-tools/>

大規模電子状態計算と波束ダイナミクス法による 有機薄膜太陽電池の電荷分離シミュレーション

量研機構¹、藤田貴敏¹

次世代のフレキシブルデバイスの材料として有機半導体が期待されており、トランジスタ、LED、太陽電池などの開発が進められている。有機半導体材料は分子や高分子からなる乱れた分子集合体であるため、従来の孤立系向けの量子化学プログラムや周期系向けの第一原理プログラムでの電子状態計算は困難であった。さらに、キャリア移動や光電変換過程は電子状態が動的に変化するため、その実時間シミュレーションも必要である。

我々は量子化学分野の大規模法であるフラグメント分子軌道(FMO)法と GW/Bethe-Salpeter 法を用いた分子集合体向けの励起状態計算手法の開発を行ってきた[1]。この FMO 法ではフラグメント軌道(ワニエ関数に対応)を基底として励起状態ハミルトニアンを計算するため、電子励起状態の“低エネルギーモデル”を系統的に導出することができる。さらに、モデルハミルトニアンを分子振動・熱浴の効果を考慮しつつ実時間発展させることにより、実在系の励起状態ダイナミクスの解析が可能となる。これまでに有機半導体薄膜の励起子ダイナミクスや有機薄膜太陽電池の電荷分離ダイナミクスへの応用を展開してきた。

本ポスター発表では、最近の応用例である有機薄膜太陽電池の電荷分離ダイナミクスと分光シグナルに関する研究を紹介する[2]。励起状態の過渡種の解析には様々な時間分解分光法が用いられてきたが、これらの分光シグナルの解析は容易ではない。そこで、我々は実時間ダイナミクスから過渡吸収スペクトルなどを計算できるようにプログラム開発を行った。本発表では、これらの結果を紹介するとともに、データ科学やデータ駆動科学との連携も探っていきたい。

文献

[1] T.F. and Y. Noguchi, *J. Phys. Chem. A* 125 (2021) 10580.

[2] T.F. and T. Hoshi, *J. Phys. Chem. B* 127 (2023) 7616,

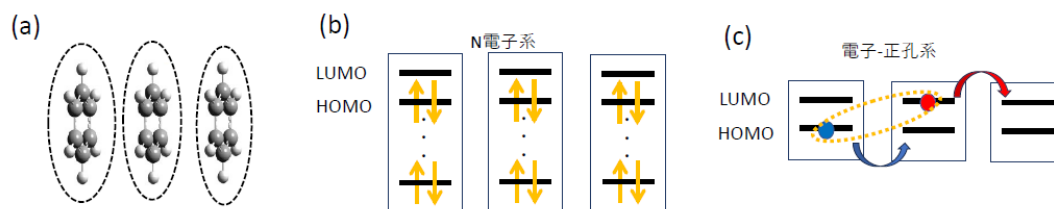


図: (a)FMO 法の模式図。分子を 1 フラグメントとして割り当てて、フラグメントとフラグメントペアの計算を行うことにより、全系の電子状態を近似する。フラグメント分子軌道を基底として励起状態ハミルトニアンの計算を行うことにより、全電子系計算から励起状態のモデルハミルトニアンの導出が可能となる((b)→(c))

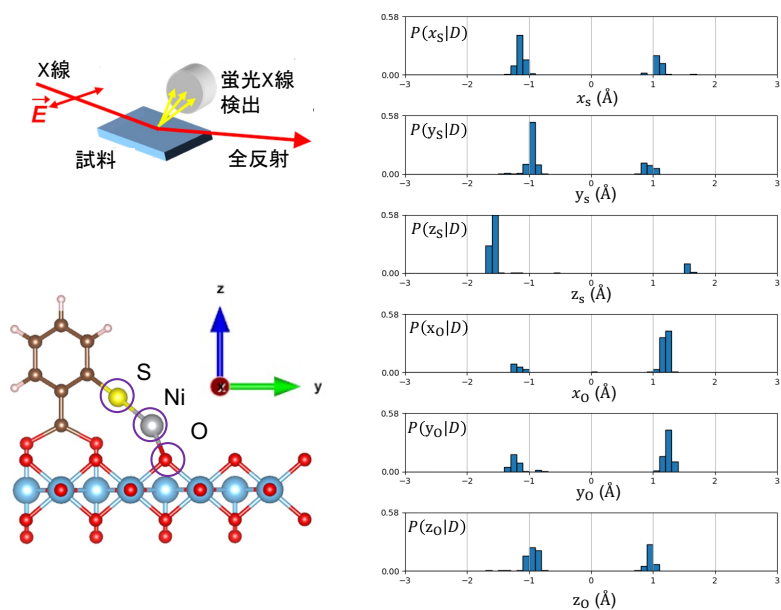
計測データ解析フレームワーク 2DMAT による PTRF-XAFS 解析

星健夫^{1,2}, 沢頭孟³, 高草木達⁴核融合研¹, 東大物性研², 鳥取大³, 北大触媒研⁴

自作計測データ解析フレームワーク「2DMAT」[1-3]を、触媒分野における先端計測である偏光全反射蛍光-X線吸収微細構造(Polarization Dependent Fluorescent X-ray Absorption Fine Structure, PTRF-XAFS)実験(図1左上)[4,5]へ応用し、予備的結果を報告する。PTRF-XAFSでは、平滑基板上金属種の偏光 XAFS 測定により、金属種の3次元座標(xyz座標)を得ることができる。また、触媒反応中のオペランド計測[5]も最近可能となったことから、触媒計測のブレークスルーとして注目されている。本研究では、2DMATによる大域解析のテスト系として、 σ -メルカプト安息香酸(σ -MBA)で修飾したTiO₂(110)表面上Ni単原子(Ni/ σ -MBA/TiO₂(110), 図1左下)における、S-Ni-Oの3原子局所座標(図1左下)をとりあげた[4]。上記系は近年高機能触媒として着目されている単原子触媒系の例である。解析ではNi原子を原点として、S原子、O原子の座標を解析するため、6自由度 $X \equiv (x_0, y_0, z_0, x_s, y_s, z_s)$ 解析となる。並列(レプリカ交換)モンテカルロ法を用いて、ベイズ推定をおこなった。順問題ソルバーにはFEFF ver. 8.5L[6,7]をもちいた。実測のPTRF-XAFSスペクトルデータ(D と表記する)と計算でのスペクトルデータの残差関数(R-factor)を目的関数とする解析となる。ベイズ事後確率分布 $P(X|D) = P(x_0, y_0, z_0, x_s, y_s, z_s|D)$ を計算した。図1右には、周辺事後確率分布 $P(\xi|D)$ を描画した($\xi = x_0, y_0, z_0, x_s, y_s, z_s$)。PTRF-XAFSは符号の自由度を許した計測になるため、周辺事後確率分布でのピーク位置が正負にあらわれていることに対応する。予備知見なしに複数解(解候補)が正しく検出され、大域解析の有用性を示している。

[1] <https://github.com/issp-center-dev/2DMAT> [2] Motoyama *et al.*, *Comp. Phys. Commun.* 280, 108465 (2022). [3] 星, 他, 本会. [4] S. Takakusagi *et al.*, *J. Phys. Chem. C* 120, 15785 (2016). [5] B. Lu, *et al.*, *J. Phys. Chem. C* 125, 12424 (2021). [6] <https://feff.phys.washington.edu> [7] J.J. Rehr, *et al.*, *Comptes Rendus Physique* 10, 548(2009).

図1 PTRF-XAFSでのデータ解析; (左上)実験模式図, (左下)対象物質(Ni/ σ -MBA/TiO₂(110))図, (右)S原子, O原子のベイズ周辺事後確率分布($P(\xi|D), \xi = x_0, y_0, z_0, x_s, y_s, z_s$). Ni原子を座標原点に設定した。



物質科学シミュレーションのポータルサイト MateriApps の紹介

東大物性研¹、山形大²、東大理³、RIST⁴

井戸 康太¹、笠松 秀輔²、加藤 岳生¹、川島 直輝¹、
藤堂 眞治³、福田 将大¹、吉澤 香奈子⁴

近年の計算機や実験設備の性能向上に伴い、人の手だけでは処理の難しいほどの膨大な数のデータを収集できるようになり、さまざまな研究グループがデータベースを独自に構築し、公開するようになってきた。こうした公開データベースやデータ処理を行うツールを有機的に連携させることで、直接測定・シミュレーションすることの難しい物性値の予測器構築や、望む物性値を持つと予想される新物質提案などといったデータベースを活用した研究成果へと繋がるのが期待される。しかし、データベースを利用するユーザの立場になると、さまざまな公開データベースの中から、自身の目的に一番合致しているものを探すことは困難であろう。そのため、関連ツールを含めたデータベースの基本的な情報を効率よく収集でき、その簡単な使い方も体験できる環境を整備することが望まれている。

物質科学に関連したソフトウェアやデータベースといったアプリの情報を効率よく収集できるポータルサイトとして、MateriApps が挙げられる [1-5]。MateriApps では、国内外で開発された 300 以上の物質科学アプリの概要や特徴を紹介している。計算手法や対象としている系などのキーワードから検索できるよう、各アプリはキーワードでタグづけされている。キーワードに基づいた検索機能を用いることで、ユーザはやりたいことに合致したアプリを選ぶための参考情報を効率よく収集できる。近年では、アプリの利用方法や関連アプリとの簡単な連携方法を記載したレビュー記事というコンテンツも作成している。

本発表では、MateriApps の概要と基本的な使い方を説明する。また、MateriApps ポータルサイトに掲載されているレビュー記事を、物質科学アプリがプレインストールされた Linux 環境である MateriApps LIVE![6]上で実演してみることで、実際のサイト利用に近い実例も紹介する。

文献

[1] MateriApps ポータルサイト: <https://ma.issp.u-tokyo.ac.jp>

[2] Y. Konishi, et al.: JPS Conf. Proc. **5**, 011007 (2015).

[3] 本山裕一, 三澤貴宏, 加藤岳生, 藤堂眞治: 固体物理, **52**, 11 (2017) 743.

[4] 井戸康太, 笠松秀輔, 加藤岳生, 藤堂眞治: 静電気学会誌, **45**, 5, (2021) 188.

[5] MateriApps 紹介動画: <https://www.youtube.com/watch?v=yvnIVq7f08g>

[6] MateriApps LIVE!: <http://cmsi.github.io/MateriAppsLive/>



図 1: MateriApps のトップページ[1]

非平衡分子動力学法による欠陥が導入されたタングステンの格子熱伝導率の温度依存性への影響のシミュレーション

総研大¹、核融合研²、東大物性研³ 金森大悟¹、向井啓祐^{1,2}、星健夫^{1,2,3}、長坂琢也^{1,2}

- 1. 初めに** タングステンは核融合炉材料の有望な候補であるが、利用に際し材料の特性が劣化することが知られている。本研究では、特に照射損傷によって生成される欠陥や微細組織が格子熱伝導率の温度依存性に与える影響をシミュレーションによって解明することを研究目的とした。
- 2. 計算方法** 非平衡分子動力学法を用いてタングステンの格子熱伝導率の温度依存性を計算した[1]。ソフトウェアはLAMMPSを利用した。直方体のシミュレーションボックスを作成しその中にタングステンの結晶を構築した。その後、格子熱伝導率を求めたい温度で原子が熱平衡状態になるように定温分子動力学法を適用した。高温と低温のランジュバン熱浴を与え定常状態になるまで計算を行い、定常状態になった後で高温側と低温側の熱浴が駆動する熱流束と温度勾配からフーリエの法則に従って格子熱伝導率を算出した。計算手順を図1に示す。

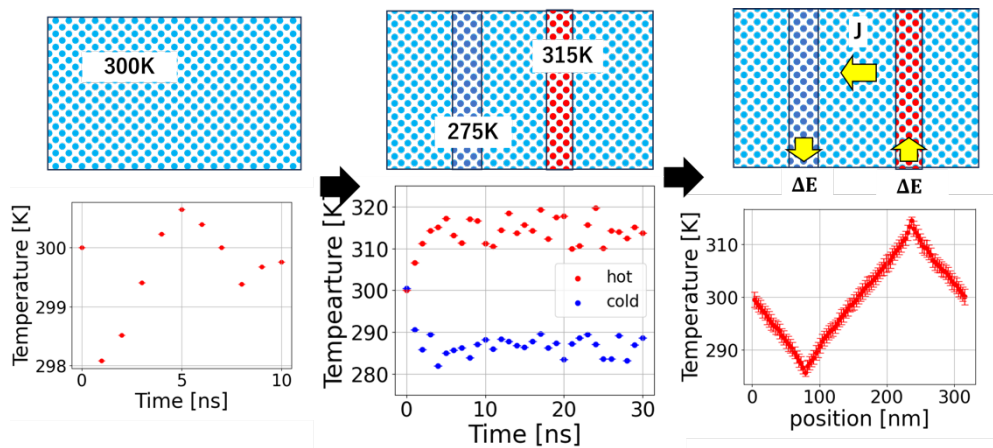


図1 格子熱伝導率の計算手順

- 3. 結果と展望** $6.33 \times 6.33 \times 315.5 [\text{nm}^3]$ のタングステンに対して、空孔が存在しない場合と原子数の2%・5%・10%のあたる空孔を導入した場合の格子熱伝導率を比較した。空孔が存在しない場合での格子熱伝導率の温度依存性はシミュレーションボックスの大きさによって異なり、温度が上がるにつれて格子熱伝導率は低下することが分かった。空孔を導入した場合、濃度が2%の空孔を導入し温度が500[K]以下の場合を除いて、熱勾配が線形に駆動されていないことが確認された。今後は空孔が導入されると熱勾配が線形にならない原因として、空孔拡散の影響がどの程度なのか明らかにし、欠陥を含んだ場合の格子熱伝導率を正しく計算する方法を検討する。また、2T-MDを適用し電子の熱伝導を考慮して計算を行い、より現実に近いシミュレーションを行う予定である[2]。

文献

[1] B. Fu et al.; J. Nucl. Mater, p.268-273, 427(2012).

[2] E. Zarkadoula et al.; J. Phys. Condens. Matter, p.135401, 27(2015).

強相関第一原理計算手法の擬一元分子性固体への網羅的適用

東大物性研¹、熊大院先導機構²、理研³、理研 CEMS⁴

吉見一慶¹、三澤貴宏¹、圓谷貴夫²、妹尾仁嗣^{3,4}

固体中の電子間に働く強い電子相関の効果によって、高温超伝導や量子スピン液体などの新奇量子相が発現することが知られており、それらの起源を解明することは現代の物性物理学の大きな挑戦となっている。近年の理論手法の発展とスーパーコンピュータの計算能力の大幅な発達によって、固体中の電子相関の効果を実験的かつ高精度に取り扱った計算を行うことが可能となりつつある。特に、強相関第一原理計算手法[1, 2]はこの 10 年で大きな進展をみせた計算手法である。この手法では、第一原理計算をもとにした低エネルギー有効模型導出と有効模型の高精度解析を組み合わせることで、固体中の電子相関の効果を実験的に解析することが可能となっている。この強相関第一原理計算の各パートを実行するソフトウェア開発は最近活発に行われている。例えば、第一原理計算を行うソフトウェア「Quantum ESPRESSO」[3]、有効模型導出を行うソフトウェア「RESPACK」[4]、有効模型解析を行うソフトウェア「mVMC」[5]、「HΦ」[6]などのソフトウェアが公開されており、これらを用いることで系統的な強相関第一原理計算をスムーズに実行できるようになっている。

本発表では、この強相関第一原理計算手法を擬一次元分子性固体 TM_2X ($TM=TMTSF, TMTTF, X:1$ 価陰イオン) に対して適用した結果について述べる。 TM_2X は圧力印加や分子置換の変化により、磁気秩序・電荷秩序・超伝導などの多彩な量子相を示すことから、強相関電子系の典型例として実験・理論の双方から盛んに研究されている[7]。これらの量子相の多様性を支配するパラメータについては、次元性、2 量体化の大きさ、さらには電子相関の効果も含めて、様々な提案がなされてきた。しかしながら、ユニットセル内に 100 個以上の原子を含む複雑な構造を持つ分子性固体に対して、第一原理計算に基づく電子間相互作用の定量的見積もりは困難であったため、系統的な評価はこれまで行われてこなかった。本研究では、今までに開発を行ってきたソフトウェアを用いて、格子構造の情報を入手することができた 8 個の TM_2X に対して網羅的な強相関第一原理計算を行った。その結果、アニオンを変えた相図のトレンドを再現することに成功するとともに、 TM_2X での電荷/磁気秩序を支配している主要なパラメータがクーロン相互作用であることを明らかにした[8]。

文献

- [1] レビューとして、M. Imada and T. Miyake, *J. Phys. Soc. Jpn.* **79**, 112001 (2010).
- [2] 高温超伝導体の適用例の解説として、三澤 貴宏、*日本物理学会誌* vol.77 No.1 (2022).
- [3] P. Giannozzi, O. Andreussi, T. Brumme *et al.*, *J. Phys.: Condens. Matter* **29**, 465901 (2017).
- [4] K. Nakamura, Y. Yoshimoto, Y. Nomura *et al.*, *Comp. Phys. Commun.* **261**, 100781 (2021).
- [5] T. Misawa, S. Morita, K. Yoshimi *et al.*, *Comp. Phys. Commun.* **235**, 447 (2019).
- [6] M. Kawamura, K. Yoshimi, T. Misawa *et al.*, *Comp. Phys. Commun.* **217**, 180 (2017).
- [7] レビューとして、D. Jerome, *Chem. Rev.* **104**, 5565 (2004).
- [8] K. Yoshimi, T. Misawa, T. Tsumuraya, and H. Seo, *Phys. Rev. Lett.* **131**, 036401 (2023).

文部科学省データ創出・活用型マテリアル研究開発プロジェクト (DxMT) データ連携部会中核機関の活動について

石一智、吉川英樹、源聡、木野日織、出村雅彦（物質・材料研究機構(NIMS)
三澤貴宏、古宇田光、吉見一慶、尾崎泰助（東京大学物性研）

我が国では令和3年4月に決定された「マテリアル革新力強化戦略」の下、「マテリアル研究DXプラットフォーム」の構築が進められている。その中で、新物質・新機能材料の創出を目指す「データ創出・活用型マテリアル研究開発プロジェクト (DxMT)」が、令和4年4月から9年間の事業として開始した[1]。

本ポスターでは、DxMTプロジェクトの5つの拠点に共通する技術課題の開発と共有、広報、人材育成などの横串的な機能を担うデータ連携部会の活動について紹介する。また、データ駆動型の研究に用いられるツール・データベースの情報を紹介するポータルサイト「MatDaCs」の活動についても紹介を行う。

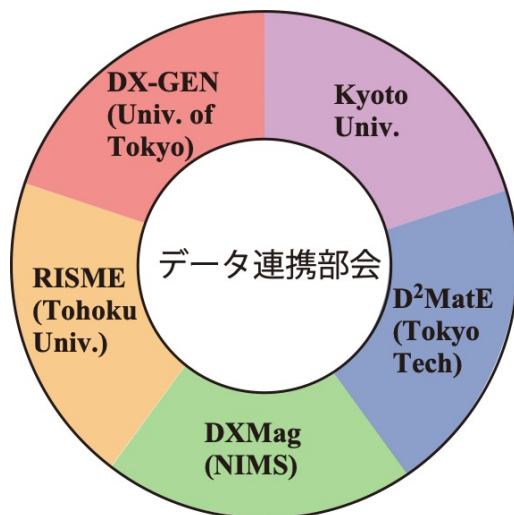


図1:データ連携部会と各拠点の概念図。データ連携部会は5つの拠点（東北大拠点、NIMS拠点、東大拠点、東工大拠点、京大拠点）の活動を支援する横串機能を担う。

文献

[1] <https://dxmt.mext.go.jp>

[2] <https://mat-dacs.dxmt.mext.go.jp>

多軌道系のスパースモデリング解析接続

東大物性研¹、埼玉大理²、岡山大基礎研³ 本山裕一¹、品岡寛²、大槻純也³、吉見一慶¹

量子多体系のスペクトル関数 $\rho(\omega)$ を虚時間経路積分に基づく数値手法、例えば量子モンテカルロ法で求める場合、まず温度グリーン関数 $G(\tau)$ を求め、積分方程式 $G(\tau) = \int d\omega \frac{e^{-\tau\omega}}{1 \pm e^{-\beta\omega}} \rho(\omega) \equiv \int d\omega K_{\pm}(\tau, \omega) \rho(\omega)$ を解く必要がある（符号はそれぞれフェルミ粒子系・ボース粒子系）。積分核 K は振動数 ω に対して指数関数的に小さくなるため、得られるスペクトル関数は特に高振動数領域において、温度グリーン関数のゆらぎ（モンテカルロ法の統計誤差）に対して不安定になるという問題が知られている。この問題を解決するためにこれまで様々な手法が開発されてきた。我々はこれまで、積分核の特異値分解を利用した中間表現基底[1]とスパースモデリングによるノイズ除去を行う手法(SpM)[2]や、SpM とパデ近似を組み合わせた手法(SpM-Pade)[3]を開発してきた。これらの研究では、軌道対角なグリーン関数、すなわち、定義に現れる生成消滅演算子が作用する軌道が同じであるようなグリーン関数を考えてきた。一方、多軌道で、軌道混成のある系では、非対角グリーン関数 $G_{ab}(\tau)$ が現れ、スペクトル関数も非対角要素 $\rho_{ab}(\omega)$ を持つ行列 $\hat{\rho}(\omega)$ となる。このとき、グリーン関数の因果律は行列 $\hat{\rho}(\omega)$ の半正定値性として表されるが、各行列成分を独立に解析接続すると、非対角成分の影響により、半正定値性が破れた非物理的な結果が得られてしまう。そのため、安定して物理的な結果を得るためには、行列の半正定値性を満たすように、行列全体をまとめて解析接続する必要がある。

本発表では、多軌道系での温度グリーン関数行列の解析接続を SpM で行うことについて、得られるスペクトル関数行列の半正定値性や安定性、計算時間について議論する。

[1] H. Shinaoka, J. Otsuki, M. Ohzeki, and K. Yoshimi, Phys. Rev. B **96**, 035147 (2017).

[2] J. Otsuki, M. Ohzeki, H. Shinaoka, and K. Yoshimi, Phys. Rev. E **95**, 061302(R) (2017).

[3] Y. Motoyama, K. Yoshimi, and J. Otsuki, Phys. Rev. B **105**, 035139 (2022).

Influence of nitrogen doping and oxygen vacancy on the oxygen reduction on tetragonal ZrO₂(101) surface from exhaustive first-principles sampling

東大物性研¹、山形大学理学部² [Shibghatullah Muhammady](#)¹、春山潤¹、笠松秀輔²、杉野修¹

Proton-exchange membrane fuel cells (PEMFCs) show promise in sustainable energy applications due to the crucial rate-determining oxygen reduction reaction (ORR).¹ Instead of Pt-based materials, zirconia (ZrO₂) has emerged as a promising catalyst for the ORR at the fuel cell cathode when defects are introduced.^{2, 3} While the ORR activity on pristine ZrO₂ surfaces has been discussed,⁴ the role of defects remains unclear.

Using an exhaustive first-principles sampling, we simulated the defective tetragonal ZrO₂ (101) surface structure, recognized as the most stable among various surfaces,⁵ by introducing two nitrogen dopants at the expense of one oxygen vacancy.⁶ This sampling allowed us to observe several ORR intermediates with a large number of adsorption energies and structures, establishing a free energy distribution profile. Our analysis reveals the slightly reduced energy barrier for the rate-determining step, identified as the removal of OH* (OH* + H⁺ + e⁻ → H₂O), compared to the pristine surface. This result indicates that defects play a minor role in enhancing the ORR catalytic activity. Consequently, the observed increase in ORR current attributed to defects may arise from alterations in the potential profile or band structure due to an augmented number of carriers. This study provides valuable insights into the oxide-based ORR catalysts. Furthermore, we suggest that the exhaustive sampling, providing the large number of quantities, can be a starting point to direct our research to data-driven or machine learning-related research.

文献

- [1] K. Jiao, J. Xuan, Q. Du, Z. Bao, B. Xie, B. Wang, Y. Zhao, L. Fan, H. Wang, Z. Hou, and S. Huo; *Nature*, **595**, 361–369 (2021).
- [2] A. Ishihara, T. Nagai, K. Ukita, M. Arao, M. Matsumoto, L. Yu, T. Nakamura, O. Sekizawa, Y. Takagi, K. Matsuzawa, T. W. Napporn, S. Mitsushima, T. Uruga, T. Yokoyama, Y. Iwasawa, H. Imai, K. Ota; *J. Phys. Chem. C*, **123**(30), 18150–18159 (2019).
- [3] T. Mittermeier, P. Madkikar, X. Wang, H. A. Gasteiger, M. Piana; *J. Electrochem. Soc.*, **163**(14), F1543–F1552 (2016).
- [4] G. Wang, F. Huang, X. Chen, S. Wen, C. Gong, H. Liu, F. Cheng, X. Zheng, G. Zheng, M. Pan; *RSC Adv.*, **5**(103), 85122–85127 (2015).
- [5] C. Morterra, G. Cerrato, L. Ferroni, L. Montanaro; *Mater. Chem. Phys.*, **37**(3), 243–257 (1994).
- [6] S. Muhammady, J. Haruyama, S. Kasamatsu, O. Sugino; *J. Phys. Chem. C*, **126** (37) 15662–15670 (2022).

核融合炉の過酷な中性子照射環境と協奏し長寿命となり得る材料の探索

核融合研¹、九大応力研² 長坂琢也¹、渡邊英雄²

核融合科学研究所において2023年4月に発足した超高流束協奏材料ユニットでは、核融合炉を始めとするエネルギー・粒子の超高流束状態で駆動される原子集団の自己組織化や非平衡化合物を活用し、過酷環境に耐える、から適応する材料へのパラダイム転換によって、長寿命材料、あるいは高機能材料の創製を目指している[1]。そのような新材料探索の具体的な手法のひとつは、中性子重照射が誘起する非平衡化合物の析出メカニズムと、材料物性との相関を明らかにし、制御する技術を確認することである。本発表ではこのようなユニット活動の紹介と、具体例として核融合炉用低放射化バナジウム合金における照射誘起析出の実験の進捗、さらに物質科学シミュレーションとの連携の可能性について述べる。

低放射化バナジウム合金 (V-4Cr-4Ti 合金) は高温強度、耐照射性、液体金属リチウム冷却材との共存性 (耐腐食性) に優れることから、核融合炉のなかでも最もプラズマに近いところに配置され、エネルギー変換、トリチウム燃料増殖、そして放射線遮蔽を担うブランケット機器の構造材料として期待されている。10年程度の運転中に想定される中性子照射量は $5 \times 10^{26} \text{ n/m}^2$ で原子炉圧力容器30年間照射量の1000倍であり、例えば構成原子が鉄の場合平均で100回結晶格子位置からはじき出され、その損傷量は100 dpa (displacement per atom) と表される。中性子による一次はじき出し原子は結晶内で玉突きのように1000個程度の自己はじき出し原子を生み、それらが熱平衡をはるかに超える空孔、格子間原子といった格子欠陥となる。この格子欠陥に起因して材料が硬化し、それによって構造材料には許容できない脆性破壊が生じる、あるいは材料の膨れ (スエリング) が2%程度に達すると許容できない塑性変形が生じる、といったところから中性子照射下での寿命が定められる。

低放射化バナジウム合金の寿命を定める照射硬化とスエリングにおいて、過去の損傷量100 dpa 超の400~600°Cの中性子重照射実験により、30 dpa 程度までは増加するものの、それ以降は低下する、いわば照射効果の巻き戻し現象が報告されている[2]。照射硬化とスエリングのピークアウトは、照射前の熱処理では得られない照射誘起析出物 (Ti_5Si_3) の形成と同期していることから、その析出とバナジウム合金母相の界面、あるいは析出物そのものが照射欠陥の有効な消滅シンクになっているはずである。このような照射効果の巻き戻し現象を上手く活用すれば、重照射環境で自己回復し長寿命のバナジウム合金の開発が可能と考えられる。しかし、詳細なメカニズムは未だ不明であり、中性子重照射の機会が得られないため再現実験もなされていない。そこで本研究では、照射条件を系統的に変化させることが比較的容易な加速器重イオン照射を用いてこのような照射誘起析出の再現に取り組み始めた。具体的には、2.4 MeV の Cu^{2+} イオンを1hあたり0.65 dpaの損傷率で合金の表面に照射し、その飛程、すなわち深さ1.8 μm 付近の微細組織観察から損傷組織の解析と、ナノインデントによる照射硬化の評価をすすめている。

文献

[1] T. Nagasaka et al.; Plasma Fusion Res., **18**, 2505085 (2023).

[2] H.M. Chung; J. Nucl. Mater. **239**, 139-156 (1996).

計測データ解析フレームワーク 2DMAT の低速陽電子回折実験への応用

中野陽斗¹, Rezwan Ahmed², 望月出海², 和田健², 星健夫^{1,2,3}核融合研¹, KEK 物構研², 東大物性研³

我々は自作データ解析プログラム 2DMAT を開発し、先端計測におけるデータ解析を行ってきた [1-3]. そこでは、並列計算アルゴリズムを用いてスーパーコンピュータを活用することで、PC では実現できない高速・高精度なデータ解析が実現できる。従来は、KEK 物質構造科学研究所 低速陽電子実験施設 [4] における先端計測である全反射高速陽電子回折 (Total-Reflection High-Energy Positron Diffraction, TRHEPD, トレプト) を対象としてきた [2,3]. 本研究では、同施設における新しい先端計測である低速陽電子回折実験 (Low-energy positron diffraction, LEPD; 図 1 に模式図) へ応用した。LEPD は低速電子回折実験 (Low-energy electron diffraction, LEED) の陽電子版にあたる。陽電子の物理的性質により、LEPD は物質表面 (原子数層, 厚さ 1nm 以下) の原子座標のみを選択的にプローブし、より正確な解析が可能と期待されている。テスト計算として、Cu(001)-1x1 表面の表面垂直方向 (z) 座標について、第 1-4 層座標 (z_1, z_2, z_3, z_4) までを対象に逆問題型大域解析を行なった。順問題モジュール (座標から回折データを計算するモジュール) としては、LEED 解析に用いられる SATLEED [6] を用いた。予備的計算として、ISSP スーパーコンピュータ ohtaka を用いて、グリッド探索と最適化 (Nelder-Mead 法) を組み合わせた解析を行い、LEED 実験研究 [7] と一致する構造を得た。また得られた最適構造に対して、実験・計算の I-V 曲線は良い一致を示した。講演では、並列モンテカルロ法によるベイズ推定についても報告する。垂直入射の LEPD は、すれすれ入射の TRHEPD よりも観測可能な試料作成が容易なため、2DMAT による高速データ解析と合わせて、2次元物質構造解析にさらなるブレークスルーを起こすことが期待される。

文献

- [1] <https://github.com/issp-center-dev/2DMAT> [2] Motoyama *et al.*, *Comp. Phys. Commun.* 280, 108465 (2022). [3] 星, 本会. [4] <https://www2.kek.jp/imss/spf/> [5] K. Wada, *et al.*, *e-J. Surf. Sci. Nanotech.* 16, 313 (2018). [6] M.A. Van Hove, *et al.*, *Surf. Sci. Rep.* 19, 191 (1993). [7] Md Kabiruzzaman, *et al.*, *Evergreen.* 4, 10 (2017)

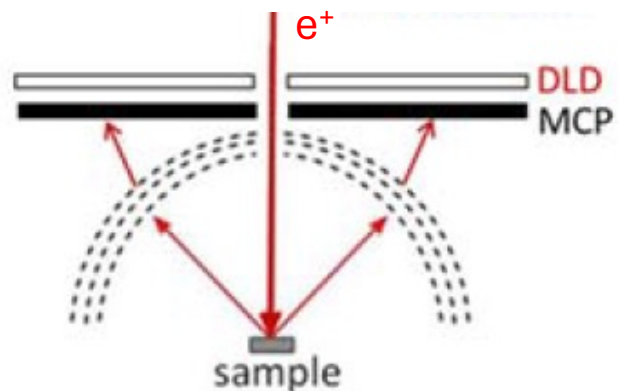


図 1 LEPD 実験模式図.

機械学習ポテンシャルを用いた W 中の原子空孔-水素複合体の構造とダイナミクスの研究

¹ 九大院総理工, ² 核融合科学研究所 野口湧喜¹, 加藤太治^{2,1}

【緒言】国際熱核融合実験炉 (ITER) や原型炉のダイバータ表面には、耐熱性・耐久性・低トリチウム吸蔵量といったダイバータに適した特性を持つタングステン (以下W) 材料が使用される。炉材料のトリチウム吸蔵量の定量的な予測が求められているが、W中の固溶水素が照射欠陥形成を促進し、一方で欠陥が固溶水素の濃度を増加させることが実験的に示されている[1]。また、計算の観点からもW中の空孔と水素の相互作用は密度汎関数理論 (DFT) による第一原理計算により報告されている[2]が、同計算で対象とする系の原子数は数百程度で限定的である。一方で、経験的ポテンシャルを用いる分子動力学 (古典MD) 計算では、W中の空孔結合エネルギーについて、第一原理計算と異なる結果を示している[3]。本研究では、第一原理MDシミュレーションの時空間スケールを拡張するため、第一原理計算の結果を教師データとする機械学習によりノンパラメトリックな原子間ポテンシャルを構築し、W中の欠陥集合体と水素との相互作用のダイナミクスを明らかにすることを目的とする。

【計算方法】本計算にはDFTに基づいた電子状態計算プログラムVASPを利用した。機械学習ポテンシャルの作成では、第一原理計算により求めた各原子の平均エネルギー、力、および応力テンソルを教師データとして、これらの特徴量を各原子の局所環境を表現する原子密度分布関数SOAPにより記述する。ベイズ線形回帰によってポテンシャルを構築し、これを用いて実施した有限温度のMD計算で得られた原子配置に対し、各原子の平均エネルギー、力、および応力テンソルを予測した。このとき、ベイズ線形回帰により求めた予測分布 (ガウス分布) の力の標準偏差が許容値を超えた構造について、適宜第一原理計算を実行して教師データを増やしていく、on-the-fly 機械学習[4]を行った。教師データには、 $3\times 3\times 3$ と $4\times 4\times 4$ スーパーセルのW結晶をモデル構造として用い学習を行った。

【結果】原子数 n の系において、 m 個の空孔の形成エネルギー E_f は各構造の全エネルギー E により以下の式で表される。

$$E_f = E(W_{n-m}V_m) - \frac{n-m}{n}E(W_n)$$

構築した機械学習ポテンシャルによるMD計算の結果を第一原理計算と比較したところ、 $4\times 4\times 4$ スーパーセルW結晶中の単空孔および二重空孔の形成エネルギーは、以下に示す第一原理計算との合成誤差 ΔE_f が100meV以下の精度で求まり、各構造の最安定構造の格子定数は 10^{-2}\AA のオーダーで一致した。

$$\Delta E_f = \sqrt{(\Delta E(W_{n-m}V_m))^2 + \left(\frac{n-m}{n}\Delta E(W_n)\right)^2}$$

また、機械学習ポテンシャルによる計算は第一原理計算に比べ 10^5 倍程度高速化を実現した。本発表では、空孔と水素を含む構造の計算についても両手法を比較し、機械学習ポテンシャルの有用性についてさらに評価する。

【参考文献】

1. S. Markelj *et al.*, *Nucl. Fusion*. **59** (2019) 086050.
2. K. Ohsawa *et al.*, *J. Nucl. Mater.* **527** (2019) 151825.
3. D. Kato *et al.*, *J. Nucl. Mater.* **417** (2011) 1115-1118.
4. R. Jinnouchi *et al.*, *Phys. Rev. B* **100**, 014105 (2019).
5. R. A. Johnson *et al.*, *Phys. Rev. B* **27**, (1983) 2014-2018.

結晶構造	形成エネルギー E_f [eV]	合成誤差 ΔE_f [eV]
単空孔あり	3.282 機械学習 MD	0.084
	3.169	
	3.168 [2]	
	3.17 [3]	
	3.60 [5] 古典 MD	
第一近接 二重空孔あり	6.499	0.045
	6.484	
	6.451 [2]	
	6.50 [3]	
	7.06 [5]	
第一近接 二重空孔あり	6.818	0.039
	6.778	
	6.816 [2]	
	6.81 [3]	
	6.32 [5]	
第三近接 二重空孔あり	6.456	0.058
	6.461	
	6.445 [2]	
	6.47 [3]	
	7.32 [5]	

表 W 中の単空孔および二重空孔の形成エネルギーの機械学習ポテンシャルMD計算と第一原理計算および古典MD計算との比較。

第一原理強磁性 Wannier 模型の対称性を考慮した構築と結晶磁気異方性への応用

東北大理¹ 齋藤寛人¹、是常隆¹

結晶磁気異方性は、磁性体の性質を決める最も基本的な物理量の1つであり、磁気抵抗メモリなどの様々な磁性体の応用を考える上で欠かせないパラメーターである。しかしその値はしばしば非常に小さいため、第一原理計算を用いて正確に求めるには注意を要する [1, 2]。本研究では第一原理計算の結果をもとに、空間群の対称性の適用およびスピノル内部空間で波数に依存しないゲージ固定を行うことで symmetry-adapted Wannier functions (SAWFs) [3]を構築し、時間反転対称性を利用して磁化とスピン軌道相互作用を分離することにより、高精度かつ低計算コストで結晶磁気異方性を計算する手法を開発した。さらにこの手法を強磁性体データベース中の 207 物質について適用し、結晶磁気異方性の大きな化合物を新たに発見した。本手法は磁気異方性だけでなく、異常ホール効果など磁性体に関するあらゆる物性の磁化方向依存性を計算する際にも利用可能である。

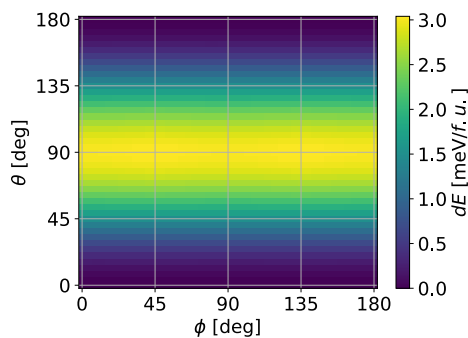


図 1: FePt の結晶磁気異方性の磁化角度依存性

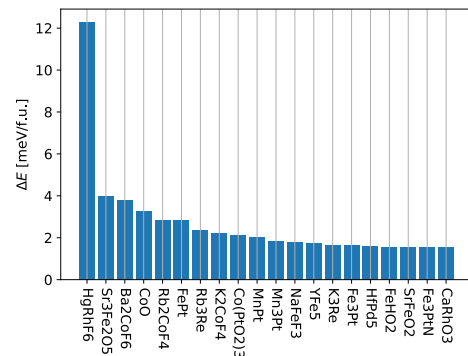


図 2: 結晶磁気異方性の大きな 20 物質

文献

- [1] G. Autes et al., J. Phys. Condens. Matt. 18, 6785 (2006).
- [2] J. Qiao et al., Comput. Phys. Commun. 238, 203 (2019).
- [3] Koretsune, Comput. Phys. Commun. 285 108645 (2023).

軟 X 線 XAFS タイコグラフィによる細胞内化学状態分布の可視化

東大物性研¹、JASRI²、東大先端研³、理研⁴ 櫻井快^{1,2}、竹尾陽子¹、吉永享太¹、Jordan T. O'Neal¹、島村勇徳^{1,2}、中田勇宇¹、江川悟³、寶本峻輝¹、井上圭一¹、志村まり⁴、木村隆志¹

細胞内では様々な生体物質が複雑に相互作用を起こし、多くの代謝反応を起こしている。細胞内での生体物質分布を正確に計測し代謝反応を理解することができれば、生物学のみならず医学、薬学の発展に大きく寄与することができる。

細胞内の精密計測に用いられるプローブの一つとして軟 X 線がある。軟 X 線は 0.6 nm~6 nm 程度の短い波長を持つ電磁波であり、高分解能イメージング手法であるタイコグラフィを利用することで、サンプルの複素透過率を数 10 nm の高い空間分解能で計測できる。またこの波長は光子エネルギーに換算すると 200 eV~2000 eV 程度である。このエネルギー領域では炭素、窒素、酸素など、生体内の主要元素の吸収端が含まれており、X-ray Absorption Fine Structure(XAFS)などを利用することで吸収スペクトルから DNA やタンパク質などの生体分子種の推定が可能である[1]。本研究ではこれらの手法を組み合わせた軟 X 線 XAFS タイコグラフィを利用して細胞内での化学状態の高分解能マッピングを行った。

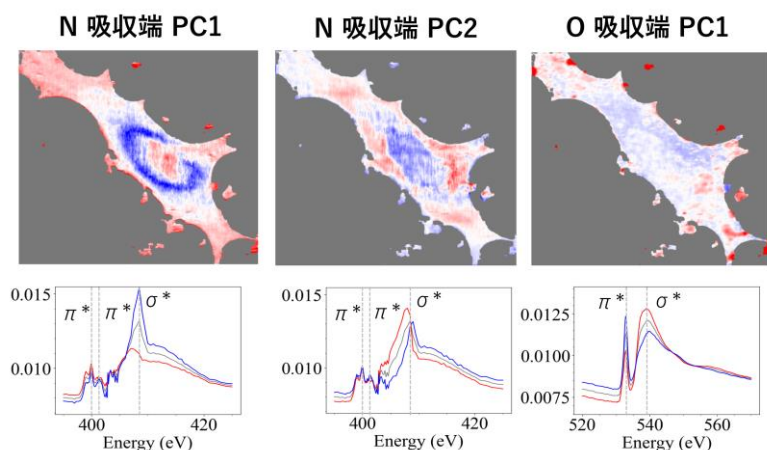
軟 X 線 XAFS タイコグラフィを実行するためには、高いコヒーレンスと輝度を持ち、単色性の高い軟 X 線光源が必要となるため、SPring-8 の軟 X 線アンジュレータービームラインである BL07LSU を利用した。私たちの研究グループでは、BL07LSU で全反射光学系を採用し、迅速に軟 X 線 XAFS タイコグラフィを実行可能な顕微鏡システムである CARROT を開発し、現在 50 nm の空間分解能を達成している[2]。このシステムを用いて窒素吸収端(395~425 eV)の 105 点と酸素吸収端(520~570 eV)の 104 点のそれぞれのエネルギーでタイコグラフィ計測を行い、縦、横、エネルギーの三軸を持つハイパースペクトル画像を取得した。スペクトルの変化を可視化するために、主成分分析によって抽出した上位主成分をマッピングすることで、図のように単色 X 線では識別が困難な細胞内構造の可視化に成功した。また、細胞生物学の観点からこれらの構造に対応する器官の推定を行い、推定された器官に含まれる生体物質とスペクトル特性が合致していることを確認した。

本手法は細胞内の生体物質を識別することが可能であり、炭素、硫黄、リンなど、より多くの元素種の吸収端を活用することで、生体物質種のより詳細な推定ができる可能性を持っている。

文献

[1] K. Shinohara; *Cells.*, **8**, 164 (2019).

[2] T. kimura; *Opt. Express*, **30**, 26220 (2022).



蛍光 X 線と透過 X 線を用いた、試料形態再構成と信号補正を行うアルゴリズムの開発

東大物性研¹、高輝度光科学研究センター²、理研³、東大院工⁴、東大先端研⁵
島村勇徳^{1,2,3}、森谷文香⁴、志村まり³、竹尾陽子¹、木村隆志¹、三村秀和⁵

X 線の中でも、軟 X 線は軽元素や軽金属と相互作用しやすい。そのため、これらが多く含まれる生体由来試料の解析に適している。しかし、強い相互作用のために過吸収（自己吸収）という現象が発生し、試料中の特定元素から発生した蛍光 X 線も試料中で減衰する。従来、原子間力顕微鏡を用いて試料形状を取得し、これを用いて蛍光 X 線信号を補正する手法が取られてきたが、測定環境が異なる情報を用いるため、空間分解能は 1 μm 程度に留まっていた。こうした物理的・手法的要因で、軟 X 線域での蛍光 X 線観察では、元素量の定量分析が困難だった。

本研究では、X 線のみを利用して蛍光 X 線信号を補正するアルゴリズムを提案する¹。このアルゴリズムでは透過 X 線量と蛍光 X 線量を計測し、両者の依存関係を利用した反復計算によって、最も確からしい解を求める。アルゴリズムは、Lambert-Beer 則と Fundamental parameter 法に基づいており、試料周辺環境をこれら法則でモデル化した。補正の過程で、試料の形態を再構成することができる。走査型 X 線顕微鏡と本アルゴリズムを組み合わせることによって、走査ピクセルごとに蛍光 X 線の信号補正が可能になる。

補正した信号を用いて元素量の定量分析ができるだけでなく、再構成した試料形態を用いて、元素濃度分析が可能になる²。こうした情報は従来簡単には取得できなかった。ピクセル毎で補正した形状を用いて、さらに全体の形状を考慮した補正によって、より精密な定量分析が可能になると期待される。

文献

- [1] T. Shimamura et al., Iterative over-absorption correction and sample topography reconstruction using low-energy X-ray fluorescence technique and X-ray absorption, under review.
- [2] T. Shimamura et al., Ultracompact mirror device for forming 20-nm achromatic soft-X-ray focus toward multimodal and multicolor nanoanalyses, Nat. Commun. to be published.

計測データ解析フレームワーク 2DMAT による多成分プラズマ解析

寺地雄真¹, 境健太郎¹, Lan Gao², Hantao Ji², 星健夫^{1,3}核融合研¹, Princeton Plasma Physics Laboratory², 東大物性研³

自作計測データ解析フレームワーク「2DMAT」[1-3]を、実験室宇宙物理学分野での多成分プラズマ解析[4]へ応用した。2DMATは逆問題解析を数理的基礎とし、ベイズ推定（並列モンテカルロ法によるベイズ事後確率分布計算）・最適化（並列化ベイズ最適化）などの先進アルゴリズムを実装しており、高速・高信頼なデータ解析を実現できる。2DMATでは順問題モジュールをとりかえることで、多種計測手法に対応している[2, 3]。また、研究者が順問題モジュールを追加することで新しい計測手法にも対応でき、本研究でも当該モジュールを追加することで実現している。

本研究では、超並列型計算であるポピュレーションアニーリングモンテカルロ(PAMC)法[2, 5]をもちいて、高出力レーザーを固体に照射して発生する非平衡多成分プラズマのスペクトル[4]について解析を行った。図1(a)に示すように、コイルターゲットにレーザーを照射することでコイル中に電流を流し、電流が作る磁場により磁気リコネクションを駆動した。磁気リコネクションの起こったその場におけるプラズマ（電子・イオン）の速度分布関数の情報を協同トムソン散乱により計測した。図1(b)は計測した散乱光の波長スペクトルであり、実験データを理論スペクトルでフィッティングすることで局所的な温度・密度・速度・イオン価数などを推定した。発表では、PAMC法からヒストグラムとして得られるベイズ事後確率分布についても、報告する。

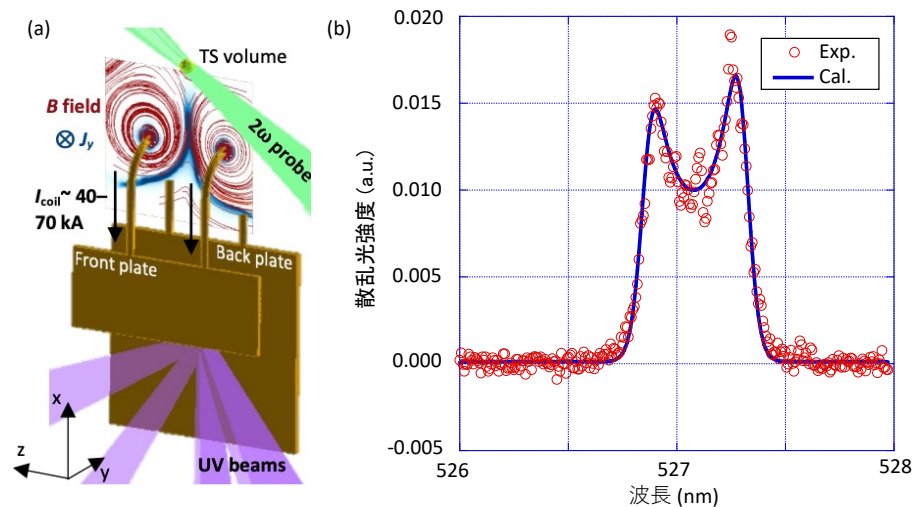
文献

[1] <https://github.com/issp-center-dev/2DMAT>[2] Motoyama *et al.*, *Comp. Phys. Commun.* 280, 108465 (2022).

[3] 星健夫, 本会.

[4] Zhang, *et al.*, *Nature Physics* 19, 909 (2023).[5] Hukushima and Iba, *AIP Conf. Proc.* 690, 200 (2003).

図1 実験室宇宙物理学分野における、非平衡多成分プラズマ[4] (a) 実験の模式図, (b) 散乱光スペクトル: 実験値(円)および計算値(線).



深層学習を活用したコヒーレント回折パターンのノイズ除去

東大物性研¹, JASRI², 理研³, 石川 卓門¹, 竹尾 陽子^{1,2}, 櫻井 快¹,
吉永 享太¹, 古谷 登¹, 木村 隆志¹, 吉見 一慶¹

フェムト秒 X 線レーザーを用いた単一ショットの画像イメージングは、高い空間および時間分解能を実現できる強力な測定技術[1]であり、新しい材料や生物学的構造の発見など、科学技術のブレークスルーをもたらす手法として期待されている。しかしながら、単一ショットでの測定を行うため、積分やバックグラウンドの減算などの一般的なノイズ削減処理ができず、分解能や再構成の精度が落ちてしまうという問題があった。その一方で、画像ノイズ削減技術は、様々な分野において研究されており、フィルタリング[2]やスパースモデリング[3]などを用いた手法が開発されている。その中で、近年、深層学習を用いた削減技術が注目されている。そこで、本研究では深層学習を活用したコヒーレント回折パターンのノイズ削減に取り組んだ。

深層学習では大量の学習データが必要となるため、ナノ粒子を原子の集合体として近似した模型の回折パターンをシミュレーションにより大量に生成し、擬似実験データとして準備した。その上で、ニューラルネットワーク、畳み込みニューラルネットワーク、および U-net を用いたオートエンコーダ[4]を作成し、ノイズ除去を実施した(図 1)。その結果、U-net がノイズ削減とサブフォトン再現において優れた性能を示すことを明らかにした。発表では、これらのネットワークの画像復元能力に関する検証結果と、実験データに関して学習モデルを利用しノイズ除去を行った結果について報告する。

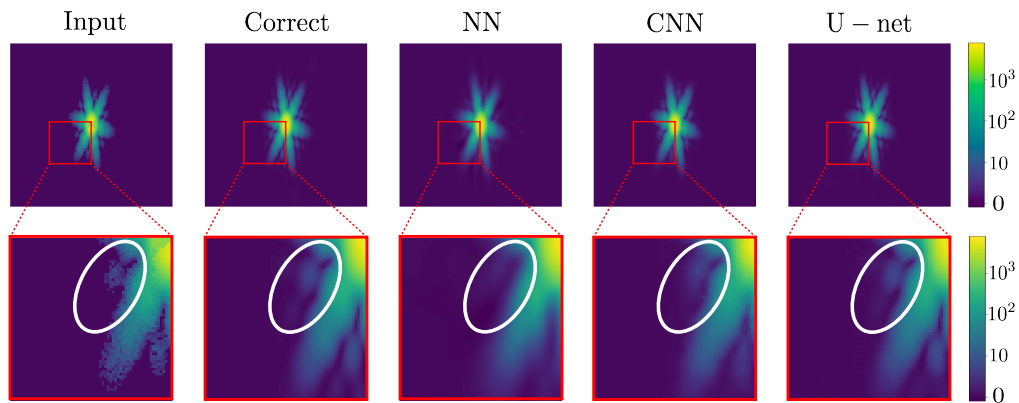


図 1 シミュレーションデータに対するノイズ除去

Input はノイズ付きのデータ、Correct はノイズなしのデータ、
NN はニューラルネットワーク、CNN は畳み込みニューラルネットワークをそれぞれ表す。

- [1] T. Ishikawa, H. Aoyagi, T. Asaka, et al., Nat. Photonics 6, 540–544 (2012).
- [2] A. Buades, B. Coll, and J. M. Morel, Multiscale Model & Simul. 4, 490–530 (2005).
- [3] D. Donoho, “Compressed sensing,” IEEE Trans. on Inf. Theory 52, 1289–1306 (2006).
- [4] I. J. Goodfellow, Y. Bengio, and A. Courville, Deep Learning (MIT Press, Cambridge, MA, USA, 2016).

大規模共用実験施設におけるクラウドデータ収集システム

東大情報基盤センター¹、東大院工²、東大院情報理工³
 華井 雅俊¹、河村 光晶¹、石川 亮²、鈴木 豊太郎^{1,3}、田浦 健次朗^{1,3}

物質科学研究に必要な最先端実験設備を学术界・産業界の幅広い研究者に提供するための大規模共用施設では、実験装置から取り出したデータを安全かつ利用しやすく管理することが重要となる。しかし、ネットワークを介してこれらの実験データを管理する場合には特有の困難が生じることがある。一例としては、装置管理用ソフトウェアの後方互換性等の制約により、実験装置制御用 PC のソフトウェアアップデートを行う事が出来ないためネットワークにつなぐことが出来ず、安全のために光学ディスクを用いてデータを輸送する事を強いられるという事がある。

我々はこのようなネットワーク接続に困難を抱える共用施設からデータ転送を容易にするために、クラウドシステムと実験装置を仲介する IOT デバイスの開発を行った [1]。ここでは我々の提案した新しいデータ転送アルゴリズムにより、各実験装置ユーザーのデータをクラウド上のプライベートストレージスペースに安全に割り当てられる。

我々はこのシステムをマテリアル先端リサーチインフラ (ARIM)プロジェクトに適用し [2]、材料研究開発の推進のためのより効果的な実験室情報管理システムを形成する基本的な構成要素として運用している (ARIM-mdx システム、図 1)。本発表ではシステムや ARIM での実装の詳細について述べ、開発した IOT 機器を用いたデモンストレーションも行う。



図 1: ARIM-mdx システム概略図。利用者の許可を得て公開可能となったデータは NIMS-RDE に送られシェアされる。実験装置からクラウドシステムへは、IOT 機器を介してファイルを一方通行で送るのみ許可しており、外部から実験装置 PC を攻撃されないように設計されている。実験装置 PC からは USB フラッシュメモリとして認識される IOT 機器は、実体としてはネット接続された Raspberry Pi である。

[1] M. Hanai, M. Kawamura, R. Ishikawa, T. Suzumura, and K. Taura, The 16th IEEE/ACM International Conference on Utility and Cloud Computing (UCC 2023).

[2] https://lcnet.t.u-tokyo.ac.jp/data_system/