

領域略称名：超秩序構造科学  
領域番号：20A206

令和5年度  
科学研究費助成事業「学術変革領域研究（A）」  
に係る中間評価報告書

「超秩序構造が創造する物性科学」

領域設定期間

令和2年度～令和6年度

令和5年6月

領域代表者 名古屋工業大学・工学研究科・教授・林 好一

# 目 次

## **研究組織**

1	総括班・総括班以外の計画研究	2
2	総括班・総括班以外の計画研究の研究代表者・研究分担者	3
3	公募研究	7

## **研究領域全体に係る事項**

4	研究領域の目的及び概要	11
5	審査結果の所見で指摘を受けた事項への対応状況	13
6	研究の進展状況及び主な成果	15
7	研究発表の状況	27
8	研究組織の連携体制	32
9	若手研究者の育成に係る取組状況	33
10	アウトリーチ活動に係る取組状況	34
11	研究費の使用状況・計画	35
12	今後の研究領域の推進方策	36
13	総括班評価者による評価	38

**研究組織**

(令和5年6月末現在。ただし完了又は廃止した研究課題は完了・廃止時現在。)

**1 総括班及び総括班以外の計画研究**

研究項目[1]	課題番号 研究課題名	研究代表者 氏名	所属研究機関・部局・職	人数[2]
X00 総	20H05878 超秩序構造科学のプラットフォームの構築による総括と研究支援	林 好一	名古屋工業大学・工学研究科・教授	10
A01-1 計	20H05879 エマージェント物性を生み出す超秩序構造の創出	谷口 博基	名古屋大学・理学研究科・准教授	6
A01-2 計	20H0580 社会実装に向けた超秩序構造物質ライブラリーに基づく合成プロセス開発	脇原 徹	東京大学・大学院工学系研究科(工学部)・教授	6
A02-1 計	20H05881 先端量子ビーム手法群によるナノ・メゾスケール元素選択構造計測	小原 真司	国立研究開発法人物質・材料研究機構・マテリアル基盤研究センター・グループリーダー	7
A02-2 計	20H05882 超秩序構造物質のマクロスケール物性と局所電子状態の計測	石川 毅彦	国立研究開発法人宇宙航空研究開発機構・宇宙科学研究所・教授	4
A03-1 計	20H05883 大規模・高精度な第一原理計算による超秩序構造の機能解明とデザイン	中田 彩子	国立研究開発法人物質・材料研究機構・ナノアーキテクトニクス材料研究センター・主幹研究員	3
A03-2 計	20H05884 数理情報科学に基づく超秩序構造の網羅的解析	志賀 元紀	東北大学・未踏スケールデータアナリティクスセンター・教授	3
<b>総括班及び総括班以外の計画研究 計 7 件 (廃止を含む)</b>				

[1] 総：総括班、計：総括班以外の計画研究

[2] 研究代表者及び研究分担者の人数（辞退又は削除した者を除く。）

## 2 総括班及び総括班以外の計画研究の研究代表者・研究分担者

研究項目：X00

研究課題名：超秩序構造科学のプラットフォームの構築による総括と研究支援

代表／ 分担	研究者氏名	所属研究機関・部局・職	役割分担
代表	林 好一	名古屋工業大学・工学研究科・教授	領域及び総括班全体の総括、及び領域研究全般の戦略策定
分担	谷口 博基	名古屋大学・理学研究科・准教授	海外共同研究の支援及び国際会議等の立案
分担	脇原 徹	東京大学・大学院工学系研究科（工学部）・教授	領域研究の産業利用への応用、その戦略の決定
分担	小原 真司	国立研究開発法人物質・材料研究機構・マテリアル基盤研究センター・グループリーダー	領域の複数グループの融合研究の立案、及び、その進捗の評価
分担	石川 毅彦	国立研究開発法人宇宙航空研究開発機構・宇宙科学研究研究所・教授	領域研究の共通課題の調査と設定、及び、その解決法の立案
分担	中田 彩子	国立研究開発法人物質・材料研究機構・国際ナノアーキテクトニクス研究拠点・主幹研究員	広報：ニュースレター、公募研究募集のちらし等の発行
分担	志賀 元紀	東北大学・未踏スケールデータアナリティクスセンター・教授	広報：領域ウェブサイトの制作及び管理・データベースの運営
分担	久保園 芳博	岡山大学・異分野基礎科学研究研究所・教授	国際領域研究の推進及び国際会議等の立案
分担	森川 良忠	大阪大学・大学院工学研究科・教授	若手支援及び「若手の学校」の企画
分担	松下 智裕	奈良先端科学技術大学院大学・先端科学技術研究科・教授	SPring-8 等大型施設での実験及びビームタイム申請時の支援、及び、領域事務の運営
合計 10 名			

**研究項目：A01-1****研究課題名：エマージェント物性を生み出す超秩序構造の創出**

代表／ 分担	研究者氏名	所属研究機関・部局・職	役割分担
代表	谷口 博基	名古屋大学・理学研究科・准教授	計画研究の総括、巨大分極応答性超秩序構造および光応答性超秩序構造の設計と探索、他班との連携の先導
分担	久保園 芳博	岡山大学・異分野基礎科学研究所・教授	新奇な量子物性を示す超秩序構造の設計と探索
分担	中島 清隆	北海道大学・触媒科学研究所・教授	革新的バイオマス変換に向けた新しい触媒活性超秩序構造の設計と探索
分担	武田 博明	埼玉大学・理工学研究科・教授	超秩序構造物質の大型高品質単結晶の育成
分担	田中 秀明	大阪大学・蛋白質研究所・准教授	金属含有タンパク質における電子伝達性超秩序構造の機構構解
分担	佐藤 友子	高エネルギー加速器研究機構・物質構造科学研究所・特別准教授	高圧下における超秩序構造物質の合成と物性評価
合計 6 名			

**研究項目：A01-2****研究課題名：社会実装に向けた超秩序構造物質ライブラリーに基づく合成プロセス開発**

代表／ 分担	研究者氏名	所属研究機関・部局・職	役割分担
代表	脇原 徹	東京大学・大学院工学系研究科（工学部）・教授	本計画研究の統括、高耐久性ゼオライトの合成と解析
分担	増野 敦信	京都大学・工学研究科・特定教授	主として無容器法を用いたガラスの合成および電子状態解析
分担	北村 尚斗	東京理科大学・創域理工学部・准教授	高速充放電リチウム二次電池材料の合成と電極特性の評価
分担	小野 円佳	東北大学・大学院工学研究科・教授	光ファイバー用ガラスの合成と光物性の評価
分担	伊與木 健太	東京大学・大学院工学系研究科（工学部）・講師	高耐久性ゼオライトの合成と解析
分担	若林 整	東京工業大学・工学院・教授	半導体試料の作製と物性評価、微細構造解析
合計 6 名			

**研究項目：A02-1**

**研究課題名：先端量子ビーム手法群によるナノ・メゾスケール元素選択構造計測**

代表／ 分担	研究者氏名	所属研究機関・部局・職	役割分担
代表	小原 真司	国立研究開発法人物質・材料研究機構・マテリアル基盤研究センター・グループリーダー	本計画研究の統括、A01班が合成した試料の放射光X線回折実験及び解析、他班との連携研究の先導
分担	林 好一	名古屋工業大学・工学研究科・教授	A01班が合成した試料の放射光蛍光X線ホログラフィー実験及びX線異常散乱の担当、放射光実験用複合装置開発
分担	小野寺 陽平	京都大学・複合原子力科学研究所・助教	A01班が合成した酸化物材料を中心とした中性子回折実験を担当、A03理論班との連携
分担	木村 耕治	名古屋工業大学・工学研究科・助教	A01班が合成した試料の蛍光X線ホログラフィー実験を担当、放射光実験用複合装置開発、A02-2物性Gとの連携
分担	田尻 寛男	公益財団法人高輝度光科学研究センター・散乱・イメージング推進室・主幹研究員	SPring-8における放射光実験用複合装置開発の主担当、放射光実験のサポート
分担	紅野 安彦	岡山大学・環境生命自然科学学域・准教授	A01班が合成した試料の放射光X線回折実験の担当、理論班との連携及びガラスの構造モデリング
分担	平田 秋彦	早稲田大学・理工学術院・教授（任期付）	A01班が合成した試料のオングストローム電子回折を用いた微小領域、微量試料の計測、A03理論班との連携
合計 7 名			

**研究項目：A02-2**

**研究課題名：超秩序構造物質のマクロスケール物性と局所電子状態の計測**

代表／ 分担	研究者氏名	所属研究機関・部局・職	役割分担
代表	石川 毅彦	国立研究開発法人宇宙航空研究開発機構・宇宙科学研究所・教授	本計画研究の統括、微小重力環境を利用した高温酸化物融体の熱物性計測の実施
分担	正井 博和	国立研究開発法人産業技術総合研究所・材料・化学領域・主任研究員	地上装置群を用いた酸化物ガラスの構造解析

分担	橋本 由介	奈良先端科学技術大学院大学・先端科学技術研究科・助教	硬X線光電子ホログラフィー分光装置の開発。軟X線光電子ホログラフィー分光装置を用いた実験
分担	横谷 尚睦	岡山大学・異分野基礎科学研究所・教授	軟X線光電子ホログラフィー分光装置を用いた機能性材料の電子構造及び原子配列の計測
合計 4 名			

### 研究項目 : A03-1

#### 研究課題名 : 大規模・高精度な第一原理計算による超秩序構造の機能解明とデザイン

代表／分担	研究者氏名	所属研究機関・部局・職	役割分担
代表	中田 彩子	国立研究開発法人物質・材料研究機構・ナノアーキテクトゥクス材料研究センター・主幹研究員	本計画研究の総括、大規模第一原理計算による超秩序構造物質の構造、機能の解明
分担	鷹野 優	広島市立大学・情報科学研究科・教授	第一原理計算や分子動力学計算による、超秩序構造物質の構造、機能の解明
分担	森川 良忠	大阪大学・大学院工学研究科・教授	第一原理計算や化学反応計算による、超秩序構造物質の構造、機能の解明
合計 3 名			

### 研究項目 : A03-2

#### 研究課題名 : 数理情報科学に基づく超秩序構造の網羅的解析

代表／分担	研究者氏名	所属研究機関・部局・職	役割分担
代表	志賀 元紀	東北大学・未踏スケールデータアナリティクスセンター・教授	本計画研究の総括、機械学習や材料情報学を活用した構造モデリングの開発
分担	松下 智裕	奈良先端科学技術大学院大学・先端科学技術研究科・教授	原子分解能ホログラフィーにおける原子像再生理論の開発
分担	大林 一平	岡山大学・AI・数理データサイエンスセンター・教授	パーシステントホモロジーを用いた位相的データ解析
合計 3 名			

### 3 公募研究

研究項目[1]	課題番号 研究課題名	研究期間	研究代表者 氏名	所属研究機関・部局・職	人数 [2]
公	21H05544 大規模量子分子動力学計算と準安定結晶構造探索に基づく超秩序構造の理論的研究	令和3年度 ～ 令和4年度	小林 正人	北海道大学・理学(系)研究科(研究院)・准教授	1
公	21H05546 環状ネットワーク侵入型発光中心と原子空孔のマルチプローブ分光	令和3年度 ～ 令和4年度	北浦 守	山形大学・理学部・教授	1
公	21H05547 中性子ホログラフィーの高分解能化による超秩序構造中の軽元素挙動の観測	令和3年度 ～ 令和4年度	大山 研司	茨城大学・理工学研究科(工学野)・教授	1
公	21H05549 超秩序構造が発現する原子ダイナミクスの解析	令和3年度 ～ 令和4年度	大窪 貴洋	千葉大学・大学院工学研究院・准教授	1
公	21H05550 ギガヘルツ帯電磁波が拓く固体酸触媒の動的超秩序構造	令和3年度 ～ 令和4年度	岸本 史直	東京大学・大学院工学系研究科(工学部)・助教	1
公	21H05551 電子顕微鏡直接観察に基づく Mg 合金中の溶質原子クラスター解析	令和3年度 ～ 令和4年度	江草 大佑	東京大学・大学院工学系研究科(工学部)・助教	1
公	21H05552 機械学習原子間ポテンシャルを用いた次世代電子素子中の超秩序構造の解析	令和3年度 ～ 令和4年度	渡邊 聡	東京大学・工学(系)研究科(研究院)・教授	1
公	21H05553 金属ホスホネート MOF 類縁化合物の構造欠陥の解明と制御	令和3年度 ～ 令和4年度	前田 和之	東京農工大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授	1
公	21H05560 局所構造記述子を用いた複合欠陥含有誘電体材料の解析と設計手法の探索	令和3年度 ～ 令和4年度	旭 良司	名古屋大学・未来社会創造機構・教授	1
公	21H05561 応力を用いた酸素空孔相の制御	令和3年度 ～ 令和4年度	高津 浩	京都大学・工学研究科・講師	1



公	21H05563 ねじれ X 字型分子が作る結晶内一次元チャンネルにおける超秩序構造の化学	令和 3 年度 ～ 令和 4 年度	焼山 佑美	大阪大学・工学研究科・准教授	1
公	21H05564 非晶質絶縁膜／ダイヤモンド単結晶界面極薄領域の超秩序構造	令和 3 年度 ～ 令和 4 年度	藤井 菜美	近畿大学・理工学部・准教授	1
公	21H05566 Bi 系Ⅲ-V族半導体混晶の機能発現機構の解明に向けた秩序構造の可視化と制御	令和 3 年度 ～ 令和 4 年度	富永 依里子	広島大学・先進理工系科学研究科(先)・准教授	1
公	21H05567 Fe-Fe 原子相関を超秩序構造とした不規則鉄合金の構造可視化	令和 3 年度 ～ 令和 4 年度	石松 直樹	広島大学・先進理工系科学研究科(理)・助教	1
公	21H05568 層状ペロブスカイトの層間侵入アニオンが形成する超秩序構造の解明と電氣的秩序の制御	令和 3 年度 ～ 令和 4 年度	赤松 寛文	九州大学・工学研究院・准教授	1
公	21H05569 放射光を用いた機能性ゼオライトの原子配列・電子構造そしてダイナミクスの研究	令和 3 年度 ～ 令和 4 年度	細川 伸也	熊本大学・産業ナノマテリアル研究所・特任教授	1
公	21H05572 強誘電性半導体におけるドーパント誘起超秩序構造の外場印加下の機能解明	令和 3 年度 ～ 令和 4 年度	中嶋 誠二	兵庫県立大学・工学研究科, 准教授	1
公	21H05573 単一の原子数と組成に秩序化された合金担持触媒の構造活性評価	令和 3 年度 ～ 令和 4 年度	中嶋 敦	慶應義塾大学・理工学部(矢上)・教授	1
公	21H05574 高分子のホストゲスト共結晶構造・共アモルファス構造の探索	令和 3 年度 ～ 令和 4 年度	千葉 文野	慶應義塾大学・理工学部(矢上)・講師	1
公	23H04093 大規模量子分子動力学計算と準安定結晶構造探索に基づく超秩序構造の理論的研究	令和 5 年度 ～ 令和 6 年度	小林 正人	北海道大学・理学(系)研究科(研究院)・准教授	1
公	23H04094 電子・陽電子プローブによって解き明かす酸化クロム膜における超秩序構造の階層性	令和 5 年度 ～ 令和 6 年度	北浦 守	山形大学・理学部・教授	1

公	23H04095 白色中性子ホログラフィーでの高分解能多検出器系の実装による軽元素超秩序構造の観測	令和5年度 ～ 令和6年度	大山 研司	茨城大学・理工学研究科・教授	1
公	23H04096 機械学習による NMR パラメータの解釈と原子構造推定データフローの構築	令和5年度 ～ 令和6年度	大窪 貴洋	千葉大学・大学院工学研究院・准教授	1
公	23H04097 ギガヘルツ帯電磁波が拓く固体酸触媒の動的超秩序構造	令和5年度 ～ 令和6年度	岸本 史直	東京大学・工学(系)研究科(研究院)・助教	1
公	23H04098 軽元素添加によって実現する界面超伝導の転移温度高温化	令和5年度 ～ 令和6年度	秋山 了太	東京大学・理学(系)研究科(研究院)・助教	1
公	23H04099 機能性酸化物薄膜における傾斜格子ひずみ誘起超秩序構造とスピン・双極子物性	令和5年度 ～ 令和6年度	田畑 仁	東京大学・工学(系)研究科(研究院)・教授	1
公	23H04100 次世代電子素子中の超秩序構造の機械学習ポテンシャルによる解析法の高度化とその応用	令和5年度 ～ 令和6年度	渡邊 聡	東京大学・工学(系)研究科(研究院)・教授	1
公	23H04104 超秩序構造に対するナノビーム X線を用いた時間分解回折構造研究	令和5年度 ～ 令和6年度	片山 尚幸	名古屋大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授	1
公	23H04105 同時ドーピングされた金属酸化物材料の巨大誘電率発現機構の解明と材料設計	令和5年度 ～ 令和6年度	旭 良司	名古屋大学・未来社会創造機構・教授	1
公	23H04110 酸化物中の水素超秩序構造の観測と水素機能の開拓	令和5年度 ～ 令和6年度	菅 大介	京都大学・化学研究所・准教授	1
公	23H04112 バタフライ型分子からなる一次元チャンネル含有結晶が作る超秩序構造の化学	令和5年度 ～ 令和6年度	焼山 佑美	大阪大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授	1
公	23H04113 非晶質領域の局所構造計測に基づく MOS 界面制御	令和5年度 ～ 令和6年度	上沼 睦典	奈良先端科学技術大学院大学・先端科学技術研究科・客員准教授	1
公	23H04116 バルク金属の多段階精密酸化プロセスによる酸素欠損型超秩序構造の創製と機能特性評価	令和5年度 ～ 令和6年度	松田 光弘	熊本大学・大学院先端科学研究部(工)・准教授	1

公	23H04117 放射光を用いた機能性ゼオライトの原子配列・電子構造そしてダイナミクスの研究	令和5年度 ～ 令和6年度	細川 伸也	熊本大学・産業ナノマテリアル研究所・教授	1
公	23H04118 ペロブスカイト型強誘電体における欠陥双極子の制御と超秩序構造設計	令和5年度 ～ 令和6年度	松尾 拓紀	熊本大学・国際先端科学技術研究機構・准教授	1
公	23H04119 Bi系リラクサーの誘電応答を支配する超秩序構造の理解と制御	令和5年度 ～ 令和6年度	萩原 学	慶應義塾大学・理工学部・講師	1
公	23H04122 CoDELMAの開発と原子ホログラフィー顕微鏡	令和5年度 ～ 令和6年度	大門 寛	大学共同利用機関法人自然科学研究機構・分子科学研究所・特別協力研究員	1
公	23H04124 ウルツ鉱型強誘電体の抗電界低減を可能とする置換カチオン探索	令和5年度 ～ 令和6年度	清水 荘雄	国立研究開発法人物質・材料研究機構・機能性材料研究拠点、独立研究者	1
公	23H04125 磁場によって誘導される蛋白質超秩序構造化の機構解明	令和5年度 ～ 令和6年度	新井 栄揮	国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構・量子生命科学研究所・上席研究員	1
公募研究 計 39 件 (廃止を含む)					

[1] 公：公募研究

[2] 公募研究は研究代表者が1名で実施

## 研究領域全体に係る事項

### 4 研究領域の目的及び概要

研究領域全体を通じ、本研究領域の研究目的及び全体構想について、応募時の領域計画書を基に、具体的かつ簡潔に2頁以内で記述すること。なお、記述に当たっては、どのような点が「これまでの学術の体系や方向を大きく変革・転換させる」ものであるか、研究の学術的背景や領域設定期間終了後に期待される成果等を明確にすること。

#### 「超秩序構造科学」がもたらす学術的変革

科学技術立国を目指す日本において、材料科学は国内屈指の得意分野の一つであり、世界の科学界を牽引してきた。しかしながら、近年、アジア諸国の台頭によって、その存在感は急速に失われつつある。このような状況を脱却するためには、現在でも世界最高水準レベルである分析・解析技術に立脚し、未開拓であった材料科学分野への挑戦が必須である。我々が解明する「超秩序構造」とは、完全規則性、完全無秩序からの構造的な“ずれ”である。例えば、結晶中の欠陥やガラスネットワーク構造における結晶的トポロジーを指す。本領域では、ドーパントや空孔・空隙、またはこれらの組み合わせによって形成される「超秩序構造」を中心に研究を推進する。「超秩序構造」は材料機能性の宝庫であり、高度に構造を制御することにより無限の可能性を創出できると考えている。我々は、「超秩序構造」を正確に決定できる計測、深く理解するための理論、構造制御のための合成プロセスを融合した学術変革領域「**超秩序構造が創造する物性科学**」を立ち上げ、材料開発に新たなブレークスルーをもたらし、日本科学のプレゼンスを強化する。

#### 背景及び全体構想

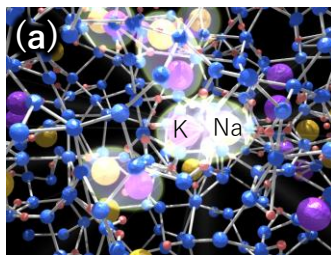
領域代表者は、**原子分解能ホログラフィー**と呼ばれる世界トップの手法を駆使し、新学術領域「**3D活性サイト科学**」を立ち上げ、ドーパント構造の3次元的解明に取り組んできた。3D観測された活性サイトは、少なからず、研究開始当初に想定された構造より複雑さに富んでおり、ナノレベルの特異的な構造を形成していることが改めて浮き彫りになった。このような秩序は、非晶質材料の研究においても見いだされている。「超秩序構造科学」以前の物性科学は、「完全秩序を持つ結晶」と「完全無秩序なアモルファス」についてほぼ独立に実施されており、「完全秩序」と「完全無秩序」との間に存在する中間的な構造の領域は、学問的にはほぼ未開拓であった。我々が取り組むのは、この領域に存在する特異構造の制御であり、結晶やアモルファスに高機能性を付与する重要な鍵因子であると考えている。この特異的な秩序構造を我々は「**超秩序構造**」と呼んでいる。

図1(a)-(c)は我々が決定した「超秩序構造」の例である。(a),(b)は、それぞれ、ガラス及び結晶の中の複合欠陥である。(a)は、異種アルカリ金属を添加させることによりガラスの耐食性を向上させる混合アルカリ効果についてであり、その効果の起源となる異種アルカリ原子対である。(b)はシリコンにヒ素を高ドーピングさせた際に形成される不活性なヒ素クラスターであるが、現在は中心の空孔にホウ素を導入することにより活性化させることに取り組んでいる。(c)は、アモルファス物質中の結晶トポロジーの例であり、例に示しているゼオライトは結晶化寸前に空隙を転写したような結晶トポロジーが出現する。このようなナノスケール秩序を基盤に、本研究領域の重点研究対象を、A「**ドーパント誘起超秩序構造**」、B「**空孔・空隙を含む超秩序構造**」、C「**結晶/アモルファス境界の超秩序構造**」と設定しプロジェクトを推進する。

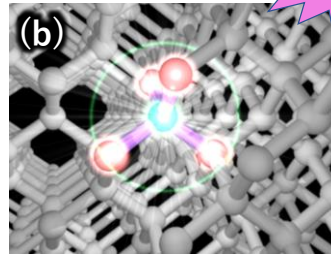
当該研究領域は、「超秩序構造」を正確に決定できる**原子分解能ホログラフィー**、**X線異常散乱**、**オンゲストローム電子回折**など世界屈指の計測技術を有していることを強みとしている。関連してX線・中性子散乱データからガラス構造のモデリングを行う**逆モンテカルロ法**にも精通しており、得られた正確な原子配列から、数学的解析法である**パーシステントホモロジー**などのトポロジー解析を用いて規則性の抽出に取り組む。本領域が対象とする複合欠陥やガラスネットワーク構造のナノスケール秩序の電子状態を理論的に取り扱うために、大量原子を取り扱えるオーダーN法第一原理計算プログラム**CONQUEST**などの**大規模第一原理計算**を活用する。これらの手法を用いて取り扱う材料は、誘電体、光学材料、触媒、超伝導体、そして、タンパク質と幅広い。上記手法で得られた構造情報と試料の物性情報をライブラリー(データベース)化し、これらの情報を基に機械学習を援用して「超秩序構造」を基盤とした材料設計を行い、新規材料の合成を実践する。

超秩序構造とは結晶・非晶質すべての「ボリューム」を持つ非周期秩序構造

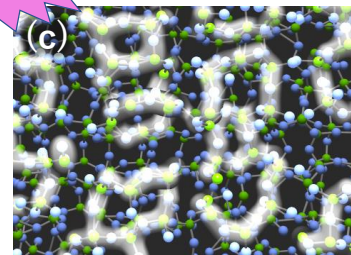
制御・新機能物性



(a) 硬質珪酸塩ガラスにおけるNa-K対



(b) 高濃度AsドープSi結晶中のAs<sub>4</sub>V (空孔)クラスター



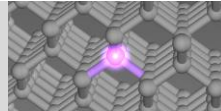
(c) ゼオライト前駆体における結晶トポロジー

A: ドーパント誘起超秩序構造

C: 結晶/アモルファス境界の超秩序構造

B: 空孔・空隙を含む超秩序構造

新学術領域  
3D活性サイト科学  
2014-2018



結晶中の「点」の活性サイトの解明  
世界初のドーパント立体構造解明と物性、新材料予測評価A

図1 様々な材料における「超秩序構造」。(a): Na-K対はイオン伝導を抑えガラスの化学耐久性を飛躍的に向上させる。(b): As<sub>4</sub>VクラスターはAsを高濃度にSiにドープした際に生じる。V(空孔)にBを導入できれば固溶限界を超えてドナー活性率を向上できる。(c): ゼオライトに高压処理を施すことにより得られる相であり、空隙は結晶化時に転写されゼオライト空孔を形成する。A、B、Cは本領域で取り扱う重点研究対象である。

上記目標を達成する領域組織として、総括班(X00)を中心にA01 試料班、A02 手法班、A03 理論班と3つの班が配置されている。総括班が、三つの研究項目をA01→A02→A03→A01のように駆動させ、領域全体を学理創成・国際展開・産業利用といった目標に向かって加速させる。A01,A02,A03班は二つの計画研究に分かれている。班内ではより密接な連携を常に行い、強固な班間連携へと反映させる。

### 領域設定期間終了後に期待される成果

本領域が行うのは、これまでに接点の少なかった結晶と非晶質のコミュニティーの統合であり、そのシナジー効果に基づく学術体系の変革である。実際に、これまでに結晶にしか適用されなかった原子分解能ホログラフィーを結晶/アモルファス界面構造に適用したり、ガラス構造のモデリングに利用されていた逆モンテカルロ法をホログラムからの原子像再生の精密化に利用している。また、ダイナミクス計測における結晶と非晶質の境界領域についてもJ-PARCの長期利用により議論を進めており、一定の成果が見受けられる。以下に申請時に記載した達成目標を示す。

- ①「超秩序構造物性科学の学理構築」：㊦「超秩序構造」の幾何学的指標を用いた体系化を行う。具体的には、結晶対称性を表す点群に代わるものを考案し、「超秩序構造」の概念を浸透させるために必須の達成目標である。㊧「超秩序構造科学」をコンセプトにした日本語・英語版の教科書の執筆を行う。
- ②「国際化と日本科学のプレゼンス強化」：㊦ 30%以上を国際共同研究の成果(国際共著論文)とする。我々の特筆すべき成果を海外の高名な研究者を通じて評価してもらうことは、我々の活動の国際的評価の向上に繋がる。㊧ 海外施設における本領域手法装置の常設化と定量的な物理量を求めるための手順を示す国際標準化を進める。
- ③「日本産業への貢献」：従来にない新規機能を創出できる「超秩序構造」のデザインと、それに基づく新規材料の合成及びデバイス開発を行う。具体的な出口目標として、㊦ CO<sub>2</sub>大幅削減を目指した900 °C耐熱超安定ゼオライト deNO<sub>x</sub>触媒、㊧ 100 cm<sup>2</sup>/V・s 移動度の低コスト薄膜トランジスタ、㊨ 強度二倍の割れないスマートフォン用カバーガラス、㊩ 比誘電率 10<sup>5</sup>級高温高信頼性キャパシタの開発と定める。

## 5 審査結果の所見で指摘を受けた事項への対応状況

研究領域全体を通じ、審査結果の所見において指摘を受けた事項があった場合には、当該指摘及びその対応状況等について、具体的かつ簡潔に2頁以内で記述すること。

### 「審査結果の所見」

●プロジェクトの目標でもある、「超秩序構造」のコンセプトに基づいた学理構築や材料創製などの領域研究推進について、「その実効性については必ずしも明確でなく、また、各計画研究の具体的内容が領域代表者の上記方針に十分に沿ったものであるのかどうかについてやや不安があり、コンセプトの深化と適切な研究領域運営が求められる。」

【回答】「超秩序構造」とは完全規則性、完全無秩序からの構造的な“ずれ”、物質に機能性を付与する中間相である。このコンセプトの理解と連携研究の促進を徹底するために、領域開始時より計画及び公募班の代表者には「3ヶ月毎の報告書」の提出を義務付け、総括班会議において厳密にチェックし、適宜、指導も行ってきた。これに加え、「超秩序構造科学」の概念や成果を広く世界に普及させるために、領域の英文テキスト“Hyperordered Structures in Materials – Disorder in Order and Order within Disorder”(Springer)を、公募班も含めた総勢25名のメンバーによって執筆し、2023年秋に出版される予定である。二年近くの執筆に関する議論の中で、コンセプトの理解は格段に深まったと考えている。また、日本物理学会の欧文誌 *J. Phys. Soc. Jpn.* においても、論文特集号“Hyper-Ordered Structures: Recent Progress and Future Perspectives”を2022年夏に発刊し、同様にコンセプト浸透の一助となった。なお、日本物理学会の援助により、本特集号の内容を元にしたショートムービーを作成した。



図2 2022年夏に発刊したJPSJ特集号

### 「留意事項」

●「計画研究 A01 (脇原) で述べられている「ライブラリー」の領域内における位置付けが明確ではない。」

【回答】我々が想定している「ライブラリー」とは、領域で取り扱う材料の構造・物性情報をオンラインデータベースに集約し、実試料との紐づけ(ライブラリーの構築)させることを指す。具体的には、試料の物性データに加え、ホログラムやX線散乱データをデータベースに登録し、その情報を元にした原子配列データや電子構造やパーシステント図もオンラインデータベース上で一元管理する。各試料にQRコードを付与することで、容易にアクセス可能なライブラリー構築に取り組んでいる。必要があれば、追加の計測を行うことも容易である。また、実験データだけでなく、関連化合物のシミュレーション結果も集約することで、各種データの系統的な解釈を加速し、超秩序構造物質の出口を見据えた活動を推進できる。領域内であるがサイトは既に運用しており、領域で取り扱っているシリカガラス、誘電体、ゼオライト、蓄電池材料などは、基本的にSPring-8やJ-PARCで計測を行った際に登録を行っている。特に、J-PARC長期利用で取り扱う試料のデータについては、この「ライブラリー」の中で一元管理する予定である。



図3 領域ライブラリー. 左より試料保管庫、試料とバーコード、データ管理ウェブサイト

●「社会実装を計画に含めていることは本領域の範囲を超えているように感じられ、領域の共通学理の構築にどのように歩調が合わせられていくのかについては、更なる説明が必要である。社会実装の部分は、他のプロジェクトに展開させる方針でも良いと思われる。」

【回答】領域で得られた超秩序構造と物性データを登録したライブラリー、加えて、データサイエンスによって導かれた材料合成法を、企業の製造プロセスにフィードバックさせることを目標としている。ゼオライトや蓄電池電極材料において、既に企業と社会実装に近い取り組みを行っているメンバーも居る

ため、モデルケース的な位置づけとして、その端緒となる部分において領域で得られた知見を組み込めれば良いと考えている。指摘にあるように、企業全体を巻き込み本格的に取り組む社会実装については、別プロジェクトにおいて進める方が適していると考えます。

### 「参考意見」

●「対象とする物質が広範に及びすぎており、ある程度絞り込む戦略の方が成果に繋がりやすいのではという意見が複数挙がった。」

【回答】非晶質材料については、主に酸化物ガラス、特に高圧等の特殊環境下による構造変成について注力して取り組んでいる。公募班の参画によって対象として加わった有機材料については、領域の手法が有効利用できる良い物質群だと考えている。また、(ヒアリングの際に触れた)蓄電池の電解液等については、研究対象として想定していない。結晶材料に関しては、「審査結果の所見」から、タンパク質を研究対象に含んでいることが広範に及ぶという印象を与えた可能性があると捉えている。蛍光 X 線ホログラフィーを用いた実験結果の一部は論文として成果公開している。[*Biochem. Biophys. Res. Commun.* 635, 277 (2022); *J. Synchrotron Rad.* 30, 368 (2023).] ここで得られた知見や手法的技術は、無機材料の超秩序構造の決定や役割解明に繋がれると考えている。

●「不純物を含む結晶から超格子、アモルファス、ガラスなど非晶質を統括して理解するための普遍的な学理・概念を明確化すべきではないか。」

【回答】指摘されている普遍的な学理・概念の明確化については、上記で述べているように、Springer の英文専門書や *J. Phys. Soc. Jpn.* 特集号出版に向けた議論や執筆活動等の取り組みの中で、統括的理解が進んだと考えている。また、議論の中で、“Disorder in Order / Order within Disorder”を今後の標語として掲げると決めており、英文専門書の題目としても採用した。規則の中の乱れ、そして、ランダムの中の秩序は、そのベクトルの向かう先のどこかに接点がある筈であり、トポロジー解析やダイナミクスのなどの研究を通じて領域期間中に見い出せると考えている。

●「X 線や電子線散乱の研究を中心に据えているが、規則構造を持たない非晶系の研究には、ダイナミクスや非平衡の実験研究グループが必要とされる。」

【回答】非晶質に関わるダイナミクス及び非平衡の研究については、公募班に細川伸也 教授(熊本大)や千葉文野 講師(慶応大)が加わっており、X 線及び中性子非弾性散乱を用いたダイナミクスの研究への展開が期待できる。また、テラヘルツ光によるダイナミクスの研究を進めている森 龍也 助教(筑波大)に協力研究員としてメンバーに加わってもらった。なお、本コメントに対応すべく、J-PARC の長期利用に課題申請を行い、中性子散乱及び非弾性散乱のビームタイムを長期的に獲得した。シリカ化合物において、乱れた結晶(Coesite)と秩序化ガラス(高圧ガラス)の非弾性散乱の計測において、似通った分散関係が観測されており、ダイナミクスの観点から“Disorder in Order”及び“Order within Disorder”の接点についての一つの回答を得られることが期待される。

### 「その他」

\*SPring-8 のビームライン改変計画に伴い、蛍光 X 線ホログラフィーや X 線異常散乱のアクティビティを、これまでの BL13XU から BL47XU に移し、そのための環境や装置的な整備を進めてきた。それに伴い、領域代表者 林は SPring-8(JASRI)において、「超秩序構造解析チーム」を新たに発足した。蛍光 X 線ホログラフィー/X 線異常散乱 複合装置の立上げに関してもビームタイムを確保することができ、そのために順調にユーザー利用に移行できた。

\*フランス・グルノーブルの国立研究所 SIMaP に若手の博士研究員を複数年の長期にわたり派遣している。ヨーロッパ連合放射光実験施設(ESRF)における領域の放射光実験、特に、コロナ禍におけるリモート実験では有効に役割を果たした。また、SIMaP を拠点とした国際会議を、2022 及び 2023 年度の二度開催することもでき、予想を超えた相乗効果があったと捉えている。(特に、2023 年度のは、新学術領域研究ハイパーマテリアルとの共催でもある。)

## 6 研究の進展状況及び主な成果

(1) 及び (2) について、計画研究及びそれと連携している公募研究ごとに、具体的かつ簡潔に記述すること。  
(一つの計画研究及び連携する公募研究で2頁以内)

(1) 領域設定期間内及び中間評価実施時までには何をどこまで明らかにしようとし、中間評価実施時までにはどこまで研究が進展しているのか

(2) 各計画研究で得られた成果、及びそれぞれの計画研究と連携している公募研究で得られた成果について、(計画研究・連携する公募研究の順で記載すること。なお、本研究領域内の共同研究等による成果の場合はその旨を明確にすること。)

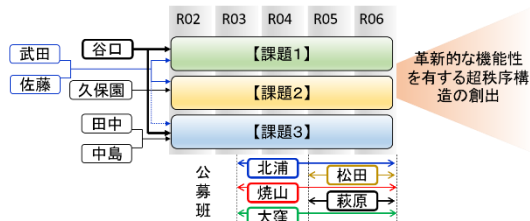
### [A01-1] エマージェント物性を生み出す超秩序構造の創出 (谷口 G)

#### (1) 領域設定期間内及び中間評価実施時までの目標、中間評価実施時までの進展状況

##### ① 研究期間内及び中間評価時点における目標

##### 【計画:課題1】「超秩序構造」による誘電体マルチチューナビリティの創出

これまでに見出した Nb 置換  $\text{TiO}_2$  中の巨大分極応答性超秩序構造、Zn: $\text{BaAl}_2\text{O}_4$  中の光応答性超秩序構造、アルミネートソーダライト型化合物中の圧電応答性超秩序構造を解明する。中間評価までに蛍光 X 線ホログラフィーや NMR による局所構造解析、第一原理計算による安定欠陥構造の同定に取り組む。



##### 【計画:課題2】「超秩序構造」による超伝導未来エネルギー材料の創製

「超秩序構造」によって制御された「50 K 以上の超伝導転移温度を有する物質群」を創製する。中間評価時点で、「超秩序構造」を有するエキゾチックな性質をもつ超伝導物質群を創製し、「超秩序構造」を蛍光 X 線ホログラフィーなどにより解明する。

##### 【計画:課題3】「超秩序構造」による高活性電子伝達複合体の創製

Co ナノ粒子と窒素含有カーボン担体の界面に超秩序構造を形成し、触媒として機能する金属状 Co 種を形成する。中間報告までに、Co 表面による酸素分子から活性酸素種の形成とそれを酸化剤としたバイオマス基質の触媒的酸化反応を構築する。一方、光合成を担う金属含有タンパク質フェレドキシン (Fd) については蛍光 X 線ホログラフィーにより金属クラスター周辺の像再生を目指す。Fd の電子伝達パートナーである FNR については、還元型 FNR の中性子構造解析を行う。

##### 【公募:北浦】 蛍光 X 線ホログラフィーや陽電子消滅寿命分光などによる長残光蛍光体の局所構造解析

長残光蛍光体中の光励起キャリアトラップ解明を目指す。中間評価までに新たに単結晶を育成し、蛍光 X 線・白色中性子ホログラフィーと陽電子消滅寿命分光の実験/理論計算を行う。(A02 小原 G とともに連携)

##### 【公募:焼山】 結晶内一次元チャンネル内部空間を利用した機能発現

鎖状分子を導入した一次元チャンネル構造を有するインダンジオン二量体結晶の誘電特性解明を目指す。中間評価までに微小試料の誘電特性を精密に評価するための測定系を構築する。(A02 小原 G とともに連携)

##### 【公募:大窪】 異価数元素置換 $\text{TiO}_2$ における局所構造の解明

Nb 置換  $\text{TiO}_2$  における Nb 置換サイト近傍の局所構造解明を目指す。中間評価までに単結晶 NMR に向けた試料作成と粉末試料における NMR 測定とスペクトルの同定を行う。(A03 中田 G とともに連携)

##### ② 研究の進展状況 (◎: 予定より進んでいる、○: 予定通り、△: 遅れている)

【計画:課題1】 異価数元素置換  $\text{TiO}_2$  において巨大分極応答性超秩序構造による誘電率増強効果を、Zn 置換  $\text{BaAl}_2\text{O}_4$  において光機能性超秩序構造による光誘電効果を、アルミネートソーダライト型化合物において間接型構造相境界に起因した超秩序構造による優れた圧電電圧特性をそれぞれ見出した。◎

【計画:課題2】 超伝導体の蛍光 X 線ホログラフィーならびに光電子ホログラフィーによる原子配列の直接決定に成功した。また、低温で三量体原子配置という特異な超秩序構造の決定に成功した。○

【計画:課題3】 Fd の電子伝達パートナーである FNR について、中性子構造解析を用いてすでに酸化型 FNR の構造は決定できており、還元型 FNR についても中性子データを収集済みである。◎

【公募:北浦】 新規黄色長残光蛍光体の蛍光特性において重要な役割を果たす超秩序構造を見出した。◎

【公募:焼山】 一次元チャンネル構造中に極性の超秩序構造を導入した高品質単結晶の作製に成功した。○

【公募:大窪】 Nb+Al 置換  $\text{TiO}_2$  において Al を核とした複数の局所構造が形成することを見出した。○



### ③第二期から開始の公募班との連携

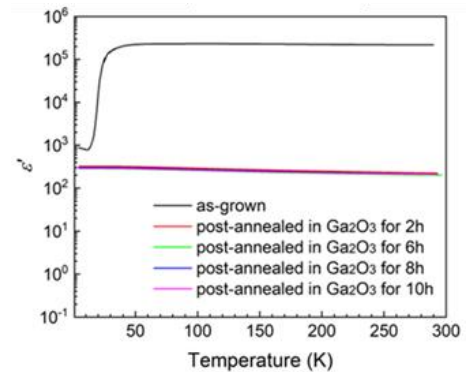
【A01 松田との連携】可視光応答性、導電性、強磁性を誘起する酸素欠損型超秩序構造を有するバルク成形体を創製する。

【A01 萩原との連携】誘電・磁気特性評価を連携して行う。セラミックコンデンサとして有望な Bi 系リラクサーの構造と電気的特性を評価し超秩序構造と物性の相関を解明する。(A02 小原 G とも連携)

## (2) 各計画研究、及び連携している公募研究で得られた成果について計画研究を中心とした成果

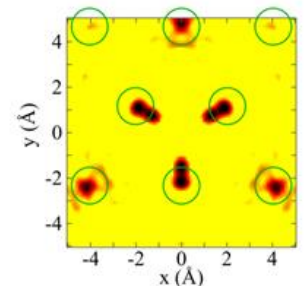
### 「異価数元素複合置換によるルチル型 TiO<sub>2</sub>の誘電特性および絶縁特性の増強」

ルチル型 TiO<sub>2</sub> に異価数元素を微量置換することによって誘電率が大きく増加する。この効果は巨大分極応答性超秩序構造を用いた誘電特性向上の新コンセプトとして期待される一方で、付随する絶縁特性の劣化が解決すべき課題であった。本研究では、Al 族酸化物粉末包埋下のポストアニールによって、誘電率増強効果を一定程度維持しつつ試料の絶縁性を完全に回復させることが可能であることを見出した。本研究の成果は、超秩序構造デザインによる高誘電率材料の新規開発を大きく加速するものである。[*J. Mater. Chem. C* **11**, 1304 (2023).] (A01 谷口 G、A02 小原 G、A03 中田 G、旭 G(公募))



### 「蛍光X線ホログラフィーによるトポロジカル絶縁体および強磁性物質の複数超秩序状態形成の解明」

トポロジカル絶縁体β-PdBi<sub>2</sub>のBiならびにPd面に生ずる「原子配列の乱れ」を蛍光X線ホログラフィーによって明らかにし、トポロジカル絶縁体における「原子配列の乱れ」がトポロジカル量子特性に与える影響を調べた。また、常温強磁性体Fe<sub>5-x</sub>GeTe<sub>2</sub>のGe原子周りとTe原子周りの局所構造を蛍光X線ホログラフィーにより調べ、低温において2つの秩序構造(1×1ならびに√3×√3)と1つの無秩序構造(1×1)が共存することを明らかにした。[*J. Phys. Chem. C* **126**, 21405 (2022).] (A01 谷口 G、A02 小原 G・石川 G)



### 「バイオマスプラスチック普及を志向した触媒プロセスの構築」

テレフタル酸の代替化合物を、非可食バイオマス由来のフラン化合物から合成する固体触媒反応プロセスを構築した。塩基性酸化物であるヒドロキシアパタイトに2-5 nm程度の金ナノ粒子を固定した超秩序構造体の触媒作用と副反応抑制のためのアセタール化を組み合わせた段階的プロセスにより、従来プロセスよりも10~20倍程度の生産性を向上させつつ環境負荷の低減に成功した。洗練されたグリーンプロセスによりテレフタル酸代替化合物となるフランジカルボン酸を安価かつ大量に合成可能なこの要素技術は、今後の化学工業における再生可能資源の利活用にとって重要な第一歩となる。[*Chem. Cat. Chem.* **14**, e202200191 (2022), Front Cover] (A01 谷口 G)

## 公募研究を中心とした成果

### 「蛍光X線ホログラフィーや陽電子消滅寿命分光などによる長残光蛍光体の局所構造解析」

新規黄色長残光蛍光体Ca<sub>2</sub>Al<sub>2</sub>SiO<sub>7</sub>:Eu,Tmにおいて重要な役割を演ずるドーパントの局所構造を探るために蛍光X線ホログラフィーを行った。EuとTmは共にCaサイトを占めることが判明した。TmがCaサイトを占める際に起こる電荷補償機構を探るために陽電子消滅寿命分光を行った。ドーパントの有無によって陽電子消滅に見られる欠陥寿命が変化しており空孔凝集体が電荷補償体として導入されることを明らかにした。[*Opt. Mater.: X* (投稿準備中)] (北浦 G(公募)、A01 谷口 G、A02 小原 G・石川 G)

### 「結晶内一次元チャンネル内部空間を利用した機能発現」

結晶中における次元性のコントロールは、機能性分子の配列と機能発現の観点から非常に重要である。特にチャンネル構造に代表的な一次元配列は、チャンネルに対し並行もしくは垂直といった刺激の添加によって明確な異方性を与えることができる。こうした一次元チャンネル構造を構築するインダンジオン二量体結晶に対し、大きな双極子モーメントを有する種々の鎖状分子を導入することに成功した。現在、その誘電応答性に関する評価を行っている。(焼山 G(公募)、A01 谷口 G)

## [A01-2] 社会実装に向けた超秩序構造物質ライブラリーに基づく合成プロセス開発（脇原 G）

### （1）領域設定期間内及び中間評価実施時までの目標、中間評価実施時までの進展状況

#### ① 研究期間内及び中間評価時点における目標

##### 【計画：課題1】超秩序構造材料の設計（ゼオライト、蓄電池材料、ガラス、半導体材料）

超精密原子配列制御が実現すればさらなる高機能化が期待される物質群の超秩序構造創製技術の開発を進める。中間評価までに、合成した各物質の機能と構造を系統的に評価する。

##### 【計画：課題2】超秩序構造物質のライブラリーをもとに実際にデバイスを試作

超秩序構造ライブラリーに基づき、デバイスに適した材料のスクリーニングを行い、デバイス試作を行う。中間評価までに、量子ビーム測定により超秩序構造ライブラリーを構築し、候補材料を選定する。

##### 【計画：課題3】スケールアップ合成プロセス開発

合成プロセスが超秩序構造に及ぼす影響を解明し、原子レベルの構造制御により設計した超秩序構造物質を創製する。その実現のため、中間評価までに差分解析法を確立させる。

##### 【公募：岸本】ギガヘルツ帯電磁波が拓く固体酸触媒の動的超秩序構造

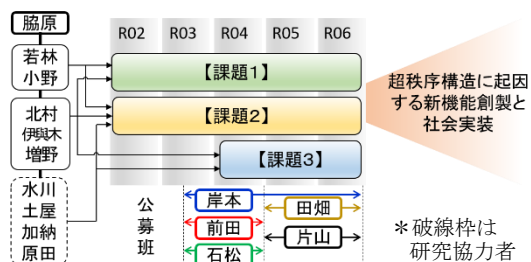
究極的な熱エネルギー集中場としてゼオライト細孔内の孤立イオンのマイクロ波による選択加熱に基づく、カチオンとゼオライト骨格の間での原子レベル温度勾配の形成を実証する。この状態を実験的に示し、マイクロ波によって引き起こされる非平衡原子振動場「動的超秩序構造」としての学理開拓を行う。（A01 谷口 G とも連携）

##### 【公募：前田】金属ホスホネート MOF 類縁化合物における構造欠陥の解明と制御

本研究では代表的な無機有機ハイブリッドナノ多孔体である MOF（Metal-Organic Framework）の材料特性に大きな影響を与える要因である構造欠陥や固溶体形成のメカニズム解明を目指す。

##### 【公募：石松】Fe-Fe 原子相関を超秩序構造とした不規則鉄合金の構造可視化

Fe-Fe 3次元相関を「超秩序構造」と捉えて合金構造を可視化し、その局所的な磁気体積効果が合金全体の体積変化に伝播するプロセスを XRD や XAFS を用いて見出す。（A02 小原 G・石川 G とも連携）



#### ② 研究の進展状況 (◎：予定より進んでいる、○：予定通り、△：遅れている)

【計画：課題1】希土類シリケート二元系ガラスの弾性率は、一般的なシリケートガラスのおよそ 1.5 倍に達していた。原子配列の特異性が、高弾性率高硬度に繋がることを突き止めた。○

【計画：課題2】チタンニオブ酸化物系材料の組成と電極作製プロセスの検討により、超秩序構造を制御することで、高い初期放電容量(270 mAh g<sup>-1</sup>以上)の達成と約 10%の容量維持率の向上に成功した。○

【計画：課題3】微細構造の異なる非晶質アルミノシリケートの調製に成功し、実際にその微細構造の違いがゼオライトの合成結果に影響を与えることを見出した。[*J. Am. Chem. Soc.* **144**, 23313 (2022).]◎

【公募：岸本】マイクロ波照射によるゼオライト細孔内の Cs カチオンの特異振動状態を in situ 放射光 X線全散乱測定によって実証し、「動的超秩序構造」の学理を構築した。また、これらを触媒反応場としたメタン酸化反応の速度・選択性の向上を実証した。[*Sci. Adv.* Under revision.]○

【公募：前田】様々な金属イオンのホスホネート系 MOF における固溶体形成挙動を Rietveld・PDF 解析を用いて調査した。Mn 等の 2 価金属種のみを含む物質では金属サイト欠損が生じるのに対し、4 価の V との固溶体形成は配位子欠損を伴うことがわかった。[*Dalton Trans.* 投稿準備中]△

【公募：石松】熱膨張ゼロの Fe-Ni インバー合金と金属的な熱膨張を示す Fe-Ni 合金の合金構造を比較し、強磁性-常磁性転移で磁気体積効果による Fe-Fe 原子対の伸長が収縮に転じる体積変化のプロセスを見出した。[*Phys. Rev. B* **103**, L220102 (2021); *Front. Mater.* **9**, 954729 (2022).]○

#### ③ 第二期から開始の公募班との連携

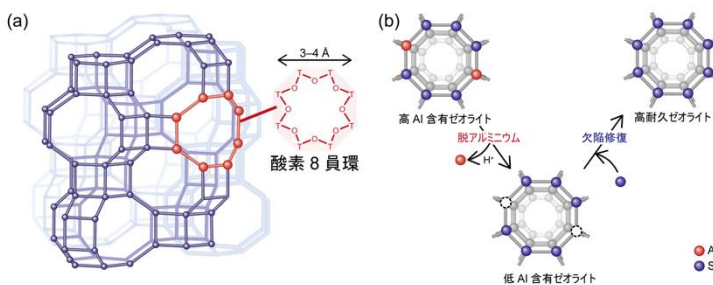
【A01 田畑との連携】傾斜歪超秩序構造が誘起する誘電、磁気、光学特性の複合機能創発研究を行う。このコンセプトをゼオライトに適用した新しい機能性酸化物創製を行う。（A02 石川 G とも連携）

【A01 片山との連携】ジグザグ鎖状超秩序構造を有する LiVS<sub>2</sub> に PDF 解析を適用し逆モンテカルロ法により構造モデルを構築する。

## (2) 各計画研究、及び連携している公募研究で得られた成果について、計画研究を中心とした成果

### 「小細孔ゼオライトの組成チューニング法開発」

触媒や吸着材として注目を集めるゼオライトの耐久性を高めるために重要なのがシリコンとアルミニウムの比率 (Si/Al) を用途に応じて最適化することである。このため、比較的容易に合成できる Al 含量の多いゼオライトから、合成後に Al を除去するという組成チューニング法が広く用いられている。しかしながら、小細孔ゼオライトでは Al の除去が難しいとされてきた。



これは、Al 種が小細孔ゼオライトの狭い細孔(図(a))を通り抜けられず、細孔内にとどまりゼオライトの構造自体を破壊することによる。これに対し、ゼオライト細孔内に有機物が入っている状態であれば Al を除去し、骨格構造も保つことができることを見出し、さらにに独自開発した欠陥修復処理技術を組み合わせることにより、安定性の向上が可能であることを示した(図(b))。この際に、細孔が拡大することで物質移動が可能になる新規メカニズムを提案した。[*Sci. Adv.* 8, eabo3093 (2023).] (A01 脇原 G)

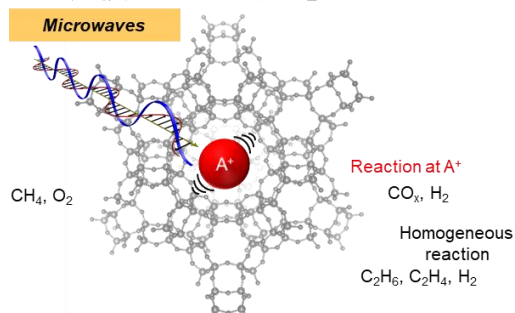
### 「超急速充放電の実現を目指した蓄電池用超秩序構造ライブラリーの構築と電極合成プロセスの最適化」

近年、電気自動車の開発が精力的に進められているが、本研究では、安全性と高容量を両立し、さらに急速充放電の実現が期待できる Ti-Nb-O 系負極材料に注目した。この物質では  $\text{TiO}_6$ ,  $\text{NbO}_6$  八面体がネットワークを構成しており、その隙間をリチウムイオンが挿入・脱離するが、合成条件がネットワークに及ぼす影響は不明であった。そこで、種々の条件で合成した材料について全散乱測定を行い、構造因子と簡約 2 体分布関数から超秩序構造ライブラリーを構築した。ライブラリーに基づき原子配列と負極特性の関係を検討した結果、稜共有している八面体のチルトによりネットワークが乱れ、負極特性が低下することが明らかになった。また、熱処理条件の最適化により、ネットワークの乱れの抑制と負極特性の改善に成功した。(A01 脇原 G、A02 小原 G・石川 G) (13 ページにも記載)

## 公募研究を中心とした成果

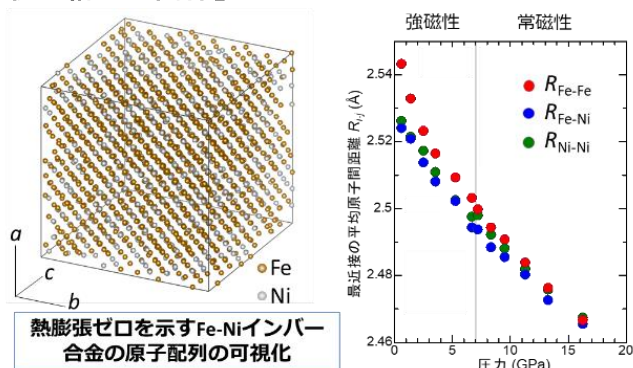
### 「マイクロ波によって誘起される動的超秩序構造を触媒反応場とした選択的メタン酸化」

マイクロ波照射によって固体触媒中の活性点のみに熱エネルギーを投入することで、副反応抑制と省エネ化・脱炭素化が期待されている。究極的な熱エネルギー集中場として、ゼオライト細孔内の孤立イオンのマイクロ波による選択加熱に基づく、カチオンとゼオライト骨格の間での原子レベル温度勾配の形成を初めて実験的に示した。この原子レベル高温状態を、マイクロ波によって引き起こされる非平衡原子振動場「動的超秩序構造」として学理開拓を行ってきた。この動的超秩序構造を触媒反応場としたメタン酸化反応によって、反応速度・選択性が劇的に向上することを実証した[*Sci. Adv.* under revision.]. (岸本 G (公募)、A01 谷口 G、A01 脇原 G)



### 「Fe-Ni 合金における熱膨張ゼロのインバー効果と超秩序構造の関係」

Fe-Ni 合金は 35-36 at.% の Ni 組成でインバー効果 (ゼロ熱膨張) を示すが、原子配列とゼロ熱膨張の関係には不明な点が残されている。本研究では、X 線回折と元素選択性のある広域 X 線吸収微細構造を逆モンテカルロ法で解析し、合金構造を導出した。その結果、Fe-Fe 原子間距離の磁化による伸縮がゼロ熱膨張の起源であることが明らかになった。[*Phys. Rev. B* 103, L220102 (2021). (プレスリリース)] (石松 G (公募)、A01 脇原 G)



## [A02-1] 先端量子ビーム手法群によるナノ・メゾスケール元素選択構造計測（小原 G）

### （1）領域設定期間内及び中間評価実施時までの目標、中間評価実施時までの進展状況

#### ① 研究期間内及び中間評価時点における目標

##### 【計画：課題1】量子ビームを用いた極微量・微小領域計測技術の確立

10 μm 程度の微小試料の蛍光 X 線ホログラフィー(XFH)測定、0.1 at.%程度の添加元素の X 線異常散乱(AXS)測定、Å 電子回折による微小領域測定を実施する。

【計画：課題2】マルチスケール元素選択構造計測環境の確立  
散乱実験において小角領域をカバーした解析を実施しナノ・メゾスケールの超秩序構造を導出する。

##### 【計画：課題3】複合装置による極限環境下における計測への挑戦

XFH や AXS によって、高温/高压等の極限環境下における超秩序構造観測に挑戦する。

##### 【公募：富永】Bi系III-V族半導体混晶の機能発現機構の解明に向けた秩序構造の可視化と制御

光伝導アンテナとして有望な Bi 添加 GaAs 薄膜の Bi 周辺の超秩序構造を解明する。中間評価までに蛍光 X 線ホログラフィーによる解析を行い Bi の位置や周囲の格子歪みを評価し物性との関連を見出す。

##### 【公募：中嶋】強誘電性半導体におけるドーパント誘起超秩序構造の外場印加下の機能解明

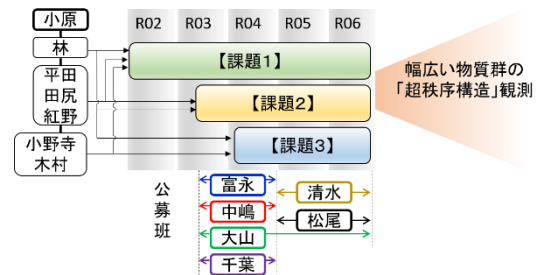
強誘電性半導体 BiFeO<sub>3</sub> に添加した遷移金属まわりの超秩序構造を蛍光 X 線ホログラフィーによって解明する。中間評価までに、新しく電圧印加その場測定技術を確立し、電場誘起構造変化を観測・評価する。

##### 【公募：大山】中性子ホログラフィーの高分解能化による超秩序構造中の軽元素挙動の観測

半導体材料に添加したホウ素の構造を軽元素に敏感な中性子ホログラフィーによって解析する。中間評価までに置換/格子間サイトの占有率評価や B クラスターのような超秩序構造の有無を明らかにする。

##### 【公募：千葉】高分子のホストゲスト共結晶構造・共アモルファス構造の探索

高分子 P4MP1 の結晶/非晶境界の超秩序構造の解明を目指す。中間評価までに小角/広角散乱を組み合わせた逆モンテカルロ(RMC)法による構造モデルを導出する。(A01 脇原 G とも連携)



#### ② 研究の進展状況 (◎：予定より進んでいる、○：予定通り、△：遅れている)

【計画：課題1】数十 μm のタンパク結晶の XFH 測定に成功するとともに三連装検出器による微量元素の AXS 測定を展開している。さらに、計算機内で仮想的に微小電子線を走査する解析手法を開発した。○

【計画：課題2】公募班の千葉・焼山と協力して小角領域を含めた散乱データの解析を行っている。中性子・X 線の散乱データが得られており、メゾスケールの構造モデル構築に取り組んでいる。○

【計画：課題3】A01-1 佐藤、公募班石松と協力し、ダイヤモンドアンビルセルによる高压 XFH を開発した。ノイズを劇的に低減する手法を見出し、10 GPa で試料由来のシグナルを観測できた。◎

【公募：富永】Bi ドープ GaAs 薄膜の XFH 測定を実施し、Bi は As サイトに入ることを確認した。また、周辺原子像が特徴的な形状を有すること分かり、Bi や周辺原子の位置ゆらぎを評価している。○

【公募：中嶋】電圧印加 XFH 測定技術を確立し、Mn ドープ BiFeO<sub>3</sub> 薄膜に適用した。電圧印加による Bi 原子像の移動を捉え、それを定量評価することができた。現在論文執筆中である。◎

【公募：大山】B ドープ Si の中性子ホログラフィー実験により、置換位置と間入位置の B が各々10%と定量評価できた。残りは B12 クラスターを形成しているものと予想される。現在投稿準備中である。○

【公募：千葉】重水素置換により様々にコントラストを調整した中性子小角・広角散乱を X 線散乱測定と組み合わせ、RMC 法を用いることで、構造モデルが得られつつある。○

#### ③ 第二期から開始の公募班との連携

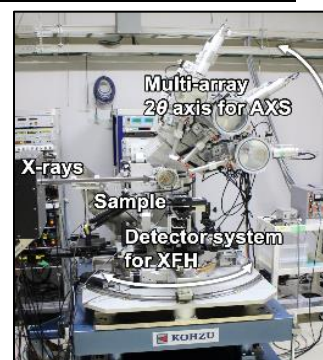
【A01 清水との連携】新規強誘電体として期待されるウルツ鋼型の Al<sub>1-x</sub>ScN 中の Sc 周りの超秩序構造を XFH によって明らかにし抗電界低減に向けた構造的知見を得る。

【A02 松尾との連携】特異な物性発現の起源となる欠陥双極子を持つ Fe または Mn をドープした BaTiO<sub>3</sub> の超秩序構造を XFH 測定によって明らかにする。

## (2) 各計画研究、及び連携している公募研究で得られた成果について計画研究を中心とした成果

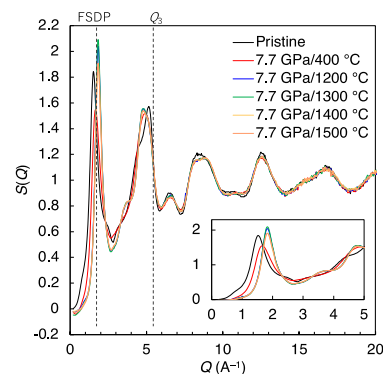
### 「X線異常散乱/蛍光X線ホログラフィー複合計測装置の製作」

超秩序構造計測のための世界唯一の X 線異常散乱/蛍光 X 線ホログラフィー複合計測装置を製作し 2022 年 3 月に SPring-8 BL47XU に導入した。2023 年 5 月でコミッショニングを完了し、現在、装置開発に関する論文執筆中である。単結晶 XRD を組み合わせたゼオライトの XFH 測定や、三連装検出器による微量元素の AXS 測定をはじめ、この装置ならではの計測方法によって、A01 が提供する試料を精力的に解析している。(A01 谷口 G、脇原 G、A02 小原 G・石川 G、高津 G(公募)、富永 G(公募))



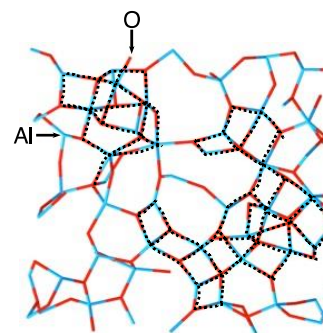
### 「高温・高圧により構造制御された超秩序構造永久高密度化ガラスの創製」

永久高密度化シリカ( $\text{SiO}_2$ )ガラスの合成はこれまで他班と共同で行ってきた。今回、A02-1 班ではより高温・高圧下から試料を回収することに成功した。合成されたガラスの密度は世界一高く、X 線回折パターンに現れる第一回折ピーク(first sharp diffraction peak, FSDP)は世界一鋭く、超高密度超秩序構造ガラスの合成に世界にさきがけて成功した。また、高圧下で温度を上げていくとどこまで FSDP が鋭くなるかについても検討を行った。図に示すように圧力 7.7 GPa においては 1300 °C までは FSDP は鋭くなるが、それより高温になると融点に近づくため、FSDP はブロードになる傾向を明らかにすることができた。*Sci. Rep., Nat. Mater.*に投稿準備中 (A01 谷口 G、脇原 G、A02 小原 G・石川 G、A03 志賀 G、大窪 G(公募))



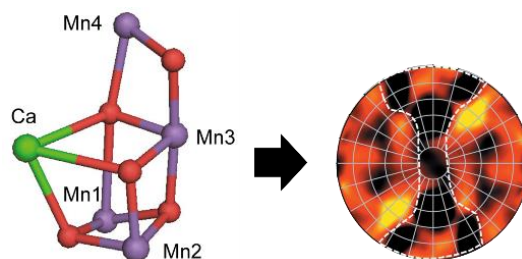
### 「アルミナガラスの超秩序構造」

アルミナ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ )は中間酸化物に分類され、単成分では高温液体を急冷してもガラスにはならないことが知られている。電気化学的に Al 金属をアノード酸化することによりアモルファスが得られることは知られていたが我々はこのアモルファスがガラス転移することを見出した。回折実験に基づいたデータ駆動型構造モデリングによりこのガラスには Al-O 多面体が頂点共有しているガラスらしい領域に加え黒破線で示したように多面体が稜共有している結晶らしい領域(超秩序構造)が混在していることを見出した。[*Sci. Rep.*, 12, 516 (2022).] (A02 小原 G)



### 「タンパク質の蛍光X線ホログラフィー解析技術の開発」

光合成を司るタンパク質 Photo system II の活性中心となる超秩序構造を蛍光 X 線ホログラフィーで解析する手法を確立した。マイクロビーム X 線を微小結晶の複数個所に照射しながらシグナルを集め、試料損傷を抑制し質の高いデータを得ることができた。さらにミオグロビンの XFH 測定により生体試料で初めて実空間原子像を得ることができた。[*J. Synchrotron Rad.*, 30, 368 (2023); *Biochem. Biophys. Res. Commun.* 635, 277 (2022).] (A01 谷口 G、A02 小原 G、A03 中田 G、志賀 G)



## 公募研究を中心とした成果

### 「強誘電性半導体 Mn ドープ BiFeO<sub>3</sub> 薄膜における電場下の原子変位解明」

近年強誘電体を半導体として用いる強誘電性半導体物性が新規スイッチングデバイスや新メカニズム太陽電池への応用に向けて注目されている。その際、電場下の超秩序構造解明が重要となるが、これまで明らかにされていない。そこで電場印加下における蛍光 X 線ホログラフィーを用いた原子構造解析を実施した。Mn ドープ BiFeO<sub>3</sub> 単結晶薄膜において、電場下における Fe を中心とした Bi 原子像を得ることに成功した。これによれば、電場下において Fe 原子に比べて Bi 原子の方が大きく変位していることが示唆された。*Sci. Rep.*に投稿準備中。(中嶋 G(公募)、A02 小原 G)

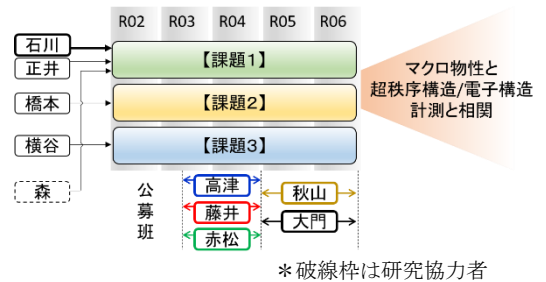
## [A02-2] 超秩序構造物質のマクロスケール物性と局所電子状態の計測（石川 G）

### （1）領域設定期間内及び中間評価実施時までの目標、中間評価実施時までの進展状況

#### ① 研究期間内及び中間評価時点における目標

##### 【計画:課題1】微小重力下と地上におけるマクロスケール物性の測定

超高温酸化融体の熱物性を微小重力環境において測定するとともに、NMR、陽電子寿命測定装置等の地上装置群を用いてガラスに存在する超秩序構造の探索を行う。中間評価までに、様々な酸化物について測定を行い、ガラス形成能やガラス中の超秩序構造に関する情報を提供する。



##### 【計画:課題2】硬X線光電子ホログラフィーによる「超秩序構造」の測定

硬X線光電子ホログラフィー分光装置を開発する。中間評価までに装置の設計・製作を完了させる。

##### 【計画:課題3】「超秩序構造」と電子状態の同時計測

軟X線光電子ホログラフィーを用いて、超秩序構造を含む物質の原子配列と電子状態の計測を行う。中間評価までにエキゾチック超伝導候補物質等について測定を行う。

##### 【公募:高津】応力を用いた酸素空孔相の制御

「応力下の低温トポケミカル反応」によって、酸化物結晶中に自在に超秩序構造を付与し、新しい次元性、操作性、組成をもった新物質へ進化・発展させることを目指す。中間評価までに酸素空孔秩序をしめす新物質の合成を目指す。(A02 小原 G とも連携)

##### 【公募:藤井】非晶質絶縁膜/ダイヤモンド単結晶界面極薄領域の超秩序構造

ダイヤモンド半導体の性能向上を決定づける絶縁膜と結晶界面に存在する欠陥の同定を目指す。中間評価までに光電子ホログラフィー測定によって界面欠陥の同定を行う。(A03 中田 G、志賀 G とも連携)

##### 【公募:赤松】層状ペロブスカイトの層間侵入アニオンが形成する超秩序構造の解明と電氣的秩序の制御

層状ペロブスカイトにおけるアニオン置換による構造歪み及び物性の制御を目指す。中間評価までにX線光電子ホログラフィーを用いてフッ素化した層状ペロブスカイトの局所構造計測を行う。(A01 谷口 G、A02 小原 G とも連携)

#### ② 研究の進展状況 (◎: 予定より進んでいる、○: 予定通り、△: 遅れている)

【計画:課題1】超高温の希土類酸化物や MgO-SiO<sub>2</sub> 系等様々な熱物性データを取得できた。また、SPS 法による SiO<sub>2</sub> ガラスの製作条件と構造の関係を明らかにした。○

【計画:課題2】硬X線対応の阻止電位型分析器 (RFA) の設計・製作を実施した。COVID-19 によって部品調達に影響が生じ、若干想定のスケジュールから遅れているが、今年度中に SPring-8 へ搬入予定である。○

【計画:課題3】エネルギー分解能の大幅な向上、試料の温度制御機能など装置の機能向上を行い、良好なホログラムを得ることができた。La(O,F)BiS<sub>2</sub> 層状超伝導体を対象にした研究で成果を挙げた。○

【公募:高津】酸素空孔が一次元に秩序化した SrCoO<sub>2</sub> など酸素空孔秩序をしめす新物質の合成に複数成功した。原子分解能ホログラフィーによる解析を進めている。○

【公募:藤井】ダイヤモンド半導体において電氣的な界面欠陥の起源となる原子構造が C-O-Al-O-C という架橋構造であることを同定した。[*Nano Lett.* **23**, 1189 (2023).] ○

【公募:赤松】フッ素を導入した層状ペロブスカイト NaRTiO<sub>4</sub> の光電子ホログラフィーからフッ素と酸素が存在するサイトについて同定できた。○

#### ③ 第二期から開始の公募班との連携

【A01 秋山との連携】二次元層状物質に修飾・導入したアルカリ金属の超秩序構造を、光電子ホログラフィー測定によって解明し、超伝導機構解明を目指す。(A03 志賀 G とも連携)

【A02 大門との連携】新しい二次元電子エネルギー分析器の開発を協力して進め、超秩序構造探索を加速する。(A03 志賀 G とも連携)

## (2) 各計画研究、及び連携している公募研究で得られた成果について計画研究を中心とした成果

### 「MgO-SiO<sub>2</sub>系ガラス・融体の構造物性研究」

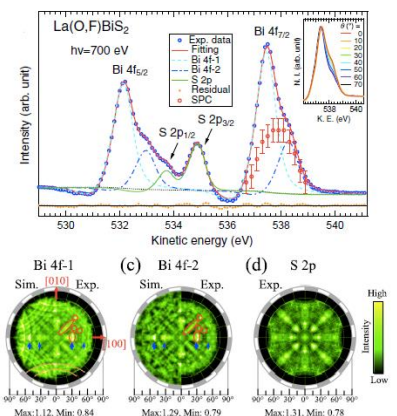
地球科学で盛んに研究されている MgO-SiO<sub>2</sub> 系酸化物は組成によってガラス化のしやすさが異なる。微小重力下での融体密度計測、X線や中性子を用いた液体構造計測及び DFT-MD シミュレーションを組み合わせ、Mg<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub> と MgSiO<sub>3</sub> について解析を進めた。Si 周りの平均架橋酸素数  $Q^n$  が低い Mg<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub> はガラス形成能が低く、 $Q^n$  が高い MgSiO<sub>3</sub> はガラス化しやすいことを確認、 $Q^n$  がガラス形成能の指標になることを見いだした。[投稿準備中] (A01 脇原 G、A02 小原 G・石川 G、A03 志賀 G)

### 「放電プラズマ焼結法で作製した SiO<sub>2</sub> ガラスの構造」

透明セラミックスを得る調製法のうち、SPS 法は従来法に比べて低温・短時間での焼結が可能である。高い熔融温度が必要となる SiO<sub>2</sub> ガラスに着目し、SPS により作製した SiO<sub>2</sub> ガラスの物理的・構造的性質と作製条件との相関を検討した。その結果、SPS-SiO<sub>2</sub> ガラスは高い密度と弾性率を示し、マイクロ Raman およびマイクロ IR スペクトルにより、金型近傍で欠陥構造が形成され、この構造が緻密化の主たる要因であると結論付けた。今後、SPS 法を用いて作製される材料の構造解析に対して、試金石となる成果である。[Sci. Rep. 12, 14761 (2022).] (A01 脇原 G、A02 小原 G・石川 G)

### 「エキゾチック超伝導体候補物質 La(O,F)BiS<sub>2</sub> の局所構造解析」

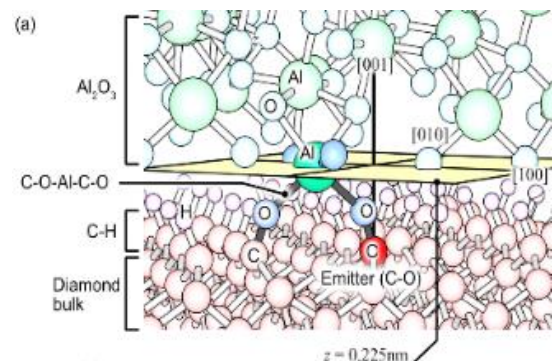
エキゾチック超伝導体候補物質である La(O,F)BiS<sub>2</sub> 層状超伝導体を対象に研究を進めた。Sn ドープにより超伝導転移温度 ( $T_c$ ) の向上した試料の測定から、Sn が Bi サイトに導入されること、Sn の価数が +2 価であることを実験的に明らかにした。Sn ドープはホールを供給し、O の F 置換で供給された電子を補償するため、キャリア密度以外の要因が  $T_c$  上昇に関わることを示す。ホログラムの詳細な比較から、表面終端および表面からの原子位置を考慮した理論ホログラムが実験をよく再現することを見出した。この結果から、複雑な構造を持つ原子層膜の構造同定に軟 X 線光電子ホログラフィーが貢献できることが示された。[J. Phys. Soc. Jpn. 91, 054602 (2022); 92, 044801 (2023).] (A02 石川 G、A03 志賀 G)



## 公募研究を中心とした成果

### 「ダイヤモンドパワーデバイス界面欠陥の原子構造解明」

実用化が期待されるダイヤモンドを半導体のパワーデバイスにおいては、絶縁膜との界面に存在する欠陥が性能を劣化させることが予想され、欠陥抑制のために欠陥起源を同定することが重要である。しかし従来の評価手法では、非破壊で絶縁膜下の界面構造の立体的な同定は不可能であった。RFA を用いた光電子ホログラフィーにより、電気的な界面欠陥の起源となる界面原子構造が C-O-Al-O-C という架橋構造であることを同定した。[Nano Lett. 23, 1189 (2023).] (藤井 G (公募)、A02 石川 G、A03 中田 G、A03 志賀 G)



### 「層状ペロブスカイト NaRTiO<sub>4</sub> (R: 希土類) のフッ素化と局所構造解析」

ペロブスカイト関連化合物に見られる配位八面体の回転は、許容因子に基づいてカチオンの置換により制御されることが多いが、アニオンの置換や挿入による制御はほとんど報告されていない。異種アニオン導入による配位八面体回転制御の可能性を検討するため、フッ素含有ポリマーを用いた低温トポケミカル反応により、層状ペロブスカイト NaRTiO<sub>4</sub> へフッ素を導入した。単結晶薄膜試料の酸素の光電子ホログラムから、バルクとは異なる結晶構造を示すことが明らかになった。また、フッ素化した薄膜試料の酸素とフッ素の光電子ホログラムから、フッ素が酸素とは異なるサイトに存在することが示唆された。[投稿準備中] (赤松 G (公募)、A03 志賀 G、A02 石川 G)

## [A03-1] 大規模・高精度な第一原理計算による超秩序構造の機能解明とデザイン (中田 G)

### (1) 領域設定期間内及び中間評価実施時までの目標、中間評価実施時までの進展状況

#### ① 研究期間内及び中間評価時点における目標

##### 【計画:課題1】大規模第一原理計算による「超秩序構造」の構造・電子状態計算

スーパーコンピュータを駆使した大規模第一原理計算により、超秩序構造物質を実験のスケールに近い状態でモデル化し、構造・電子状態を高精度に解明、予測する。

##### 【計画:課題2】「超秩序構造」がもたらす機能発現機構の解明

大規模第一原理分子動力学計算や遷移状態理論に基づく反応解析手法を開発し、「超秩序構造」がもたらす化学反応の支配要因を探る。

##### 【計画:課題3】新規機能性超秩序構造物質のデザイン

【課題1、2】の成果や機械学習との連携に基づき、「超秩序構造」と物性の相関を高精度に予測することで、新規機能性超秩序構造物質のデザインを目指す。

##### 【公募:細川】放射光を用いた機能性ゼオライトの原子配列・電子構造そしてダイナミクスの研究

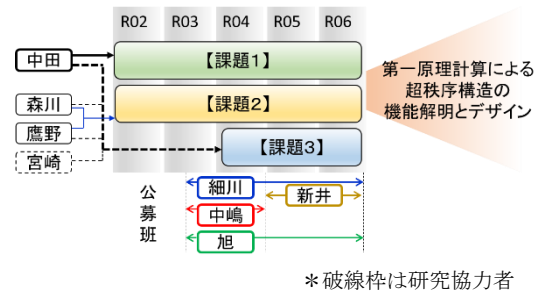
金属を含む機能性ゼオライトについて放射光を用いた計測や第一原理計算から原子配列や電子状態、ダイナミクスを解析する。(A01 脇原 G、A02 小原 G とともに連携)

##### 【公募:中嶋敦】単一の原子数と組成に秩序化された合金担持触媒の構造活性評価

単一サイズの金属ナノクラスターを有機分子基板上に担持した”ナノクラスター超原子”における超秩序構造を評価する。(A02 石川 G とともに連携)

##### 【公募:旭】局所構造記述子を用いた複合欠陥含有誘電体材料の解析と設計手法の探索

第一原理計算と機械学習により、ドーピングによる超秩序構造と巨大誘電率の発現機構を解明と新規材料の提案を行う。(A01 谷口 G、A02 小原 G とともに連携)



#### ② 研究の進展状況 (◎: 予定より進んでいる、○: 予定通り、△: 遅れている)

【計画:課題1】ゼオライトの構造と分子吸着性能との関係を第一原理計算で解析した。また、数千原子を含む大規模第一原理計算により、担持ナノ粒子の形状と超秩序構造、電子状態の関係を明らかにした。さらに、大規模計算と機械学習を用いた新しい手法を用いて、アモルファス SiO<sub>2</sub>の構造解析にも取り組んでいる。○

【計画:課題2】第一原理計算および分子動力学計算により、活性中心の酸化還元が周囲の超秩序構造に及ぼす影響、特に電子伝達に不可欠とされる構造変化の柔軟性が著しく向上することを示した。[NPG Asia Mater., 12, 85 (2020).] ◎

【計画:課題3】課題1, 課題2で得られた超秩序構造と機能との相関をもとに、第一原理計算および同等の精度を示す機械学習手法を用いながら計算データ蓄積に取り組んでいる。A03 志賀 G と連携しながら、得られたデータをもとに超秩序構造と計算結果の関連付けに取り組む。△

【公募:細川】元素選択性のある X 線異常散乱を用いて金属カチオン包含ゼオライトの原子構造を求めた。また、軟 X 線吸収・発光分光法や第一原理計算から電子状態を明らかにした。○

【公募:中嶋敦】秩序性に優れた「有機基板」に合金クラスターを担持させ解析することで、有機基板の電子状態と反応性の関係を明らかにした。○

【公募:旭】特定の Ti-O 距離で誘電率が增大することを見出し、局所構造の歪に伴う結合のソフト化が主要因の一つであることを示した。○

#### ③ 第二期から開始の公募班との連携

【A01 新井との連携】電子供与・受容体として機能する鉄硫黄クラスターを含む ISCA1 タンパク質の構造を、放射光 X 線を用いた XAFS や全散乱測定によって詳細に解析する。得られた構造をもとに、大規模第一原理計算によって電子状態を導出する。特に、磁場応答性に着目し ISCA1 が関与する磁覚の起源解明を目指す。(A02 小原 G とともに連携)



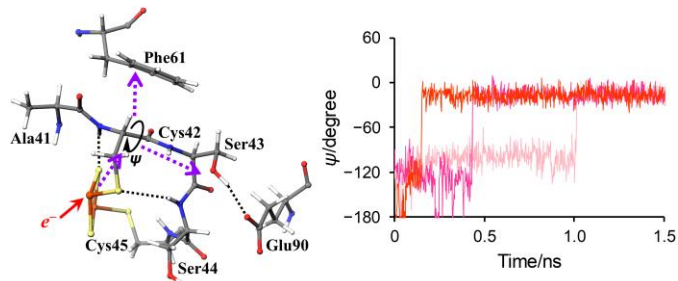
## (2) 各計画研究、及び連携している公募研究で得られた成果について計画研究を中心とした成果

### 「第一原理計算による MOR ゼオライトへの環境汚染分子の吸着機構の研究」

A01 脇原 G と連携して、環境汚染分子  $N_2O$  の吸着・回収に優位な MOR ゼオライト骨格における分子吸着機構を第一原理計算により解析した。分子種やゼオライト空隙中のカチオン種およびその位置（超秩序構造）の影響について検討した結果、 $N_2O$  では物理吸着が主であるのに対し、 $N_2O$  吸着を阻害する  $H_2O$  では MOR 骨格内の O 原子との水素結合による安定化のため吸着しやすいことを示した。A03 志賀 G とともに連携しながら様々なゼオライト骨格における吸着性能を解析し、より高い吸着性能を示すゼオライト材料の提案を試みている。[投稿準備中] (A01 脇原 G、A03 中田 G、A03 志賀 G)

### 「分子シミュレーションを用いた植物型フェレドキシンの還元による超秩序構造変化の解明」

植物型フェレドキシン (Fd) は  $[2Fe-2S]$  クラスタを活性中心とする電子伝達タンパク質であり、電子伝達機構の解明には酸化還元状態変化に伴う超秩序構造の変化を明らかにする必要がある。本研究では、A01 谷口 G が決定した植物型 Fd の高解像度結晶構造をもとに分子動力学計算を行った。その結果、活性中心の還元によってその近傍の超秩序構造の変化が起こること、活性中心と周辺残基との間の水素結合が強まり電子伝達に不可欠とされる Phe61 の柔軟性が著しく向上することを明らかにした。[*Int. J. Mol. Sci.* **23**, 15913 (2022).] (A01 谷口 G、A03 中田 G)



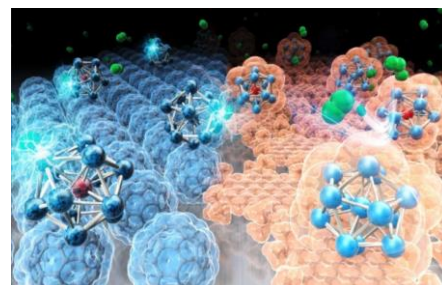
### 「第一原理電子状態計算による Nb ドープ $TiO_2$ の誘電応答の研究」

$TiO_2$  に  $Nb^{5+}$  と  $In^{3+}$  をドーピングした系では  $10^4$  以上の巨大誘電応答を生じることが報告されている。A01 谷口 G、A02 小原 G、旭 G (公募班) らと共同で、Nb を  $TiO_2$  にドーピングした際のドーパント周辺の超秩序構造が誘電的性質に与える影響の解明に取り組んでいる。誘電率には光学フォノンが寄与するが、この光学フォノンの振動数が用いる擬ポテンシャルや交換相関相互作用に大きく依存することがわかり、精度良く計算するには注意深く手法を選択する必要があることがわかった。[*ACS Omega*, accepted.] (A01 谷口 G、A02 小原 G、A03 中田 G、旭 G (公募))

## 公募研究を中心とした成果

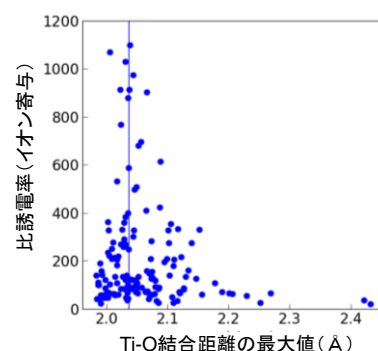
### 「単一サイズの金属ナノクラスターの有機分子基板担持および X 線分光分析による構造評価」

グラファイト基板に予めフラーレンなどの有機分子を加熱蒸着した秩序性に優れた「有機基板」に合金クラスターを担持させ、X 線光電子分光により評価したところ、クラスターサイズ、組成とともに、有機基板の電子受容性と電子供与性によって、担持状態の電荷状態が変化し、酸素気体との反応性が大きく変わることを見出した。第一原理計算による詳細な機構解明に現在取り組んでいる。[*Nat. Commn.* **13**, 1336 (2022), *J. Phys. Chem. C* **126**, 10889 (2022).] (中嶋敦 G (公募)、A03 中田 G)



### 「ドーピングによる巨大誘電率の発現機構の理論的解明」

ドーピングしたルチル型酸化物  $TiO_2$ 、 $SiO_2$ 、 $SnO_2$  の誘電率を第一原理計算によって計算した結果、安定かつ誘電率の高い Ti 系酸化物が存在することが分かった。さらに、誘電率が增大する起源を解明するために、機械学習によって予測モデルを構築し、構造と誘電率との相関を詳細に調べた。その結果、ある特定の Ti-O 結合距離で誘電率が增大することを見出し、誘電率の増大は局所構造の歪に伴う結合のソフト化が主要因の一つであると理解された。[*Sci. Rep.* **13**, 3761 (2023).] (旭 G (公募)、A01 谷口 G、A02 小原 G、A03 中田 G)



## 【A03-2】 数理情報科学に基づく超秩序構造の網羅的解析（志賀 G）

### （1）領域設定期間内及び中間評価実施時までの目標、中間評価実施時までの進展状況

#### ① 研究期間内及び中間評価時点における目標

##### 【計画:課題1】 超秩序原子像解析

蛍光 X 線・光電子ホログラフィーなどの原子分解能計測から原子配列を高精度に推定する機械学習法を開発する。中間評価までに計測値の前処理法および原子配置同定法を開発する。

##### 【計画:課題2】 多体秩序の記述子と機械学習

幾何学やネットワークトポロジー等の応用数学の基盤技術を用いて、超秩序構造を記述する手法を開発する。そして、機械学習を用いて超秩序構造と物性の関係を明らかにする。中間評価までに構造秩序の記述を重点的に取り組む。

##### 【計画:課題3】 機械学習プロセス設計

様々な材料の超秩序構造に関するデータを整備し、物質設計や合成を支援するためのインフォマティクス手法を開発する。中間評価までに超秩序構造の網羅的解析のためのアプリを開発する。

##### 【公募:江草】 電子顕微鏡直接観察に基づく Mg 合金中の溶質原子クラスター解析

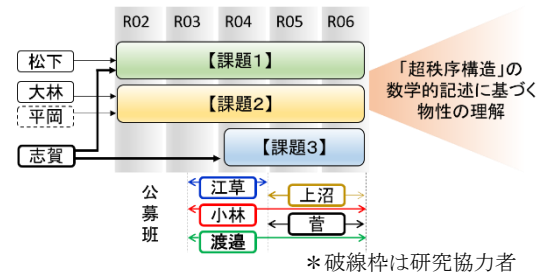
異種元素を添加した Mg 合金は 1%以下の希薄系でもクラスターの形成が示唆されている。原子分解能ホログラフィーを用いて希薄高強度 Mg 合金開発に向けた基礎的な知見を得る。(A02 小原 G とも連携)

##### 【公募:小林】 大規模量子化学計算と結晶構造 DB を用いた超秩序構造のシナジー効果・動的特性の解明

準安定結晶構造 DB を構築し、アモルファスと結晶に共通する超秩序構造の解析および比較を行う。

##### 【公募:渡邊】 機械学習原子間ポテンシャルを用いた次世代電子素子中の超秩序構造の解析

機械学習ポテンシャルによる原子ダイナミクス計算を行い、イオン拡散に関する超秩序構造を解明する。



#### ② 研究の進展状況 (◎: 予定より進んでいる、○: 予定通り、△: 遅れている)

【計画:課題1】 原子分解能ホログラフィー計測値の補正法を開発した。開発法をソフトウェア実装することで、他の計画班・公募班のデータ解析性能の向上に寄与した。遺伝的アルゴリズムによる原子配置同定法を開発した。 [*e-J. Surf. Sci. Nanotechnol.* 21, 027 (2023).]◎

【計画:課題2】 パーシステント図 (PD) とリングを組み合わせた解析によって、高密度ガラスの超秩序構造を解明した。また、リング形状や局所構造秩序の解析法を開発した。PD から高精度な物性予測を行う機械学習モデルを開発した。 [*NPG Asia Mater.* 12, 85 (2020).] ○

【計画:課題3】。A01 脇原 G の超秩序構造ライブラリーなどの多様な材料の超秩序構造解析のために GUI アプリを開発した。GUI アプリに、構造モデリングの機能を追加した後に、アプリ公開および解説記事・論文する準備を進めている。△

【公募:江草】 新たに Mg 合金の光電子ホログラフィーの測定が共同研究で提案され、A02 石川 G と共に実測して、本計画班が開発したソフトウェアで解析した。また、電子顕微鏡直接観察および蛍光 X 線ホログラフィーを用いた構造解析により、希薄系では既知とは異なる低対称クラスターの形成を確認した。○

【公募:小林】  $\text{SiO}_2$  や  $\text{TiO}_2$  の準安定結晶構造を人工力誘起反応法により網羅的に列挙し、データベース化した。A02 小原 G と共に、位相的データ解析およびリング解析することで、準安定結晶構造とアモルファスの構造秩序の対応付けをできた。○

【公募:渡邊】 機械学習ポテンシャルを用いて膨大なシミュレーションデータを生成した。金属イオン拡散のイベントが発生する場合と発生しない場合の構造秩序の差異を位相的データ解析によって解析し、金属イオン拡散に関する超秩序構造を解明した。○

#### ③ 第二期から開始の公募班との連携

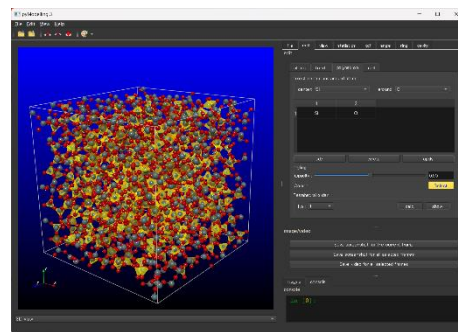
【A01 上沼との連携】 パワーデバイス中の GaN/絶縁膜から得られた光電子ホログラムから、結晶/非晶界面の超秩序構造を抽出するための像再生手法を開発する。(A02 石川 G とも連携)

【A01 菅との連携】 水素吸蔵物質  $\text{H}_x\text{SrFeO}_y$  の光電子ホログラムから水素量によって変化する価数ごとに像再生を行うためのアルゴリズムを作成する。(A02 小原 G・石川 G とも連携)

## (2) 各計画研究、及び連携している公募研究で得られた成果について計画研究を中心とした成果

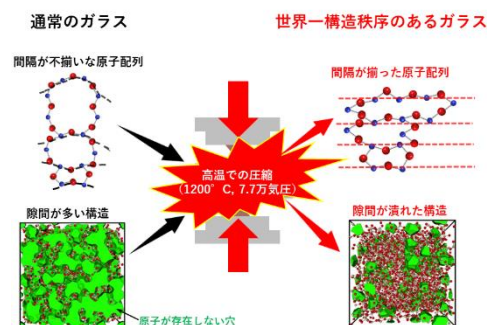
### 「構造秩序解析および構造モデリングのためのソフトウェアの開発」

A03 志賀 G で、最新の構造秩序解析法および構造モデリングを広く容易に使えるように、GUI ソフトウェア((SOVA: Structural Order Visualization and Analysis))を開発している。2022 年度までに、構造の可視化、2 体相関分布や化学結合に関する統計量、化学結合リング列挙、空隙の統計解析などの機能を実装してきた。今後は、リング形状解析などの最新の解析法の実装、構造モデリング(分子動力学計算、逆モンテカルロモデリング、機械学習ポテンシャル等)に関する機能を強化し、マルチプラットフォーム環境(Windows, Mac, Linux)で公開できるように準備を進める。また、超秩序構造ライブラリーなどのデータベースとの連携を強化する。(公開及び論文投稿準備中)(A03 志賀 G、A01 脇原 G)



### 「世界一構造秩序のあるガラスの合成と構造秩序解析」

温度と圧力を精密に制御することによって、これまで報告された中で最も間隔が揃った原子配列をもつ永久高密度シリカ( $\text{SiO}_2$ )ガラスの合成に成功した。このガラスの構造秩序は、SPring-8 等をはじめとする量子ビーム施設を横断的に利用した構造解析によって、原子の繋がったリングの形が温度と圧力で変形しつつ形成されることを発見した。その構造秩序は A03 志賀 G で取り組んでいるパーシステントホモロジー解析とリング解析を用いて多角的に解析されたことによって明らかにされたものである。その成果は、温度と圧力の精密制御による新規機能性ガラス合成への展開につながる成果である。[*NPG Asia Mater.* 12, 85 (2020)] (A01 脇原 G、A02 小原 G、A03 志賀 G)



### 「原子分解能ホログラフィーの感度分布の高速かつ高精度な推定法と実データ解析への応用」

SPring-8 BL25SU に設置された阻止電場型電子エネルギー分析器は $\pm 49^\circ$ の広角のホログラムが測定可能である。しかし、スクリーンの縁では検出感度が低いため、ホログラムの解析では計測値の補正が必要になる。この計測値補正の課題に対して、測定画像を球面に貼り付けて、球面調和関数で分解する高速かつ高精度な新しい手法を開発した。開発法をソフトウェア 3D-AIR-IMAGE に実装して共有することで、領域内の共同研究者の解析の高度化に貢献した。[*e-J. Surf. Sci. Nanotechnol.* 21, 027 (2023).] (A02 石川 G、A03 志賀 G、藤井 G (公募班)、赤松 G (公募班))

## 公募研究を中心とした成果

### 「準安定結晶構造探索とパーシステントホモロジー解析によるアモルファス構造と結晶構造の橋渡し」

人工力誘起反応法で網羅的に求められた  $\text{SiO}_2$  (網目形成酸化物) や  $\text{TiO}_2$  (網目修飾酸化物) などの準安定結晶構造に対してパーシステンス・ダイアグラム (PD) を計算し、超秩序構造の特徴をデータベース化した。さらに、エネルギーの低い方から PD を重ね描きして既報のガラス  $\text{SiO}_2$  の PD と比較し、ガラス構造の PD が結晶構造の PD の重ね合わせによって再現され、ガラスの構造秩序と安定性の関係を示す新たな発見につながった。[論文投稿準備中] (小林 G (公募)、A02 小原 G、A03 志賀 G)

### 「アモルファス酸化タンタル中の銅イオン拡散挙動の解析」

アモルファス酸化タンタル( $\alpha\text{-Ta}_2\text{O}_5$ )を用いた原子スイッチは、不揮発性メモリや脳型素子への応用が注目されているものの、動作の鍵となるアモルファス中の金属イオンの移動挙動は十分理解できてはいない。機械学習原子間ポテンシャルを用いた分子動力学計算により  $\alpha\text{-Ta}_2\text{O}_5$  中の Cu イオンの移動挙動を追跡し、構造秩序解析を行なった。拡散の発生を条件にして構造秩序の差異を解析したところ、拡散挙動と Cu 周辺の構造秩序に差を見出すことができつつある。[論文投稿準備中] (渡邊 G(公募)、A03 志賀 G)

## 7 研究発表の状況

研究項目ごとに計画研究・公募研究の順で、本研究領域により得られた研究成果の発表の状況（主な雑誌論文、学会発表、書籍、産業財産権、主催シンポジウム等の状況。令和5年6月末までに掲載等が確定しているものに限る。）について、具体的かつ簡潔に5頁以内で記述すること。なお、雑誌論文の記述に当たっては、新しいものから順に発表年次をさかのぼり、研究代表者（発表当時、以下同様。）には二重下線、研究分担者には一重下線、corresponding author には左に\*印を付すこと。

### 発表論文（全て査読有、全て謝辞入り）90篇（合計227篇）

班間の連携論文には○、プレスリリース等を行った重要論文には◎を付した。

#### ・研究項目 A01 <計画研究2班>

- ◎\*S. Hosokawa, K. Kobayashi, A. Koura, F. Shimojo, Y. Tezuka, J. Adachi, Y. Onodera, S. Kohara, H. Tajiri, A. Chokkalingam, T. Wakihara, “Atomic and electronic structures of an Ag-containing 4A zeolite”, *Microporous Mesoporous Mater.* **359**, 112662 (2023).
- M. Ikeda, H. Li, Z. Zhang, Y. Yamamoto, H. Goto, R. Eguchi, H. Ishii, Y.-F. Liao, Y. Takabayashi, K. Hayashi, and \*Y. Kubozono, “Pressure dependence of superconductivity in alkaline earth metal-doped FeSe: toward completion of the phase diagram of superconducting transition temperature versus FeSe layer distance”, *Chem. Mater.* **35**, 4338–4346 (2023).
- \*J. Harada, H. Takahashi, R. Notsuka, M. Takehisa, Y. Takahashi, T. Usui, and H. Taniguchi, “Ferroelectric ionic molecular crystals with significant plasticity and a low melting point: high performance in hot-pressed polycrystalline plates and melt-grown crystalline Sheets”, *Angew. Chem. Int. Ed.* **62**, e202215286 (2023).
- S. Kakimoto, Y. Hashimoto, T. Kuwano, K. Kimura, K. Hayashi, M. Hagiwara, K. Deguchi, and \*H. Taniguchi, “Controlling dielectric properties of Nb + X (X = Al, Ga, In) co-doped and Nb-doped rutile-type TiO<sub>2</sub> single crystals”, *J. Mater. Chem. C* **11**, 1304–1310 (2023).
- M. Ikeda, A. Suzuki, Y. Zhang, H. Goto, R. Eguchi, Y.-F. Liao, H. Ishii, and \*Y. Kubozono, “Superconducting behavior of BaTi<sub>2</sub>(Sb<sub>1-x</sub>Bi<sub>x</sub>)<sub>2</sub>O under pressure”, *Inorg. Chem.* **61**, 20538–20546 (2022).
- T. Uchiyama, H. Goto, E. Uesugi, A. Takai, L. Zhi, A. Miura, S. Hamao, R. Eguchi, H. Ota, K. Sugimoto, A. Fujiwara, F. Matsui, K. Kimura, K. Hayashi, T. Ueno, K. Kobayashi, J. Akimitsu, and \*Y. Kubozono, “Semiconductor-metal transition in Bi<sub>2</sub>Se<sub>3</sub> caused by impurity doping”, *Sci. Rep.* **13**, 537 (2023).
- Y. Zhang, R. Eguchi, H. Okamoto, K. Goto, F. Tani, M. Yamaji, H. Goto, and \*Y. Kubozono, “Fabrication and characterization of thin-film field-effect transistors with alkyl-phenyl[n] phenacenes (n = 4–6)”, *J. Mater. Chem. C* **10**, 16309–16320 (2022).
- T. Tezuka, K. Kuribara, S. Kodama, H. Takeda, and \*I. Yanase, “Synthesis and ionic conductivity of NASICON-type Li<sub>1.4</sub>Al<sub>0.4</sub>Ti<sub>1.6</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>3</sub> fine powder by a novel multi-step glass crystallization method”, *J. Non-Cryst. Solids* **590**, 121675 (2022).
- A. Suzuki, M. Ikeda, H. Ishii, Y.-F. Liao, Y. Takabayashi, K. Hayashi, H. Goto, R. Eguchi, and \*Y. Kubozono, “Superconducting properties of Pd<sub>1-x</sub>Pt<sub>x</sub>Bi<sub>2</sub> over a wide pressure range”, *J. Phys. Chem. C* **126**, 9948–9955 (2022).
- J.J. Wiesfeld, M. Asakawa, T. Aoshima, A. Fukuoka, E.J.M. Hensen, and \*K. Nakajima, “A catalytic strategy for selective production of 5-formylfuran-2-carboxylic acid and furan-2,5-dicarboxylic acid”, *ChemCatChem*, **14**, e202200191 (2022).
- F.J.A.G. Coumans, Z. Overchenko, J.J. Wiesfeld, N. Kosinov, K. Nakajima, and \*E.J.M. Hensen, “Protection strategies for the conversion of biobased furanics to chemical building blocks”, *ACS Sustain. Chem. Eng.* **10**, 3116–3130 (2022).
- S. Aoyagi, A. Aoyagi, H. Takeda, H. Osawa, K. Sumitani, Y. Imai, and \*S. Kimura, “Position and electric field dependent local lattice strain detected by nanobeam x-ray diffraction on a relaxor ferroelectric single crystal”, *Phys. Rev. B* **105**, 24101 (2022).
- \*H. Taniguchi, T. Hattori, T. Isobe, A. Nakano, I. Terasaki, and M. Hagiwara, “A large piezoelectric voltage coefficient in aluminate-sodalite-type improper ferroelectric oxides”, *J. Mater. Chem. C*, **9**, 15649–15653 (2021).
- S. Yamaguchi, S. Fujita, K. Nakajima, S. Yamazoe, J. Yamazaki, T. Mizugaki, and \*T. Mitsudome, “Support-boosted nickel phosphide nanoalloy catalysis in the selective hydrogenation of maltose to maltitol”, *ACS Sustain. Chem. Eng.* **9**, 6347–6354 (2021).
- S. Yamaguchi, S. Fujita, K. Nakajima, S. Yamazoe, J. Yamasaki, T. Mizugaki, and \*T. Mitsudome, “Air-stable and reusable nickel phosphide nanoparticle catalyst for the highly selective hydrogenation of d-glucose to d-sorbitol”, *Green Chem.* **23**, 2010–2016 (2021).
- T. Taguchi, Y. Wang, X. Yang, H. Li, Y. Takabayashi, K. Hayashi, T. Miyazaki, Y.-F. Liao, H. Ishii, H. Goto, R. Eguchi, and \*Y. Kubozono, “Emergence of a pressure-driven superconducting phase in Ba<sub>0.77</sub>Na<sub>0.23</sub>Ti<sub>2</sub>Sb<sub>2</sub>O”, *Inorg. Chem.* **60**, 3585–3592 (2021).
- A. Minami, P. Hu, Y. Sada, H. Yamada, K. Ohara, Y. Yonezawa, Y. Sasaki, Y. Yanaba, M. Takemoto, Y. Yoshida, T. Okubo, and \*T. Wakihara, “Tracking sub-nano-scale structural evolution in zeolite synthesis by in situ high-energy X-ray total scattering measurement with pair distribution function analysis”, *J. Am. Chem. Soc.* **144**, 23313–23320 (2022).
- \*N. Kitamura, Y. Konishi, W. Ma, N. Ishida, T. Mandai, C. Ishibashi, and Y. Idemoto, “Positive-electrode properties and crystal structures of Mg-rich transition metal oxides for magnesium rechargeable batteries”, *Sci. Rep.* **12**, 18097 (2022).
- K. A. Kirchner, D. R. Cassar, E. D. Zanutto, M. Ono, S. H. Kim, K. Doss, M. L. Bødker, M. M. Smedskjaer, S. Kohara, L. Tang, M. Bauchy, C. J. Wilkinson, Y. Yang, R. S. Welch, M. Mancini, and \*J. C. Mauro, “Beyond the average: spatial and temporal fluctuations in oxide glass-forming systems”, *Chem. Rev.* **123**, 1774–1840 (2022).
- \*N. Kitamura, K. Kimura, N. Ishida, C. Ishibashi, and Y. Idemoto, “Effects of Ca substitution on the local structure and oxide-ion behavior of layered perovskite lanthanum nickelate”, *Front. Mater.* **9**, 954729 (2022).
- S. Sasaki and \*A. Masuno, “Composition dependence of the local structure and transparency of Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>–B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> binary glasses prepared via aerodynamic levitation”, *J. Ceram. Soc. Jpn.* **130**, 60–64 (2022).

22. Y. Sada, S. Miyagi, K. Iyoki, M. Yoshioka, T. Ishikawa, Y. Naraki, T. Sano, T. Okubo, and \*T. Wakihara, “Biased Al distribution of high-silica FAU-type zeolite synthesized by fast manner at high temperature”, *Microporous Mesoporous Mater.* **344**, 112196 (2022).
23. A. Minami, M. Takemoto, Y. Yonezawa, Z. Liu, Y. Yanaba, A. Chokkalingam, K. Iyoki, T. Sano, T. Okubo, and \*T. Wakihara, “Ultrafast dealumination of \*BEA zeolite using a continuous-flow reactor”, *Adv. Powder Technol.* **33**, 103702 (2022).
24. T. Yoshioka, K. Iyoki, Y. Hotta, Y. Kamimura, H. Yamada, Q. Han, T. Kato, C. A. J. Fisher, Z. Liu, R. Ohnishi, Y. Yanaba, K. Ohara, Y. Sasaki, A. Endo, T. Takewaki, T. Sano, T. Okubo, and \*T. Wakihara, “Dealumination of small-pore zeolites through pore-opening migration”, *Sci. Adv.* **8**, eabo3093 (2022).
25. P. Hu, K. Iyoki, H. Fujinuma, J. Yu, S. Yu, C. Anand, Y. Yanaba, T. Okubo, and \*T. Wakihara, “Broadening synthetic scope of SSZ-39 zeolite for NH<sub>3</sub>-SCR: A fast and direct route from amorphous starting materials”, *Microporous Mesoporous Mater.* **330**, 111583 (2022).
26. R. Sato, Z. Liu, C. Peng, C. Tan, P. Hu, J. Zhu, M. Takemura, Y. Yonezawa, H. Yamada, A. Endo, J. García-Martínez, T. Okubo, and \*T. Wakihara, “Engineering mesopore formation in hierarchical zeolites under high hydrostatic pressure”, *Chem. Mater.* **33**, 8440–8446 (2021).
27. C.-T. Chen, K. Iyoki, P. Hu, H. Yamada, K. Ohara, S. Sukenaga, M. Ando, H. Shibata, T. Okubo, and \*T. Wakihara, “Reaction Kinetics-regulated formation of short-range order in an amorphous matrix during zeolite crystallization”, *J. Am. Chem. Soc.* **143**, 10986–10997 (2021).
28. J. Chung, H. Inoue, K. Yoshimoto, A. Masuno, and \*Y. Watanabe, “Optical properties of novel oxyfluoride glasses on the systems of LaF<sub>3</sub>–LaO<sub>3/2</sub>–NbO<sub>5/2</sub> and LaF<sub>3</sub>–LaO<sub>3/2</sub>–NbO<sub>5/2</sub>–AlO<sub>3/2</sub>”, *J. Am. Ceram. Soc.* **104**, 3963–3972 (2021).

・ 研究項目 A02 <計画研究 2 班>

29. R. Toyoda, K. Usui, T. Hirota, \*K. Kimura, Y. Onodera, M. R. Cicconi, R. Belli, M. Brehl, J. Lubauer, U. Lohbauer, H. Tajiri, K. Ikeda, T. Hayakawa, D. de Ligny, S. Kohara, K. Hayashi, “Atomic structure of ZrO<sub>2</sub>-doped Li<sub>2</sub>O–SiO<sub>2</sub>-based multi-component glasses revealed by molecular dynamics–reverse Monte Carlo modeling”, *J. Non-Cryst. Solids*, in press.
30. \*A. Nagaoka, K. Kimura, A. K. R. Ang, Y. Takabayashi, K. Yoshino, Q. Sun, B. Dou, S.-H. Wei, K. Hayashi, and K. Nishioka, “Direct observation of group-V dopant substitutional defect in CdTe single crystals”, *J. Am. Chem. Soc.* **145**, 9191–9197 (2023).
31. \*T. Kato, K. Kimura, S. Hosokawa, S. Ando, S. Kashima, Y. Hashimoto, N. Happo, T. Matsushita, H. Ishii, K. Hayashi, “Local structure analysis around Y in Mg<sub>99.7</sub>Y<sub>0.3</sub> single crystal using X-ray fluorescence holography”, *J. Electron Spectros. Relat. Phenom.* **262**, 147279 (2023).
32. G. Tomassucci, L. Tortora, G. M. Pugliese, F. Stramaglia, L. Simonelli, C. Marini, K. Terashima, T. Wakita, S. Ayukawa, T. Yokoya, K. Kudo, M. Nohara, T. Mizokawa, and \*N. L. Saini, “Temperature dependent local inhomogeneity and magnetic moments of (Li<sub>1-x</sub>Fe<sub>x</sub>)OHFeSe superconductors”, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **25**, 6684–6692 (2023).
33. Y.J. Li, Z.X. Sun, N. Kataoka, T. Setoguchi, Y. Hashimoto, S. Takeuchi, S. Koga, S. Demura, K. Noguchi, H. Sakata, Y. Mizuguchi, T. Matsushita, T. Wakita, Y. Muraoka, and \*T. Yokoya, “Photoelectron holography study of La(O, F)BiS<sub>2</sub>”, *J. Phys. Soc. Jpn.* **92**, 44801 (2023).
34. \*H. Hashimoto, Y. Onodera, S. Tahara, \*S. Kohara, K. Yazawa, H. Segawa, M. Murakami, and K. Ohara, “Structure of alumina glass”, *Sci. Rep.* **12**, 516 (2022).
35. Y. Yamamoto, K. Kawamura, H. Sugimoto, A. Gadelmawla, \*K. Kimura, N. Happo, H. Tajiri, K.G. Webber, K. Kakimoto, and K. Hayashi, “Significant displacement of calcium and barium ions in ferroelectric (Ba<sub>0.9</sub>Ca<sub>0.1</sub>)TiO<sub>3</sub> revealed by x-ray fluorescence holography”, *Appl. Phys. Lett.* **120**, 52905 (2022).
36. Y. Shuseki, \*S. Kohara, K. Ohara, T. Ohkubo, K. Takei, M.W. Tucker, A.I. Kolesnikov, M.T. Macdonnell, R.L. Sacci, J.C. Neufeind, and \*K. Takeuchi, “Structural analyses of amorphous calcium carbonate before and after removing strontium ions from an aqueous solution”, *J. Ceram. Soc. Jpn.* **130**, 225–231 (2022).
37. K. Ono, K. Kimura, T. Kato, K. Hayashi, R.M.G. Rajapakse, and \*M. Shimomura, “Epitaxial growth of a homogeneous anatase TiO<sub>2</sub> thin film on LaAlO<sub>3</sub> (0 0 1) using a solvothermal method with anticorrosive ligands”, *Chem. Eng. J.* **451**, 138893 (2023).
38. T. Aoyagi, \*Y. Onodera, S. Kohara, T. Naito, T. Ina, D. Takamatsu, T. Onodera, T. Miyake, S. Tachizono, and K. Yoshimura, “Effect of adding Ag<sub>2</sub>O to vanadium-containing low-melting glass for low-temperature sealing”, *J. Ceram. Soc. Jpn.* **130**, 504–508 (2022).
39. \*Y. Onodera, “Topological analyses of structure of glassy materials toward extraction of order hidden in disordered structure”, *J. Ceram. Soc. Jpn.* **130**, 627 (2022).
40. \*K. Kimoto, M. Shiga, S. Kohara, J. Kikkawa, O. Cretu, Y. Onodera, and K. Ishizuka, “Local structure analysis of disordered materials via contrast variation in scanning transmission electron microscopy”, *AIP Adv.* **12**, 95219 (2022).
41. \*S. Kohara, “Probing order within disorder in oxide glasses and liquids by quantum beam diffraction”, *J. Ceram. Soc. Jpn.* **130**, 531 (2022).
42. \*H. Kizaki, \*K. Hayashi, C. Lu, N. Happo, S. Hosokawa, S. Hidaka, S. Hayashi, M. Suzuki, and N. Uchitomi, “Anomalous atomic fluctuations in the local structure around Mn of (Zn,Sn,Mn)As<sub>2</sub> thin films”, *Phys. Rev. B.* **106**, 64434 (2022).
43. M. Fukumoto, \*Y. Hirose, B. A. D. Williamson, S. Nakao, K. Kimura, K. Hayashi, Y. Sugisawa, D. Sekiba, D.O. Scanlon, and T. Hasegawa, “Ligand field-induced exotic dopant for infrared transparent electrode: W in rutile SnO<sub>2</sub>”, *Adv. Funct. Mater.* **32**, 2110832 (2022).
44. \*A. S.-Tomita, A. K. R. Ang, K. Kimura, R. Marumi, N. Happo, T. Matsushita, S.-Y. Park, N. Shibayama, Y. C. Sasaki, and \*K. Hayashi, “X-ray fluorescence holography of biological metal sites: Application to myoglobin”, *Biochem. Biophys. Res. Commun.* **635**, 277–282 (2022).
45. \*K. Kimura, \*D. Urushihara, R. Kondo, Y. Yamamoto, A. K. R. Ang, T. Asaka, N. Happo, T. Hagihara, T. Matsushita, H. Tajiri, H. Miyazaki, K. Ohara, M. Iwata, and K. Hayashi, “Element-selective local structural analysis around B-site cations in multiferroic Pb(Fe<sub>1/2</sub>Nb<sub>1/2</sub>)O<sub>3</sub> using X-ray fluorescence holography”, *Phys. Rev. B* **104**, 144101 (2021).
46. \*M.R. Cicconi, R. Belli, M. Brehl, J. Lubauer, T. Hayakawa, K. Kimura, T. Hirota, K. Usui, S. Kohara, Y. Onodera, U. Lohbauer, K. Hayashi, and D. de Ligny, “Nucleation mechanisms in a SiO<sub>2</sub>-Li<sub>2</sub>O-P<sub>2</sub>O<sub>5</sub>-ZrO<sub>2</sub> biomedical glass-

- ceramic: Insights on crystallisation, residual glasses and Zr<sup>4+</sup> structural environment”, *J. Euro. Ceram. Soc.* **42**, 1762–1775 (2022).
47. S. Takeuchi, Y. Hashimoto, H. Daimon, and \*T. Matsushita, “High-precision atomic image reconstruction from photoelectron hologram of O on W(110) by SPEA-L1”, *J. Electron Spectros. Relat. Phenom.*, **256**, 147177 (2022).
  48. \*H. Masai, “Optically active glass with a multifaceted approach”, *J. Non-Cryst. Solids -X* **15**, 100105 (2022).
  49. \*H. Masai, H. Kimura, N. Kitamura, Y. Ikemoto, S. Kohara, A. Masuno, Y. Fujii, T. Miyazaki, and T. Yanagida, “Densification in transparent SiO<sub>2</sub> glasses prepared by spark plasma sintering”, *Sci. Rep.* **12**, 14761 (2022).
  50. \*T. Ishikawa, C. Koyama, H. Oda, R. Shimonishi, T. Ito, and P.-F. Paradis, “Densities of liquid Tm<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Yb<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, and Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> measured by an electrostatic levitation furnace onboard the International Space Station”, *Metals* **12**, 1126 (2022).
  51. Y.J. Li, Z. X. Sun, N. Kataoka, T. Setoguchi, Y. Hashimoto, S. Takeuchi, S. Koga, T. Muro, S. Demura, K. Noguchi, H. Sakata, T. Matsushita, I. Kawasaki, S. Fujimori, T. Wakita, Y. Muraoka, and \*T. Yokoya, “Incorporation site and valence state of Sn atoms in Sn-substituted La(O, F)BiS<sub>2</sub> superconductor”, *J. Phys. Soc. Jpn.* **91**, 54602 (2022).
  52. \*T. Ishikawa, C. Koyama, H. Oda, H. Saruwatari, and P.-F. Paradis, “Status of the electrostatic levitation furnace in the ISS - Surface tension and viscosity measurements”, *Int. J. Microgravity Sci. Appl.* **39**, 390101 (2022).
  53. \*C. Koyama, T. Ishikawa, H. Oda, H. Saruwatari, S. Ueno, M. Oshio, Y. Watanabe, and Y. Nakata, “Densities of liquid lanthanoid sesquioxides measured with the electrostatic levitation furnace in the ISS”, *J. Am. Ceram. Soc.* **104**, 2913–2918 (2021).
  54. \*A. K. R. Ang, R. Marumi, A. Sato-Tomita, K. Kimura, N. Happo, K. Akagi, T. Sasaki, and K. Hayashi, “Elucidation of local structure deformation in κ-(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu[N(CN)<sub>2</sub>]Br by x-ray fluorescence holography”, *Phys. Rev. B* **103**, 214106 (2021).
  55. \*S. Kohara, M. Shiga, Y. Onodera, H. Masai, A. Hirata, M. Murakami, T. Morishita, K. Kimura, and K. Hayashi, “Relationship between diffraction peak, network topology, and amorphous-forming ability in silicon and silica”, *Sci. Rep.* **11**, 22180 (2021).
- ・研究項目 A03 <計画研究 2 班>
56. \*P. S. Salmon, A. Zeidler, M. Shiga, Y. Onodera, and S. Kohara, “Ring compaction as a mechanism of densification in amorphous silica”, *Phys. Rev. B* **107**, 144203 (2023).
  57. \*T. Matsushita, Y. Hashimoto, H. Tomita, Z. Sun, S. Kawamura, M. N. Fujii, and J. Mizuno, “An algorithm to correct the sensitivity distribution of a retarding field analyzer for photoelectron holography”, *e-J. Surf. Sci. Nanotechnol.* 2023–027, (2023)
  58. \*K. Hayashi, S. Kawamura, Y. Hashimoto, N. Akao, Z. Huang, W. Saito, K. Tasaki, K. Hayashi, T. Matsushita, Y. Miyazaki, “Effects of oxygen on lattice defects in single-crystalline Mg<sub>2</sub>Si thermoelectrics”, *Nanomaterials*, **13**, 1222 (2023)
  59. \*H. X. Kondo, H. Iizuka, G. Masumoto, Y. Kabaya, Y. Kanematsu, and \*Y. Takano, “Prediction of protein function from tertiary structure of the active site in heme proteins by convolutional neural network”, *Biomolecules*, **13**, 137 (2023).
  60. \*A. K. R. Ang, Y. Umena, A. Sato-Tomita, N. Shibayama, N. Happo, R. Marumi, Y. Yamamoto, K. Kimura, N. Kawamura, Y. Takano, T. Matsushita, Y. C. Sasaki, J.-R. Shen, and K. Hayashi, “Development of serial X-ray fluorescence holography for radiation-sensitive protein crystals”, *J. Synchrotron Rad.* **30**, 368–378 (2023).
  61. \*Y. Takano, H. X. Kondo, and H. Nakamura, “Quantum chemical studies on hydrogen bonds in helical secondary structures”, *Biophys. Rev.* **14**, 1369–1378 (2022).
  62. \*T. Nakayoshi, Y. Ohnishi, H. Tanaka, G. Kurisu, H. X. Kondo, and \*Y. Takano, “Effects of active-center reduction of plant-type ferredoxin on its structure and dynamics: computational analysis using molecular dynamics simulations”, *Int. J. Mol. Sci.* **23**, 15913 (2022).
  63. H. Ishikawa, S. Yamaguchi, A. Nakata, K. Nakajima, S. Yamazoe, J. Yamasaki, T. Mizugaki, and \*T. Mitsudome, “Phosphorus-alloying as a powerful method for designing highly active and durable metal nanoparticle catalysts for the deoxygenation of sulfoxides: ligand and ensemble effects of phosphorus”, *JACS Au*, **2**, 419–427 (2022).
  64. \*Y. Kanematsu, A. Narita, T. Oda, R. Koike, M. Ota, Y. Takano, K. Moritsugu, I. Fujiwara, K. Tanaka, H. Komatsu, T. Nagae, N. Watanabe, M. Iwasa, \*Y. Maéda, and \*S. Takeda, “Structures and mechanisms of actin ATP hydrolysis”, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **119**, e2122641119 (2022).
  65. T. Nakayoshi, K. Kato, E. Kurimoto, Y. Takano, and A. Oda, “Predicting reaction mechanisms for the threonine-residue stereoinversion catalyzed by a dihydrogen phosphate ion”, *ACS Omega*, **7**, 18306–18314 (2022).
  66. K. Takeyasu, Y. Sawaki, T. Imabayashi, S.E.M. Putra, H.H. Halim, J. Quan, Y. Hamamoto, I. Hamada, Y. Morikawa, T. Kondo, T. Fujitani, and \*J. Nakamura, “Hydrogenation of formate species using atomic hydrogen on a Cu(111) model catalyst”, *J. Am. Chem. Soc.* **144**, 12158–12166 (2022).
  67. T. N. Pham, Y. Hamamoto, K. Inagaki, I. Hamada, and \*Y. Morikawa, “Density functional theory study of NO-H<sub>2</sub>O co-adsorption on Cu(111)”, *Phys. Rev. Mater.* **6**, 75801 (2022).
  68. H. H. Halim and \*Y. Morikawa, “Elucidation of Cu-Zn Surface Alloying on Cu(997) by Machine-Learning Molecular Dynamics”, *ACS Phys. Chem. Au*, **2**, 430–447 (2022).
  69. S. Takeuchi, Y. Hashimoto, H. Daimon, and \*T. Matsushita, “High-precision atomic image reconstruction from photoelectron hologram of O on W(110) by SPEA-L1”, *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **256**, 147177 (2022).
  70. \*I. Obayashi, T. Nakamura, and Y. Hiraoka, “Persistent homology analysis for materials research and persistent homology software: HomCloud”, *J. Phys. Soc. Jpn.* **91**, 091013 (2022).
  71. \*E. Minamitani, T. Shiga, M. Kashiwagi, and I. Obayashi, “Topological descriptor of thermal conductivity in amorphous Si”, *J. Chem. Phys.* **156**, 244502 (2022).
  72. Y. Li, Z. Sun, N. Kataoka, T. Setoguchi, Y. Hashimoto, S. Takeuchi, S. Koga, T. Muro, S. Demura, K. Noguchi, H. Sakata, T. Matsushita, I. Kawasaki, S. Fujimori, T. Wakita, Y. Muraoka, and \*T. Yokoya, “Incorporation site and valence state of Sn atoms in Sn-substituted La(O,F)BiS<sub>2</sub> superconductor”, *J. Phys. Soc. Jpn.* **91**, 054602 (2022).
  73. \*S. Hosokawa, N. Happo, K. Hayashi, T. Matsushita, and A. Yamashita, “Three-dimensional atomic image of FeSe high-temperature superconductor by x-ray fluorescence holography”, *e-J. Surf. Sci. Nanotechnol.* **20**, 36–41 (2022).

74. \*E. Minamitani, T. Shiga, M. Kashiwagi, and I. Obayashi, “Relationship between local coordinates and thermal conductivity in amorphous carbon”, *J. Vac. Sci. Technol. A* **40**, 033408 (2022).
75. J. Hyodo, K. Tsujikawa, M. Shiga, Y. Okuyama, and \*Y. Yamanishi, “Accelerated discovery of proton-conducting perovskite oxide by capturing physicochemical fundamentals of hydration”, *ACS Energy Lett.* **6**, 2985–2992 (2021).
76. \*A. Suzuki, M. Miyazawa, J. M. Minto, T. Tsuji, I. Obayashi, Y. Hiraoka, and T. Ito, “Flow estimation solely from image data through persistent homology analysis”, *Sci. Rep.* **11**, 17948 (2021).
77. M. Sheng, S. Yamaguchi, A. Nakata, S. Yamazoe, K. Nakajima, J. Yamasaki, T. Mizugaki, and \*T. Mitsudome, “Hydrotalcite-supported cobalt phosphide nanorods as a highly active and reusable heterogeneous catalyst for ammonia-free selective hydrogenation of nitriles to primary amines”, *ACS Sustainable Chem. Eng.* **9**, 11238–11246 (2021).
78. T. Nomura, T. Kimura, Y. Kanematsu, D. Yamada, K. Yamashita, K. Hirata, G. Ueno, H. Murakami, T. Hisano, R. Yamagiwa, H. Takeda, C. Gopalasingam, R. Kousaka, S. Yanagisawa, O. Shoji, T. Kumasaka, M. Yamamoto, Y. Takano, H. Sugimoto, \*T. Toshi, \*M. Kubo, and \*Y. Shiro, “Short-lived intermediate in N<sub>2</sub>O generation by P450 NO reductase captured by time-resolved IR spectroscopy and XFEL crystallography”, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.*, **118**, e2101481118 (2021).
79. Y. Onodera, \*S. Kohara, \*P.S. Salmon, A. Hirata, N. Nishiyama, S. Kitani, A. Zeidler, M. Shiga, A. Masuno, H. Inoue, S. Tahara, A. Polidori, H.E. Fischer, T. Mori, S. Kojima, H. Kawaji, A.I. Kolesnikov, M.B. Stone, M.G. Tucker, M.T. McDonnell, A. C. Hannon, Y. Hiraoka, I. Obayashi, T. Nakamura, J. Akola, Y. Fujii, K. Ohara, T. Taniguchi, and O. Sakata, “Structure and properties of densified silica glass: Characterizing the order within disorder”, *NPG Asia Mater.* **12**, 85 (2020).

・ < 公募研究 >

80. R. Horie, T. Matsushita, S. Kawamura, T. Hase, K. Horigane, H. Momono, S. Takeuchi, M. Tanaka, H. Tomita, Y. Hashimoto, K. Kobayashi, Y. Haruyama, \*H. Daimon, “Origin of unexpected Ir<sup>3+</sup> in a superconducting candidate Sr<sub>2</sub>IrO<sub>4</sub> system analyzed by photoelectron holography”, *Inorg. Chem.* in press.
81. \*M. N. Fujii, M. Tanaka, T. Tsuno, Y. Hashimoto, H. Tomita, S. Takeuchi, S. Koga, Z. Sun, J.I. Enriquez, Y. Morikawa, J. Mizuno, M. Uenuma, Y. Uraoka, and T. Matsushita, “Atomic imaging of interface defects in an insulating film on diamond”, *Nano Lett.* **23**, 1189–1194 (2023).
82. \*M. Kitaura, S. Watanabe, H. Masai, T. Ina, H. Setoyama, M. Ishizaki, T. Nakanishi, Y. Matsushima, T. Kunimoto, A. Ohnishi, “Valence and local structure analyses of Eu and Dy ions in Sr<sub>2</sub>MgSi<sub>2</sub>O<sub>7</sub>:Eu, Dy long persistent phosphorescence phosphors synthesized by solid state reaction”, *Chem. Lett.* **52**, 190–193 (2023).
83. \*K. Kimura, D. Egusa, K. Hagihara, N. Happo, N. Kawamura, H. Tajiri, K. Hayashi, and E. Abe, “Local structural analysis around solute-element in annealed Mg<sub>99.2</sub>Zn<sub>0.2</sub>Y<sub>0.6</sub> alloy using x-ray fluorescence holography”, *Mater. Trans.* **64**, 750–755 (2023).
84. \*K. Hayashi, M. Lederer, Y. Fukumoto, M. Goto, Y. Yamamoto, N. Happo, M. Harada, Y. Inamura, K. Oikawa, K. Ohoyama, and P. Wellmann, “Determination of site occupancy of boron in 6H-SiC by multiple-wavelength neutron holography”, *Appl. Phys. Lett.* **120**, 132101 (2022).
85. \*M. Uenuma, S. Kuwaharada, H. Tomita, M. Tanaka, Z. Sun, Y. Hashimoto, M.N. Fujii, T. Matsushita, Y. Uraoka, “Atomic structure analysis of gallium oxide at the Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/GaN interface using photoelectron holography”, *Appl. Phys. Exp.* **15**, 085501 (2022).
86. S. Hosokawa, J.-F. Béar, N. Boudet, W.-C. Pilgrim, L. Pusztai, S. Hiroi, S. Kohara, H. Kato, H. E. Fischer, and A. Zeidler, “Relationship between atomic structure and excellent glass forming ability in Pd<sub>42.5</sub>Ni<sub>17.5</sub>Cu<sub>30</sub>P<sub>20</sub> metallic glass”, *J. Non-Cryst. Solids* **596**, 121868 (2022).
87. \*M. Kitaura, A. K. R. Ang, Y. Yamamoto, N. Happo, K. Kimura, K. Hayashi, S. Watanabe, Y. Yokota, Y. Ohashi, K. Kamada, A. Yoshikawa, H. Yamane, and A. Ohnishi, “Atomic positions and displacements in piezoelectric materials Ca<sub>3</sub>TaGa<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>14</sub> and Ca<sub>3</sub>TaGa<sub>1.5</sub>Al<sub>1.5</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>14</sub> investigated by Ta-La x-ray fluorescence holography”, *Front. Mater.* **9**, 977371 (2022).
88. M. Shibuta, T. Inoue, T. Kamoshida, T. Eguchi, \*A. Nakajima, “Al<sub>13</sub><sup>-</sup> and B@Al<sub>12</sub><sup>-</sup> superatoms on a molecularly decorated substrate”, *Nat. Commun.* **13**, 133 (2022).
89. K. Hayashi, N. Happo, and \*S. Hosokawa, “A cryostat designed for x-ray fluorescence holography experiments down to 4 K”, *Rev. Sci. Instrum.* **92**, 83703 (2021).
90. N. Ishimatsu, S. Iwasaki, M. Kousa, S. Kato, N. Nakajima, N. Kitamura, N. Kawamura, M. Mizumaki, S. Kakizawa, R. Nomura, T. Irifune, and \*H. Sumiya, “Elongation of Fe-Fe atomic pairs in the Invar alloy Fe<sub>65</sub>Ni<sub>35</sub>”, *Phys. Rev. B* **103**, L220102-1-5 (2021).

総説・解説4編（合計44篇）

1. 武田博明, “高温圧電センサ用酸化物単結晶材料の開発”, *希土類* **81**, 3 (2022).
2. 北村尚斗, “全散乱データを用いた逆モンテカルロ法による正極ナノ粒子の原子配列解析”, *Ceramics Japan* **56**, 359 (2021).
3. K. Ohara, Y. Onodera, M. Murakami, S. Kohara, “Structure of disordered materials under ambient to extreme conditions revealed by synchrotron x-ray diffraction techniques at SPring-8—recent instrumentation and synergic collaboration with modelling and topological analyses”, *J. Phys. Condens. Matter* **33**, 383001 (2021).
4. K. Hayashi and T. Matsushita, “Recent achievements using X-ray fluorescence holography and photoelectron holography”, SPring-8/SACLA Research Frontier 2020, 12 (2021).

書籍3編（合計6篇）

1. D. Padovan, E.J. M. Hensen, and K. Nakajima, “Crystalline Metal Oxide Catalysts (1st edition), Chapter 11, Metal Oxide Catalysts for the Valorization of Biomass-Derived Sugars”, Springer (2022).
2. S. Aoyagi and H. Takeda, “Piezoelectric Materials - New Opportunities for Energy Harvesting Devices, Transient Crystal Structure of Oscillating Quartz”, IntechOpen (2022).
3. S. Kohara and L. Pusztai, Atomistic Simulations of Glasses: Fundamentals and Applications, ed. by J. Du and A. N. Cormack, Wiley-American Ceramic Society (2022) 60–88.

## 国際会議講演（招待講演のみ） 20件（合計77件）

### ・研究項目 A01 <計画研究2班>

1. “Superconducting properties of some topical two-dimensional layered materials under pressure”, Y. Kubozono, Online seminar at Superconducting Materials Research Center, Norwest Institute for Non-Ferrous Metal Research, オンライン, 2022年6月8日
2. “An acetal protection strategy for chemocatalytic valorization of biomass-derived furanics to building blocks for functional polyesters”, K. Nakajima, International Congress on Pure & Applied Chemistry, Kota Kinabalu, 2022年11月23日
3. “Melilite-type silicate single crystals for high temperature piezoelectric application”, H. Takeda, 2022 US-Japan Seminar on Dielectric and Piezoelectric Ceramics, Charleston, 2022年11月15日
4. “Silicate and aluminate-based ferroelectrics and antiferroelectrics”, H. Taniguchi, 2022 US-Japan Seminar on Dielectric and Piezoelectric Ceramics, Charleston, 2022年11月15日
5. “Void-engineering in silica glass for ultralow optical scattering loss”, M. Ono, 2022 European Conference on Optical Communication (ECOC 2022) workshop, Basel, Switzerland, 2022年9月18日
6. “Total scattering studies of lithium-rich transition-metal oxides for high-energy rechargeable batteries”, N. Kitamura, AsCA 2022, Jeju, Republic of Korea, 2022年11月2日
7. “Improper ferroelectricity and the short-range-ordered state in aluminate-sodalite-type compounds”, H. Taniguchi, Electronic Materials and Applications 2021, オンライン, 19 Jan. 2021年1月19日

### ・研究項目 A02 <計画研究2班>

8. “The electrostatic levitation furnace onboard the international space station for container-less material processing and thermophysical property measurements at extremely high temperature”, T. Ishikawa, The electrochemical society 243rd meeting, Boston, 2023年5月29日
9. “Medium-range order in amorphous materials”, A. Hirata, Hierarchical Structure of Materials 2023, 東京, 2023年3月17日
10. “Self-tuned structure of solute-clusters in dilute Mg-Zn-Y alloy revealed by x-ray fluorescence holography”, K. Kimura, D. Egusa, H. Miyazaki, Y. Sato, M. Itakura, K. Hagihara, N. Happo, T. Matsushita, H. Tajiri, K. Hayashi, and E. Abe, LPSO/MFS 2022, 東京, 2022年12月12日
11. “Development and Applications of X-ray Fluorescence Holography for Unveiling Defect Structures”, K. Hayashi, MRM (Materials Research Meeting) 2021, 横浜, 2021年12月14日
12. “Understanding diffraction patterns of glassy, liquid and amorphous materials via topological analyses”, Y. Onodera, LAM18, オンライン, 2022年9月8日
13. “Understanding diffraction patterns of glassy, liquid and amorphous materials via persistent homology analyses”, S. Kohara, Thermec 2021, オンライン, 2021年6月4日

### ・研究項目 A03 <計画研究2班>

14. “Large-scale DFT calculations for materials with complex structures”, A. Nakata, The 6th China-Japan-Korea Workshop on Theoretical and Computational Chemistry (CJK-WTCC-VI), Suwon, 2023年6月20-23日
15. “Depolarizing effects in hydrogen bond energy in 310-helices revealed by quantum chemical analysis”, Y. Takano, International Congress on Pure & Applied Chemistry Kota Kinabalu (ICPAC Kota Kinabalu 2022), オンライン, 2023年11月27日
16. “Theoretical study on the dry reforming of methane”, Y. Morikawa, 6th International Conference on Catalysis and Chemical Engineering, San Francisco, 2022年2月25日
17. “Stable volumes for persistent homology”, I. Obayashi, Thematic Einstein Semester on Geometric and Topological Structure of Materials, オンライン, 2021年5月26日

### ・<公募研究>

18. “Local structures of Tm ions in Ca<sub>2</sub>Al<sub>2</sub>SiO<sub>7</sub>:Eu,Tm long persistent phosphorescence phosphor studied by X-ray fluorescence holography and positron annihilation lifetime spectroscopy”, M. Kitaura, 9th International Symposium on Optical Materials, Tarragona, Spain, 2023年6月28日
19. “Oxidation reactivities of two Ta@Si<sub>16</sub> and B@Al<sub>12</sub> superatoms on an organic substrate”, A. Nakajima, Symposium on Size Selected Cluster, Davos, Switzerland, 2023年2月28日
20. “Structures and properties of stimuli-responsive molecular crystals composed of unique-shaped building units”, Y. Yakiyama, Singapore International Chemistry Conference, Singapore, 2022年12月14日

## 主催シンポジウム・ワークショップ 4件（合計16件） \*34ページ表2にも記載

1. 第1~5回領域報告会、毎年春秋の2回、名工大、JAXA、NIMS、名大で開催。対面又はハイブリッド
2. 第1回及び第2回領域国際ワークショップ、第1回2021年3月26日、第2回6月26日、オンライン
3. 第35回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム「放射光を用いたガラス研究の最前線と未来」、2022年1月9日、オンライン
4. SPring-8 ユーザー共同体 原子分解能ホログラフィー・不規則系機能性材料合同研究会、2021年12月18日及び2023年1月12日の2回開催、オンライン

## 報道記事・プレス発表等 7件（合計27件）

1. SiC 添加物の状態特定に成功、電子デバイス産業新聞, 2022年4月21日
2. 地上では難しいガラスの研究が静電浮遊炉 (ELF) で大きく前進! ~チャレンジングな研究計画を提案しよう~, JAXA web site (<https://humans-in-space.jaxa.jp/biz-lab/case/detail/002132.html>), 2022年3月31日
3. 名工大ら、鉛フリー圧電材を X 線ホログラフィー解析, 電子デバイス産業新聞, 2022年2月4日
4. 酸化スズにタングステン添加 電子軌道混成で透明化”, 日刊工業新聞, 2021年12月18日
5. お宝発見 宇宙ガラス, 毎日新聞朝刊, 2021年12月16日
6. 東北大など、化学的圧力で単結晶の欠陥を制御して最低熱伝導率を達成, 日本経済新聞ウェブニュース速報, OPTRONICS, 2021年5月11日
7. 世界一構造秩序のあるガラスの合成と構造解析に成功ーガラスの一見無秩序な構造の中に潜む秩序を抽出ー, 日本経済新聞ウェブニュース速報, 2020年12月25日



## 8 研究組織の連携体制

研究領域全体を通じ、本研究領域内の研究項目間、計画研究及び公募研究間の連携体制について、図表などを用いて具体的かつ簡潔に1頁以内で記述すること。

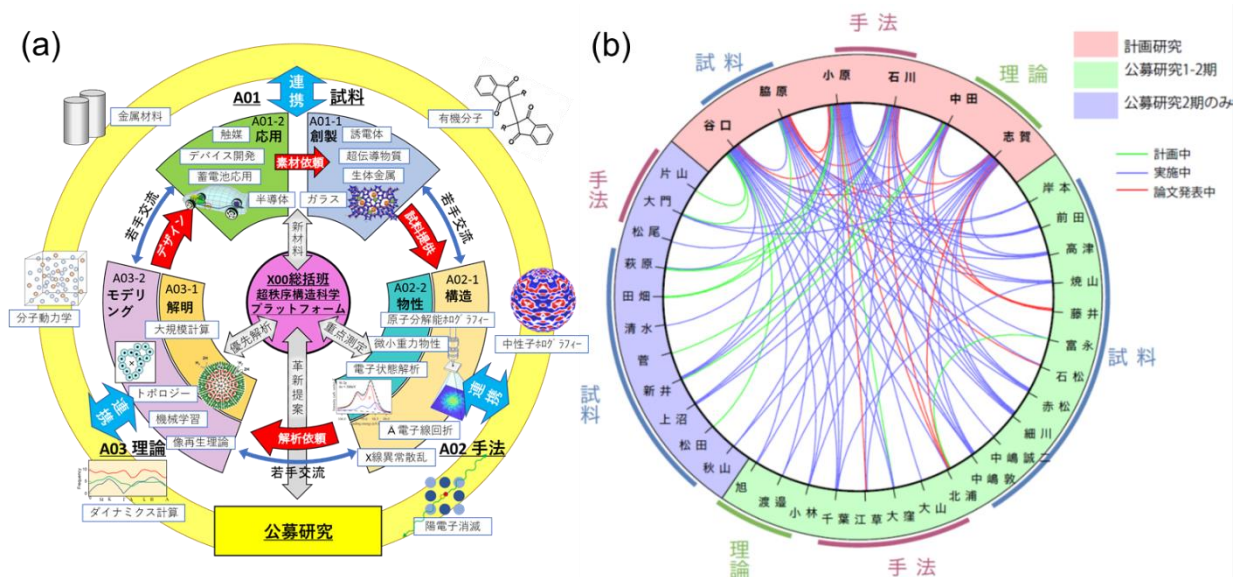


図 4 (a)本研究領域の組織と連携体制、及び(b)各々のグループと連携ネットワーク

本研究領域は、図 4(a)に示すように、総括班を中心に A01 試料班、A02 手法班、A03 理論班と 3 つの班が配置されている。総括班(X00)が、三つの研究項目を A01→A02→A03→A01 のように駆動させ、領域全体を学理創成・国際展開・産業利用といった目標に向かって加速させている。班内ではより密接な連携を常に行い、強固な班間連携へと反映させる。公募研究班は、計画研究班では不足部分の補完と革新技術導入による相乗効果を狙う役割がある。総括班では、3 カ月毎に連携研究の進捗状況をチェックしており、その統計に基づく連携ネットワークを図 4(b)に示す。非常に多くの連携(153 組)が、領域代表のリーダーシップの下に実践されていることが分かる。その中で、計画研究間の連携は 69 組、計画研究—公募研究間では 81 組、公募研究間では 3 組存在する。これらの連携の中で、37 組の連携が既に論文発表まで達している。第二期から参加した公募研究班は、連携に取り組み始めた状況である。

以下、主要な研究項目の連携について記述する。

### ① 材料中の複合欠陥探索と機能性材料創製に向けた設計

点欠陥を超えた機能創製を複合欠陥によって実現することを目指した連携である。主として、A01 谷口 G が合成する酸化物材料の単結晶を対象試料として、異種元素を添加した場合の物性の変化を調査する。添加元素の組み合わせには、A03 中田 G・旭 G(公募)らによる第一原理計算や機械学習を駆使し、最適な組み合わせを予測する。また、合成された試料については、A02 小原・石川 G らが、原子分解能ホログラフィーや X 線吸収微細構造法を用いて超秩序構造の詳細を決定する。

### ② 非晶質材料の秩序化とその観測

高压などによってガラスの秩序化を促進させ、光学特性やネットワーク構造におけるトポロジーの変化などを評価する。A01 谷口 G の高压技術を用い合成されたガラスを、A02 小原 G が X 線・中性子回折に逆モンテカルロ法を適用して構造決定する。得られた構造から、A03 中田 G・志賀 G がトポロジー解析を行い、既存結晶との類似性や秩序化の記述子を作成する。また、これらが、どのように光学特性と相関があるのか評価し、A01 脇原 G によって光ファイバーなどの応用を検討していく。

### ③ 学理構築に向けた「超秩序構造」ダイナミクスの評価

基本的に中性子非弾性散乱を用いたダイナミクス計測を目的とした連携であるが、多くの試料を計測する関係から、多くのメンバーが連携に関わっている。A01 谷口 G・脇原 G、A01 公募 G から、乱れた結晶、秩序化ガラスなどを提供してもらい、A02 小原 G が中性子弾性・非弾性散乱を測定する。A03 小林 G(公募)が分子動力学を用いてダイナミクスの検証を行い、A03 志賀 G がボゾンピークの分散パターンから記述化を行い、ダイナミクスの観点から結晶とガラスの接点を見出す。

## 9 若手研究者の育成に係る取組状況

研究領域全体を通じ、本研究領域の研究遂行に携わった若手研究者（研究協力者やポスドク、途中で追加・削除した者を含む。）の育成に係る取組状況について、具体的かつ簡潔に1頁以内で記述すること。なお、本研究領域が育成に取り組んだ「若手研究者」の定義を始めに示すこと。

本研究領域が定める若手とは、学部4年～博士後期課程学生、博士研究員、助教などを主に指す。しかし、ここでは、若手准教授に関わる取り組みも紹介する。

**【若手の学校】**2020年度は期間的に短かったので行えなかったが、2021年5月22,23日及び2022年5月21,22日に、第1回及び2回「若手の学校」をオンラインで開催した。超秩序構造科学に関する4件の基礎講座および3～4件のチュートリアル（演習）に加え、3件の最新トピックスについての講演を行った。特にチュートリアルでは、原子分解能ホログラフィー、X線・中性子散乱データからのPDF解析、機械学習、第一原理計算、分子動力学シミュレーションを題材とした演習が行われ、実際の研究に役立ててもらったと考えている。参加者は1回目が124名、2回目が100名であり、領域外からも参加があった。また、オンラインのポスター発表も行い、優秀な発表を行った若手にはForest Awardを授与した。また、年に2回行われる領域報告会においても若手を中心としたポスター発表を行っており、優秀発表者には同様にForest Awardを授与している。2023年度の第3回「若手の学校」は、初の対面会議を7月22,23日に阪大中之島センターで開催する。

**【若手の海外派遣】**本研究領域では、若手の海外派遣に力を入れている。COVID-19のために十分な人数を派遣できたとは言い難いが、表1に示すように、これまでに1名の長期派遣（～3年）、3名の短期派遣（2～3ヶ月）を行ってきた。また、2023年度は、3名の若手を短期派遣する予定であり、これらの活動により、若手を中心とした新たな海外ネットワークが構築されることを期待している。なお、これとは別に上記Forest Award受賞者には、領域の主催する国際会議（海外で行われるもの）で、旅費支給に加えて口頭発表の機会を与えている。2022年9月19-21日にフランス・グルノーブルで行われた”International Workshop on Exploration of Atomistic Disorder in Long-Range Ordered Systems and of Order in Disordered Materials”では、5名の若手受賞者が発表し海外研究者との交流を行った。

表1 長期及び短期海外派遣若手リスト

期間	名前	国・都市	滞在先	ホスト
‘22/2/20～present	加藤達也 (PD 名工大)	フランス・グルノーブル	SIMaP	Dr. Marc de Boissieu
‘23/1/4～’23/3/27	手跡雄太 (PD NIMS)	スイス・チューリッヒ	チューリッヒ大	Prof. Juerg Hutter
‘22/12/12～’23/2/23	佐々木俊太 (D2 弘前大)	デンマーク・ホルボー	ホルボー大	Prof. Morten Smedskjær
‘21/12/5～’22/2/11	鈴木藍 (M2 岡山大)	カナダ・サッカチュワン	サッカチュワン大	Prof. John Tse

**【若手による国際会議企画】**本研究領域では、毎年、海外で国際会議を開催することを戦略の柱の一つとしている。2023年度は、A01-1 計画班代表者の谷口准教授と同研究室のStellhorn 特任助教が企画し、ドイツのエアランゲン ニュルンベルク大学のWebber 教授と共同して、HERAEUS 財団(ドイツ)に国際会議の開催の申請を行った。無事に採択され、5月22-24日に”Beyond Imperfections: New Structure-Property Relationships in Ceramics and Glasses”をドイツ・Bad Honnefで開催することとなった。Forest Award 受賞者の3人が本会議でも口頭発表を行った。若手が主体となって、このような国際的なチャレンジを行うことは、次世代の国際的リーダーを育成する上で重要である。

**【若手向けの講習会】**「若手の学校」以外の講習会として、2021年9月13～17日「ガラス構造解析のオンラインチュートリアル」(英語)をA02-1 小原が主体で企画しオンラインで開催した。また、2021年12月20～23日及び、2022年9月4～7日にA03-2の松下が講師として、「ドーパント原子配列解析」(第4回SPring-8秋の学校、松下智裕)また、A03-1の森川が第一原理電子状態計算手法についての講習・実習を行うCMDワークショップを期間中に5回開催し、合計309名の参加があった。

**【若手研究者の受賞・昇進状況】**計画班代表者に関しては6人中3人、分担研究者については23人中5人が期間中に昇進を果たした。博士後期課程学生については、16人が修了し、多くがアカデミアに就職している。表彰については、領域全体で26件に上る。

## 10 アウトリーチ活動に係る取組状況

研究領域全体を通じ、一般向けのアウトリーチ活動に係る取組状況について、具体的かつ簡潔に1頁以内で記述すること。

「超秩序構造科学」がこれまでに行ったアウトリーチ活動として、「動画作成」、「雑誌の特集号」、「ニュースレター」、「プレスリリース」、「学会におけるブース」、「英文専門書」、「学会シンポジウム」などが挙げられる。

【シンポジウム・ワークショップ】領域外の研究者に成果を公開するために、表2に示すように、多くのシンポジウムを企画しアウトリーチ活動に務めてきた。2022年秋以降は、COVID-19による制限が徐々に解除されてきているので、対面での国際シンポジウムやワークショップなどを開催できるようになり、成果の海外発信も効果的に行えるようになった。2023年9月24-29日には、新学術領域研究「ハイパーマテリアルズ」との共催で、フランス・エビアンにおいて国際会議を開く。これらとは別に、日本物理学会の春季及び秋季大会において、「超秩序構造科学」のセッションを設け成果発信を定期的に行っている。

表2 これまでに行ったシンポジウム・ワークショップ

'23/5/22-24	HERAEUS (Bad Honnef)	Beyond Imperfections: New Structure-Property Relationships in Ceramics and Glasses
'23/3/16	応用物理学会(上智大)	物質の超秩序構造とその応用 ～結晶と非晶質のはざまの科学～
'22/9/19-21	IRN Aperiodic (Grenoble)	Exploration of Atomistic Disorder in Long-range Ordered Systems and of Order in Disordered Materials
'22/9/14-16	セラミックス協会 (徳島大)	国際ガラス記念シンポジウム2: ガラスの科学
'21/9/1-2	セラミックス協会 (online)	ナノスケール原子相関-実験・理論・データ科学による無秩序に潜む秩序の抽出-
'21/3/13	日本物理学会 (online)	多様な物質に潜む「超秩序構造」～構造物性研究の新展開～

【専門書・特集号】書物によるアウトリーチ活動として、英語による専門書執筆や学会誌・雑誌の特集号などの企画を進めてきた。専門書については、2023年秋に Springer からの発刊を目指して”Hyperordered Structures in Materials – Disorder in Order and Order within Disorder”の編集作業を進めている。特集号については、J. Phys. Soc. Jpn.(JPSJ)から2022年夏に特集号”Hyper-Ordered Structures: Recent Progress and Future Perspectives”(13編)、日本放射光学会の会誌「放射光」には、特集記事「放射光を用いたガラス研究の最近の進展 —国際ガラス年2022を記念して—」(6編)が掲載された。今後も複数の企画が進行している。

【プロモーションビデオ作成】本研究領域がスタートされたと同時に、COVID-19が社会問題として顕在化し、対面での成果発信や公募研究班募集ための説明会の開催が困難となった。この問題を解消するために、領域開始直後から動画の作成を進め、youtubeでの公開を行った。結果、公募研究の応募が第一期では117件、第二期では126件と多くの応募があり、一定の成果が得られたと考えている。また、英語版もアップし、海外への宣伝に利用した。なお、JPSJ特集号の内容を元にしたショートムービー(全編英語)も2023年春に完成した。優しい表現を用いており、学生への波及も期待できる。(図5)

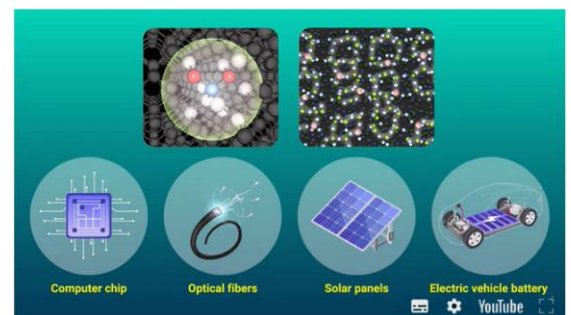


図5 JPSJ特集号を元にしたショートムービー

【ニュースレター】年に定期的に2回のニュースレターの発行を行い、領域内外の研究者や学生に成果発信や活動内容の紹介を行っている。既にVol.6までの発行を行った。

【プレスリリース・新聞発表】インパクトのある成果については、積極的にプレスリリースを行っており、現在までに20件の発表を行った。また、それに基づく新聞発表・報道が27件あった。

【その他活動】出張授業やサイエンスカフェなどは、領域全体で60件行っている。コロナ禍で行えなかったが、2023年度は姫路科学館でサイエンスショーを行う予定である。2022年は国際ガラス年であることもあり、東大安田講堂で行われたクロージングの国際会議でブースを出し、領域活動の宣伝を行った。また、これに因んでは、A02分担研究者 小野が文科省「一家に一枚 ガラス」の企画・作成に大きく関わっている。

## 11 研究費の使用状況・計画

研究領域全体を通じ、研究費の使用状況や今後の使用計画、研究費の効果的使用の工夫、設備等（本研究領域内で共用する設備・装置の購入・開発・運用、実験資料・資材の提供など）の活用状況について、総括班研究課題の活動状況と併せて具体的かつ簡潔に1頁以内で記述すること。

**【使用状況】** コロナ禍によって 2020、2021 年度は国際活動に制限を受けたため関連予算の繰越を行わざるを得なかったが、2022 年度以降は精力的に国際展開を行っている。具体的には、2022 年 9 月にはフランス・グルノーブルで、2023 年 5 月にはドイツ・Bad Honnef で国際ワークショップを現地開催した。ここでは、若手海外渡航の支援も行った。さらに、4 名の若手研究者および学生を海外機関研究に派遣するための援助を行い、研究に取り組む機会を提供している。2023 年度には当初計上していた通り、国際活動関連予算を執行できる見込みである。

その他、設備・物品費、人件費（10 名の若手研究者）、SPring-8 などの大型研究施設で研究を推進するためのビームタイム使用料、若手の学校や領域成果報告会などのイベント運営費、ホームページ作成費用、領域紹介動画の作成費、領域研究員が常駐する SPring-8 における拠点室の維持・管理費など、予定通り執行している。

**【使用計画】** 設備・物品として、GPU 並列計算機を A03 班で購入し、試料班・手法班と連携して材料の構造モデル構築のシミュレーション計算、構造記述子の網羅的な解析のための環境を増強する。A02-2 で開発している硬 X 線光電子ホログラフィー分光装置(SPring-8, BL25SU)に必要な真空関連部品を購入し、2023 年度中に本装置を完成させる。人件費については、7 名の若手研究者を引き続き雇用する（これまで領域で雇用していた 10 名のうち 3 名が昇進した）。また、2023 年 9 月にはフランス・エビアンで、国際ワークショップを開催することが決定しており、その運営費を負担するとともに、Forest Award を受賞した若手や招待講演者をはじめ旅費の支援を行う。2024 年度にも国際ワークショップを若手主導で企画予定であり関連経費を計上している。

**【研究費の効果的使用の工夫】** 各班の予算執行状況を 3 か月に一度ずつ総括班に報告するようにし、総括班会議において有効な経費の使途について議論を行っている。特に、公募班については、予算執行状況とともに連携状況についても報告を依頼し、経費が効果的に使用されているかを確認している。SPring-8 の成果公開優先課題の申請については、インパクトの大きい成果につながるよう総括班会議で優先的に測定すべき課題を選定している。また、第一期公募班で、二期目に不採択になったメンバーについても、成果創出のため SPring-8 での継続実験が必要であるため、要望に応じてビームタイム使用料を支給し、共同研究を続けている。現在、石松、高津、千葉、中嶋(誠二)、赤松との SPring-8 を利用した連携研究は継続しており、領域独自の成果が上がりつつある。

**【設備等の活用状況】** A01 谷口 G では新たに購入した四楕円鏡型浮遊帯域熔融装置と高圧単結晶引き上げ装置により、精密計測に必要な大型バルク単結晶を育成している。さらに、高圧蛍光 X 線ホログラフィー専用のダイヤモンドアンビルセルを特注し、A02 班と共同で技術開発を進めている。A01 脇原 G ではゼオライトなどを緻密に焼結するための放電プラズマ焼結装置を購入した。処理条件による原子配列の違いが A02 班によって見出され新たな超秩序構造物質創製に向けて成果が上がっている。

A02 小原 G が中心となって 2022 年 3 月に世界唯一の「X 線異常散乱/蛍光 X 線ホログラフィー複合計測装置」を、共用装置として導入した(SPring-8, BL47XU)。領域内で合成された様々な結晶およびガラス材料を計測し成果をあげつつある。さらに、A02 石川 G では硬 X 線光電子ホログラフィー分光装置(SPring-8, BL25SU)のために特注の阻止電位型分析器、単色化 X 線源を購入した。本装置は 2023 年度からコミッションを開始し、2024 年度には SPring-8 において共用装置として超秩序構造の計測に使用する予定である。

A03 中田 G では、生体分子理論計算用サーバを購入し、A01 班と連携して植物型 Fd の機能発現機構解析を行った。また、酸化物中のドーパント周りの超秩序構造とそれが誘起する機能との相関を明らかにするため、クラスターエレメントを購入した。A01 班、A02 班と議論を重ね予備的計算を実施している。さらに、A03 志賀 G では大規模な構造モデル生成と超秩序構造解析のために、専用の GPU 搭載計算機を購入し、A01、A02 班と連携して超秩序構造と物性の相関関係に迫る研究を展開している。

以上のように、研究費は効率的に使用され、共有できる設備・装置・知的資源は有効に活用されている。

## 12 今後の研究領域の推進方策

研究領域全体を通じ、今後の本研究領域の推進方策について、「これまでの学術の体系や方向を大きく変革・転換させることを先導する」観点から、具体的かつ簡潔に2頁以内で記述すること。なお、記述に当たっては、今後実施する公募研究の役割を明確にすること。また、研究推進上の問題点がある場合や、国際的なネットワークの構築等の取組を行う場合は、その対応策や計画についても記述すること。

領域の定義する「超秩序構造」とは、「完全秩序」と「完全無秩序」との間に存在するナノスケールの特異構造を指し、結晶やアモルファスに機能性を付与する重要な鍵因子である。具体的には重点研究対象を、A「ドーパント誘起超秩序構造」、B「空孔・空隙を含む超秩序構造」、C「結晶/アモルファス境界の超秩序構造」と設定し研究を推進してきた。その結果、機械学習を用いた誘電体中の複合欠陥の設計やゼオライトにおける動的秩序構造のマイクロ波誘起、圧力印加によるガラス構造の秩序化、光電子ホログラフィーを用いたガラス/結晶界面の評価など、いくつかの特筆すべき成果があった。加えて、SPring-8における基盤計測装置の建設や統合解析ソフト(SOVA)の開発など、今後、領域のみでなく広くユーザーに供与できるインフラも整備した。図6は申請時領域計画書に載せた課題とスケジュールを簡略化したものである。前半期の課題は概ね達成できたと考えている。2023年度以降は、より融合研究を意識した①～④について強力に推進していく。以下、その詳細を記す。なお、④'については新たに派生した重点項目である。

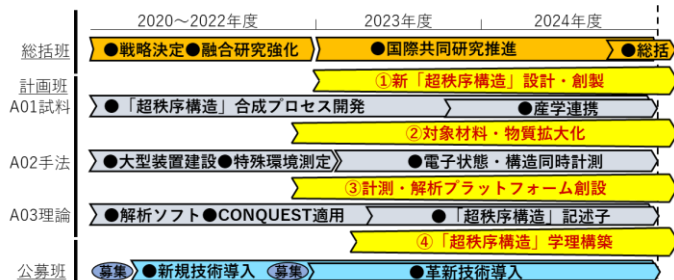


図6 領域の課題とスケジュール

- ① **新「超秩序構造」設計・創製**：領域前半期の研究を総括すると量子ビームを用いた「超秩序構造」の決定、第一原理計算を用いた電子状態の評価など、満足できる連携の成果が得られている。しかしながら、一步先の革新材料創製には及んでいない。領域の後半期においては、「連携」を「融合」へと変革させ、領域の目玉となる新規材料の創出を第一目標とする。そのためには、我々が探索してきた「超秩序構造」の知見を基に、大規模第一原理計算・機械学習を駆使し、機能性「超秩序構造」のデザインや、さらには合成プロセスの提案を行う。また、産業事業化に資する新規材料創製を目指す。
- ② **対象材料・物質拡大化**：高剛性と多連装検出システムを有する「X線異常散乱/蛍光X線ホログラフィー複合計測装置」が完成し、今後、対象試料の拡大化が可能となった。希薄試料に対しては、蛍光X線ホログラフィーにおいて $1.3 \times 10^{-4} \%$ のドーパントの計測に成功しており、当初目標を高いレベルで達成した。現在、セラミックス結晶粒やファイバーガラスの計測に取り組んでおり、また、電場・高圧などの外場印加セルも製作している。今後は、このような試料または外場下においても、高精度な散乱・ホログラムデータを取得できるように試行を続けていく。
- ③ **計測・解析プラットフォーム創設**：X線回折からの原子構造可視化、化学結合に関する統計処理、トポロジー解析などを簡便に行えるGUIソフトウェア(SOVA: Structural Order Visualization and Analysis)を開発してきた。今後は、分子動力学計算、逆モンテカルロ法、機械学習ポテンシャル機能を強化し、公開を目指していく。また、公開済みの原子分解能ホログラフィー統合解析ソフト 3D\_AIR\_IMAGEについても、微小試料、外場印加計測、タンパク質計測で必要となるノーマルモードの解析機能を強化する。さらに、逆モンテカルロ法を像解析に適用する機能も実装する。ハード面では、バルク構造と電子状態を同時計測できる「硬X線光電子ホログラフィー」の建設を完了させる。
- ④ **「超秩序構造科学」学理構築**：「超秩序構造」とは完全規則性、完全無秩序からの構造的な“ずれ”であり、その構造的特徴と材料機能の相関を理解することが本領域の最大ミッションである。多くの議論の中で、領域全体の理解が深まりつつあるが、「超秩序構造」の記述子作成が鍵となっている。現在、Springerから英文専門書が発刊される予定であり。その中で一つの答えを出し、学理の体系化を深めていく。X線・中性子散乱の、原子分解能ホログラフィーのデータを格納するデータベースは、現在、ライブラリーとして急ピッチに整備が進んでいる。ライブラリーには試料の物性データを紐づけてあり、物性と構造の関連性も統計的に処理できるため、その結果も学理構築に活用していく。
- ④' **「超秩序構造」の構造・ダイナミクス**：④の学理構築に対し、構造のみでなくダイナミクスの視点から検討する必要があると意識している。例えば、同じ系列の物質においても、乱れた結晶と秩序化ガ

ラスでは同じような低エネルギー振動状態(ボゾンピーク)が見られ、領域が探索している秩序と無秩序の接点が見出されるからである。我々は、J-PARC の長期利用に課題申請を行い、中性子散乱及び非弾性散乱のビームタイムを長期的(2022~25)に獲得した。ベンチマーク的に典型的な非晶質や結晶物質に対して、弾性散乱と非弾性散乱の測定を行い、振動状態と構造の相関に対して体系化を行う。その後、領域で取り扱っている高圧ガラスのボゾンピーク観測から構造秩序化の評価を行う。大量のデータを取得する予定であるが、これらは全てライブラリーに保存され、学理構築に利用される。

## 公募研究班の役割

公募研究班は、計画研究班では不足部分の補完と革新技术導入による相乗効果を狙う役割がある。第二期公募研究班メンバー20名については、以下の表のように役割分担を整理した。誘電体やゼオライトのような基盤材料研究については有望な研究者の新規参加により、今後のさらなる飛躍が期待される。また、超伝導などの基礎物性研究についてもメンバーが補強され、新奇物性探索における「超秩序構造」の役割が明らかになると思われる。なお、手薄であった有機材料、タンパク質、半導体、金属材料についても補強され、広範囲な材料分野の「超秩序構造科学」の確立が期待される。なお手法については4つの新規量子ビーム技術を導入でき、「超秩序構造」の新たな状態計測が可能となった。理論については、機械学習が大きく強化され、機能的「超秩序構造」の設計を推進できる。なお、役割分担については、表に記載されたものだけでなく、適宜、有機的に組み合わせのネットワークを拡張していく。なお、第一期から第二期に移行するにあたり、約半数のメンバーが入れ替わったが、第一期のみのメンバーについても、引き続きサポートし、成果の最大化に努める。

表3 第二期公募研究班の役割分担

<b>基盤材料研究強化</b>	萩原、清水、松尾 岸本、細川	「超秩序構造」誘電体材料のさらなる開拓 ゼオライトのダイナミクス研究への展開
<b>基礎物性研究拡張</b>	秋山、田畑、菅	超伝導研究の拡張、スピン物性・界面現象への展開
<b>対象材料拡張・ 補強</b>	焼山、新井 上沼、松田	有機物質・タンパク質研究の強化と拡張 半導体デバイス界面・金属材料への拡張
<b>測定技術補強</b>	北浦、大山、片山、大門	新規量子ビーム技術の導入
<b>理論強化</b>	小林、渡邊、大窪、旭	機械学習、MDによる「超秩序構造」の理解と設計

## 総括班が計画する今後の海外展開

国外での国際会議開催や若手の海外派遣、クロスアポイントメントによる著名研究者の受け入れなどを計画していたが、COVID-19のために思うように進まなかった。2023年度以降は、その点が挽回できるように国際展開を強化していく。既に、本年度は領域中堅若手の谷口が企画した“HERAEUS Symposium” Beyond Imperfections: New Structure-Property Relationships in Ceramics and Glasses”(5/22-24, Bad Honnef, Germany)があるが、その後は、新学術領域研究「ハイパーマテリアル」及びヨーロッパ非周期構造材料研究会”IRN-APERIODIC”との共催で、国際会議“International conference on complex orders in condensed matter: aperiodic order, local order, electronic order, hidden order”(9/24-29)をフランス・エビアンにおいて開催する。2024年度の国際会議については、領域若手に企画を行ってもらう予定である。なお、若手の短期海外派遣については十分な人数が行えるように予算的にも配慮する。また、上記国際会議において口頭発表の機会を与える。なお、前述している Springer からの専門書”Hyperordered Structures in Materials – Disorder in Order and Order within Disorder”を発刊させ、欧文誌において2回目となる特集号の企画も進める。

ネットワーク形成としては、フランス・グルノーブル SIMaP(材料工学研究所)に拠点を置く領域拠点を中心とした成果発信や量子ビーム研究の遂行、ロンドン大学、ボルドー大学との大規模第一原理計算プログラム CONQUEST の共同開発を従来通り進めていく。これに加え、イギリスのバース大学、ドイツのエアランゲン-ニュルンベルク大学と複数の共同研究が進んでおり、2023年度中に国際共同研究の成果を論文として上げていく。

## 13 総括班評価者による評価

研究領域全体を通じ、総括班評価者による評価体制（総括班評価者の氏名や所属等）や本研究領域に対する評価コメントについて、具体的かつ簡潔に2頁以内で記述すること。

### 【総括班評価者による評価体制】

学術界からは京都大学福井謙一記念研究センター リサーチディレクターの平尾公彦先生、高輝度光科学研究センター理事長の雨宮慶幸先生、東京大学工学研究科特別教授の堂免一成先生、また、産業界からは、パナソニック株式会社元参事の山田 昇先生に総括班評価者となって戴いた。年2回の領域報告会や総括班会議の内容に基づき、各評価者の先生方のコメントを以下に記す。

### ●平尾公彦 先生による評価コメント

「超秩序構造」は、「完全秩序」と「完全無秩序」との間に存在する中間的な構造状態を指し、機能性ガラス、ゼオライト、超伝導体、生体材料等の幅広い材料群をカバーしている。本研究領域では、「超秩序構造」の観測・理解・制御の研究に取り組むことで、新しい材料設計のアプローチを開拓し、高機能材料を探索することを目的としている。キーワードは Disorder in Order/ Order within Disorder in Materials, Hyperordered Structures である。発足当初は大変挑戦的であるものの難しい課題ではないかと思っていたが、領域代表者をはじめとする総括班グループの強いリーダーシップのもと、領域内の連携研究、共同研究も活発に行われ、着実に成果が挙がってきている。いくつかの分野では目覚ましい成果もある。分野を越えた共同研究には目を見張るものがある。合成と測定、実験と理論・計算の連携も活発に行われている。素晴らしい。また、若手研究者の育成にも力を入れ、若手の学校開催や若手研究者の共同研究目的のための海外の研究グループへの派遣は他の領域には見られないユニークな活動である。海外グループとの共同研究や国際ワークショップ、国際シンポジウムの開催にも力を入れている。またアウトリーチも研究会や講演会の開催とともに、出版活動も盛んに行っている。日本物理学会誌である JPSJ 誌の特集号の発刊、放射光学会誌の世界ガラス年を記念しての特集記事の掲載、また、来年度には Springer から英文専門書を刊行予定である。残りの期間でこれまでの成果を土台として大きな進展があるであろう。超秩序構造を高度に制御することにより機能性ある新しい物質や材料がこの領域から開発されるものと大いに期待している。

### ●雨宮慶幸 先生による評価コメント

本学術変革領域「超秩序構造が創造する物性科学」が目指していることは、「完全秩序を持つ結晶」と「完全無秩序なアモルファス」に関する研究が従来ほぼ独立に実施されていたため未開拓であった、「完全秩序」と「完全無秩序」との間に存在する中間的な構造の領域を開拓し、その構造領域を「超秩序構造」と命名し、且つ、そのコンセプトを進化させ、新たな物性科学を創造することにある。大変に挑戦的なテーマであり、「超秩序構造」のコンセプトをどのように深化させるのかに関して採択時には多少不安があったが、採択後にこのコンセプトの議論と連携研究の促進を徹底することにより、「超秩序構造科学」の概念を明確にして、その成果を広く世界に普及させる活動を活発に展開していることは、高い評価に値する。具体的には、2022年夏に発刊した JPSJ 特集号では、領域の英文名” Hyperordered Structures in Materials - Disorder in Order and Order within Disorder” と命名し、「超秩序構造」のコンセプトが広く共有されるようになり、領域内外での議論がしっかりと噛み合い、実質的な連携が進みつつある。

本領域は、A01の試料班、A02の手法班、A03の理論班からなっていて、その三つの班の実質的な連携も良好である。領域代表者は、原子分解能ホログラフィーで先駆的な研究を行ってきた実績があり、その意味で手法班のエキスパートであり、本領域では手法班の強みを活かしつつ、試料班、理論班との実質的かつ良好な連携を行いながら領域全体が運営されていることは、領域代表者の高いリーダーシップの現れであり、高く評価したい。また、若手研究者の育成に力を入れた取り組みが行われていることを高く評価したい。本領域で育成された研究者が、新しい領域（＝変革領域）を更に発展させていくことを期待す

る。

発表論文、学会講演、プレス発表も積極的に行われている。

今後（2023年以降）の領域の推進方策として挙げられている下記の融合テーマは、極めて的を射たテーマであり、各テーマにおける今後の研究成果の創出を大いに期待したい。1. 新「超秩序構造」設計・創製、2. 対象材料・物質拡大化、3. 計測・解析プラットフォーム創設、4. 「超秩序構造科学」学理構築、5. 「超秩序構造」の構造・ダイナミクス

### ●堂免一成 先生による評価コメント

本学術変革領域「超秩序構造が創生する物性科学」は、「完全秩序」と「完全無秩序」の間に存在する特異的な秩序構造を「超秩序構造」として定義し、その構造や機能を解明しひいては新規な機能を有する超秩序構造物質を開拓しようというものである。研究範囲として無機系材料から有機高分子系材料、機能としても光・熱伝導性や触媒機能などを含んでおりかなり幅広い分野がうまく一つの研究領域としてまとまるのか、研究開始当初はやや疑問があった。しかし、本中間報告にあるように領域代表者・総括班の活発な活動により、公募班を含めた各研究グループの共同研究が非常に活発に行われており、分野が広いということが利点となりつつある。本領域は、大きく分けてA01の試料班、A02の手法班、A03の理論班からなっているが、大きな特徴はA02の手法班が世界最先端の分析手法を開発しつつあることとそれを支えるA03の理論班が充実していることであろう。これまでの研究成果を見ても高性能の装置の立ち上げは順調に進んでおり今後の成果に大いに期待が持てる。個々の研究グループの進展状況はほとんどの研究が予定通り、中には予定以上に進展しているものもあり順調であると判断できる。論文等の発表も十分であり、若手の育成もコロナ禍の状況ではあったが、ほぼ予定通りではないかと思われる。今後、本学術変革領域の後半にかけては、このような素晴らしい環境下での研究を行うことにより、世界最先端の機能を持つような何らかの新規な物質・材料の開発が行われることを期待したい。

### ●山田昇 先生による評価コメント

企業での研究開発に携わった評価者から見て、本研究領域は、日本がこれから材料デバイス技術で世界をリードしてゆくうえで、本質的かつタイムリーなテーマ設定だと思われる。メモリー材料や二次電池材料に見られるように、優れた材料の発見によりデバイス性能は急伸張するが、ほどなく限界を極め、10年も経てば性能の陳腐化が始まる。この間、業界・市場の際限ない要求に応えるべく継続した改良研究が行われるが、この材料デバイス分野が抱える「継続成長」という課題を抜本的に克服し、開発を新たなステージへと押し上げるには、少なくとも10～20年に1度の材料での大ジャンプが必要である。しかし、有望と目される材料は既に調べ尽くされていて、画期的発見は容易ではない。本研究領域は、これまでの物質科学では体系化されていない物質中の「超秩序構造」に着目し、「超秩序構造」の創造により従来にはない高機能性デバイスを目指す、また世の中にある特異な機能の起源を物質内のミクロな構造中に求め、ジャンプアップのための材料設計指針を獲得する。まさに重要課題解決の新機軸として期待される。

これまでの活動において、間口の広い領域名を反映し、公募テーマも含めた研究課題のラインアップは非常にバラエティーに富んでいる。必然的に、「超秩序構造」の捉え方にも多少の広がりがあるようで、そのことが全体進捗の俯瞰をやや妨げているきらいはある。但し、個々のテーマはそれぞれの「超構造」への的確にアプローチしていて、やがて相互の繋がりが見えてくるだろう。研究体制として、具体的な材料開発班の他、高輝度放射光を用いた構造解析班、第一原理計算等による理論班の協力体制が敷かれている。「超構造」の創造と理解は、まさに本研究領域のエンジンといえる。構造解析や理論研究の成果（構造、メカニズムに関する知見）に関しては、現象の説明解釈にとどまらず、当初の目的に沿って、実際の材料提案までの取り組みを期待する。

最終報告に向けて。研究テーマの進捗状況、自己テーマと競合テーマとの優劣を日々客観的に把握することは、研究方向の精度を高め、ひいては成果の到達度を高める。その意味で、少なくとも材料開発班ではテーマの目標設定と進捗管理をなるべく具体的に数値化することが大切かと考える。残りの2年間、「超秩序構造」というワードを一般化するようなインパクトのある成果を期待します。