

令和元年6月18日現在

機関番号：14603

研究種目：国際共同研究加速基金（国際活動支援班）

研究期間：2015～2018

課題番号：15K21719

研究課題名（和文）3D活性サイト科学の海外拠点・国際ネットワーク構築

研究課題名（英文）Construction of overseas base and international network for 3D active site science

研究代表者

大門 寛 (DAIMON, Hiroshi)

奈良先端科学技術大学院大学・先端科学技術研究科・教授

研究者番号：20126121

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 50,700,000円

研究成果の概要（和文）：3D活性サイト科学を基盤とした日本の先端的な科学技術を世界に広めるために、英文教科書・論文特集号の刊行や国際研究会の主催を通じ成果の発信を積極的に行った。国内若手研究者の中長期海外派遣を通じた人材育成および海外研究者の招致に力を入れ、本領域の概念と意義について深く理解する研究者コミュニティの海外開拓を進めた。海外の大型先端放射光施設や研究機関を拠点とした共同研究ネットワークの構築に結実した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

数多くの若手研究者を派遣し、共同研究が強化された。欧米の各先端放射光施設を拠点とし、本領域の独自の手法である原子立体写真法や各種原子分解能ホログラフィー技術を広めた。主催した国際研究会には若手研究者・学生が多く参加し、日本の若い人材が今後この分野を切り拓いていく潜在性を強く印象付けた。スウェーデン放射光施設にて光電子回折を習得した卒業生がビームラインスタッフとして採用され活躍、スイス放射光施設光電子回折ビームライン次期計画策定委員会に班員が参画を要請されるなど、人材の国際展開も海外から求められている。

研究成果の概要（英文）：In order to spread the advanced Japanese science and technology based on the 3D-active-site science to the world, we actively promoted the appeal of achievement results through organizing the international workshop and the publications of English textbooks and special issues in international journals. We supported our young researchers actively collaborating abroad for a long term and inviting overseas researchers to our groups. We promoted the foundation of overseas researcher community with a deep understanding of the concept and significance of this field. As a result, a joint research network based on large-scale advanced synchrotron radiation facilities and overseas research institutes was established.

研究分野：数物系科学

キーワード：活性サイト 不純物 先端材料 光電子ホログラフィー 蛍光X線ホログラフィー 表面界面ホログラフィー 電子回折イメージング 第一原理計算

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

1990 年台半ばから、本領域「3D活性サイト科学」の中心的計測手法である光電子・蛍光X線ホログラフィーを用いて、大門、松井、林、松下らは世界初の成果を連発し世界を驚かせた。「大門アナライザー」と呼ばれる二次元光電子カメラの開発など、オリジナルな測定技術群が考案され、ボロンドープダイヤモンドの超伝導発現の起源や形状記憶合金の相変態機構の解明などの画期的な成果が次々に発表された。この研究領域の初期段階でリードしていた欧米グループを大きく引き離していた。また、表面・界面ホログラフィーは、高橋による日本発の測定技術で、高橋の提案後、その有用性が海外で評価され、反復位相回復法を利用した精密原子像再生技術が大きく世界的に広がった。本手法は、国内は元より海外においても、化合物半導体超格子、磁性体薄膜、有機薄膜などでインパクトのある成果を上げ続けている。我々の「3D活性サイト科学」新学術領域には、その他にも世界初の計測手法に関する研究成果が数多く達成されており、新しい計測手法に関する先端科学をシームレスに日本から世界に発信する国内外初の一つの研究コミュニティとして注目されていた。本新学術がスタートしたことにより、国内では今まで個別に議論されてきた上記計測方法論を統合してディスカッションする土壌が生まれ、その成果として、新規な応用研究がいくつも提案されるようになり、大きな広がりが見えてきていた。本新学術領域申請時から「3D活性サイト科学」の学理創成を目指した世界拠点形成構想（国内に国際センター創設を構想）が押し進められていたが、この設置をより実効的に機能させるためには、国内だけに研究拠点センターを設置するのではなく、日本のオリジナル計測手法群を世界に向けて発信するために海外拠点を設置し、より積極的に普及・展開しなければならないという機運が高まってきていた。

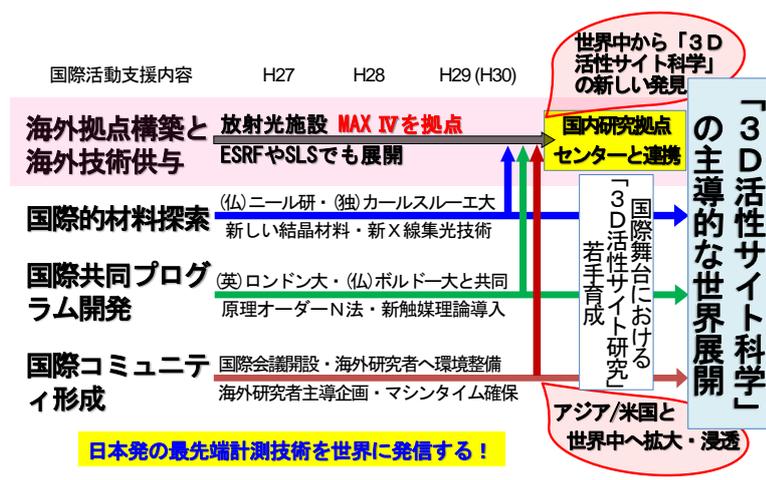
2. 研究の目的

国際支援活動において我々が掲げた目標は「3D活性サイト科学」を基盤とした強い日本の科学技術を世界に広めることである。上記に示すように「3D活性サイト科学」を進める上での主要な測定手法技術は世界においてトップクラスであったが、新学術領域研究としての採択を受け、オリジナル手法を用いた応用研究も国内で爆発的に広がった。我々の研究活動の質と量は、海外研究者のそれと比較して独走態勢にあり、海外グループの追従を許さない状態である。しかし、このような独走状態は決して喜ばしい状況ではない。科学や科学技術を発展させるには、世界的な広がりが不可欠である。我々が持つ素晴らしい計測科学技術を世界の舞台上で際立たせるために、「日本から発信する3D原子イメージング技術を世界標準化する」活動を積極的に進める必要があった。例えば、我々は既に本領域の活動として、標準化を目指したホログラムや再生像のデータベースを構築し始めていた。そのために著名な海外研究者を「3D活性サイト科学」研究活動に参画させ、本領域のコンセプトと意義について深く理解してもらった。幸い本領域メンバーは個人レベルで国外放射光施設での実験が日常化していた。また領域メンバーを海外で継続的に活動できる海外研究拠点についても、その必要性は以前より議論されていた。

3. 研究の方法

本新学術領域研究の目標は「3D活性サイト科学」を基盤とし、日本の科学・産業を向上させることにある。さらに言うなら、そこで醸成された技術力をもって様々な分野における国際競争力をつけ、そこでの競争に打ち勝つことを目指した。無機材料からバイオまでの広域物質群を対象とする本領域の活動は、基礎から応用まで広く波及効果を示すポテンシャルを有する。上記理念の基に、強い日本を実現させる責務を負っている。ただし、これらは国内のみの技術力を高めるという意味ではない。我々の存在感を強く示すためには、海外においても同様の活動を普及させ、日本発の国際「3D活性サイト科学」コミュニティを形成することが肝要であった。

上記目標を具現化するために、まず、我々は新たに「3D活性サイト科学」の海外拠点を設置し、メンバーがそこに常駐するシステムの構築を目指した。その上で、1) 海外拠点構築と海外施設への技術供与、2) 国際的先端材料探索、3) 国際共同プログラミング開発とチュートリアル実施、4) 国際コミュニティ形成について重点的に取り組んでいく戦略を右図に示すように提案した。



1)の海外拠点については、低エミッタンスの高輝度X線が利用できる現在建設中の中型放射光リング光源 MAX IV(スウェーデン、ルンド)を検討した。当施設所長(当時)の Quitmann 博士は我々と親交が深く、MAX IV が建設完了直前の最新施設であり、完成されていないが故に我々の最新技術を組み込みやすいという絶妙なタイミングであった。施設内に拠点室を設置することで海外展開の中核とした。世界最高強度を誇る核破砕型中性子源 ESS も MAX IV の隣接地に建設予定であり、中性子ホログラフィーの世界戦略にも好機となった。MAX IV を拠点



スウェーデン、ルンドでの MAX IV との合同ワークショップ

とし、他の放射光施設として ESRF(フランス)、SLS(スイス)での共同実験も策定した。これらの施設には3D原子イメージング(原子分解能ホログラフィー)を共同研究している研究者がすでに居り、国際展開しやすい。MAX IV、SLS ではすでに、我々が開発している小型光電子カメラについて高い興味を示していた。この技術を供与し共同開発し、その小型光電子カメラをビームラインに設置、光電子ホログラフィーの実験をその施設で優先的に行った。また、蛍光X線ホログラフィーについても、我々の高速蛍光X線検出システムを ESRF の回折計に組み込み実験した。

2)の国際的材料探索は、フランス・グルノーブル CNRS ネール研究所を拠点とした。ネール研究所は結晶学部門と磁性部門が統合されたフランスで最大の無機材料研究所である。ここは、研究所固有の研究を進めるだけでなく、フランス全土の結晶研究分野に共同利用実験試料を提供していた。ネール研究所との提携を進め、最新無機結晶材料の調達先の中核とした。ドイツ・マールブルク大学は、化学・生物の分野でドイツ国内トップであり、またそれらの分野のマックス・プランク研究所を併設している。そこではタンパク質結晶をはじめとして多くの最新の有機物結晶が合成されていた。マールブルク大学との提携も進め、最新有機結晶等の調達先の中核とした。

3)共同プログラミング開発も進めた。我々は、原子像再生理論や計算を駆使した解析法について多くの知見を有している。この原子像再生理論は既に海外でも使われ始めているが[Phys. Rev. B **91**, 085402 (2015)]、利用者は限られていた。利用者の大幅な増加を目指し、海外で積極的なチュートリアル開催を進めた。また、第一原理計算でも、現状では計算モデルが数百原子から1000原子系程度に制限されており、主要テーマの一つである触媒反応を精度よく系統的にシミュレーションするには、さらに大きな計算モデルを用いることが望ましい。この弱点も大規模シミュレーションに対して豊富な蓄積を持つロンドン大学やボルドー大学と共同で研究を進めることによって解消された。

4)国際コミュニティ形成も確実に進める課題である。提案してきた多くの国際活動を確実に実行し、また研究者を一堂に定期的に集め議論することがコミュニティ形成にとって極めて重要で、それを実行した。また、本領域メンバーが海外で実験するだけではなく、海外研究者が国内放射光施設で実験しやすいような環境整備にも力を注いだ。

4. 研究成果

国際活動支援班の活動として以下のような具体的な取り組みを進めた。

人事交流の国際展開として3D活性サイト科学を基盤とした日本の強い科学技術を世界に広めることを目標に、国内若手研究者の中長期海外派遣を通じた人材育成や本領域の概念と意義について深く理解する研究者コミュニティの海外開拓を行った。

- (1) 本新学術領域が主催する海外での国際ワークショップ(2015年ドイツ、2016年スイス、2017年スウェーデン、2019年イギリス)や共催した国際学会に多くの若手研究者・学生を派遣し、成果発表および海外研究者との積極的な交流経験の場を提供した。特に最終年度に開催した英日本大使館と学術振興会欧州支局の支援を得た国際ワークショップには、日英3D活性サイト研究者が一堂に会し、継続した共同研究計画が語られる場となった。若手研究者に加え3名の学生が参加し、特に日本の若い人材が今後この分野を切り拓いていく潜在性を強く印象付けることができた。
- (2) 共同研究の強化が進み、数多くの若手研究者を派遣している。ドイツ Kiel 大に D2 の学生を派遣し液-液界面の構造観測等の研究を推進(2018/8/19-11/12)、米国アルゴンヌ

国立研究所に D1 の学生を派遣し酸化物の界面構造解析の研究を推進し（2017 9/20-12/11）、技術面での交流も深まっている。光電子回折を習得した卒業生（橋本由介氏）が海外拠点である世界最先端の放射光施設スウェーデン MAX-IV にビームラインスタッフとして採用され、現在先方で本領域研究を進展させる装置開発を行っている。



2016年 国際ワークショップ、チューリッヒ

- (3) 本領域の独自の手法である原子立体写真法を中心に円偏光を活用した光電子ホログラフィー技術を松井文彦氏が橋渡しとなりスイス放射光施設を拠点に欧州にノウハウを広めた（2013-2018年に249日滞在）。若手（松井文彦氏・スイス放射光施設 M. Muntwiler氏）が呼掛け人となり国際ワークショップ（2016年）をチューリッヒにて開催した。松井はその後スイス放射光施設光電子回折ビームライン次期計画策定委員会に要請されて参画している。
- (4) ハンガリーとの継続的な人事交流（Toth氏、松田博之氏）を基礎とした新規光電子ホログラフィー装置の共同開発プロジェクト、ボルドー大との第一原理大規模シミュレーションによるナノ触媒機能解明の共同研究、マールブルク大との共同研究とメルカトル・フェローを通じた人事交流など多彩な国際交流活動が展開された。
- (5) 海外からの若手招致も積極的に行っている。大規模計算のためにバンドン工科大学の大学院生が1名 2019/01/09から02/08まで一ヶ月ほど滞在、また、CMDワークショップを開催し、日越大学から3名、カントー大学から2名、フエ大学から1名が短期滞在中 RSPACE 伝導計算プログラムの習得と伝導計算の実習を行った。

5. 主な発表論文等

（研究代表者は下線）

〔雑誌論文〕（総件数 415 件）

- (1) Artoni Kevin R. Ang, Tomohiro Matsushita, Yusuke Hashimoto, Naohisa Happo, Yuta Yamamoto, Masaki Mizuguchi, Ayana Sato-Tomita, Naoya Shibayama, Yuji C. Sasaki, Koji Kimura, Munetaka Taguchi, Hiroshi Daimon, and Kouichi Hayashi, Direct Imaging of Valence - Sensitive X - Ray Fluorescence Holograms of Fe₃O₄, Phys. Status Solidi B, 査読有, 255, 2018, 1800100-1-8. DOI:10.1002/pssb.201800100
- (2) Fumihiko Matsui, Tomohiro Matsushita, and Hiroshi Daimon, Holographic Reconstruction of Photoelectron Diffraction and Its Circular Dichroism for Local Structure Probing, Journal of the Physical Society of Japan, 査読有, 2018, 87, 061004-1-11. DOI:10.7566/JPSJ.87.061004
- (3) Shinya Hosokawa, Jens Rudiger Stellhorn, Development of anomalous x-ray scattering for partial structure studies of random systems, Physics Reports of Kumamoto University, 査読無, 14(2), 2017, 53-60. <http://hdl.handle.net/2298/37301>

〔学会発表〕（総件数 203 件）

- (1) Analysis of 3D Atomic Arrangement of Active-site by Photoelectron and Other Atomic-resolution Holographies (Invited), Hiroshi Daimon, TASPEC2018, 2018
- (2) 3D Atomic Arrangement around Active-site Atoms by Atomic-resolution Holography (Invited), Hiroshi Daimon, Seminar at North University of China, 2018
- (3) 3D atomic arrangement analysis around chemical-state selected atoms by atomic-resolution holography using display analyzer (Invited), Hiroshi Daimon, IUPAC Workshop, 2018
- (4) 3D Atomic Arrangement around Active-site Atoms by Atomic-resolution Photoelectron Holography (Invited), Hiroshi Daimon, 2nd FRIMS International Symposium at NITech, Japan, 2018
- (5) 3D Imaging of atomic arrangement around specific atoms using atomic-resolution stereography and holography (Plenary), Hiroshi Daimon, 2017 ASEAN Conference on Advanced Functional Materials and Nanotechnology, 2017

- (6) Direct 3D atomic arrangement analysis by atomic resolution holography and stereography (Invited), Hiroshi Daimon, ECASIA'17, 2017
- (7) Imaging 3D Atomic Structure Around Specific Atoms Using Atomic-resolution Holography” (Invited), Hiroshi Daimon, NSRRC User's meeting & Workshop, 2017
- (8) 3D local structure science of active-site by atomic-resolution stereography and holography (Plenary), Hiroshi Daimon, EM-NANO2017, 2017

〔図書〕 (計 3 件)

- (1) Hiroshi Daimon, Yuji C. Sasaki, World Scientific Pub Co Inc, 3D Local Structure and Functionality Design of Materials, 2019, 209
- (2) Wolf-Christian Pilgrim, Shinya Hosokawa, Koichi Hayashi, Pawel Korecki, Rademann Klaus, Zeitschrift fur Physikalische Chemie, Element Specific Structure Determination in Materials on Nanometer and Sub-Nanometer Scales using modern X-Ray and Neutron Techniques, 2016, 146
- (3) T. Fukumura, Wiley, Spintronics for Next Generation Innovative Devices, 2015, 280

〔産業財産権〕

○出願状況 (計 1 件)

- (1) 名称：減速比可変球面収差補正静電レンズ、広角エネルギーアナライザ、及び、二次元電子分光装置
発明者：松田博之、大門寛、トス ラスロ
権利者：同上
種類：特許
番号：特願 2018-091020
出願年：2018 年
国内外の別： 国内

○取得状況 (計 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年：
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

- (1) ホームページ等
3D Active-Site Science
<http://www.en.3d-activesite.jp/>
- (2) Y o u T u b e 新学術領域研究「3D 活性サイト科学」
<https://www.youtube.com/channel/UChw9VgK5N5Lx702hrj6QzBA>

6. 研究組織

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。

6. 研究組織

(1) 研究分担者

研究分担者氏名：佐々木 裕次

ローマ字氏名：SASAKI, Yuji

所属研究機関名：東京大学

部局名：大学院新領域創成科学研究科

職名：教授

研究者番号（8桁）：30344401

研究分担者氏名：野村 琴広

ローマ字氏名：NOMURA, Kotohiro

所属研究機関名：首都大学東京

部局名：理学研究科

職名：教授

研究者番号（8桁）：20304165

研究分担者氏名：林 好一

ローマ字氏名：HAYASHI, Koichi

所属研究機関名：名古屋工業大学

部局名：工学（系）研究科（研究院）

職名：教授

研究者番号（8桁）：20283632

研究分担者氏名：木下 豊彦

ローマ字氏名：KINOSHITA, Toyohiko

所属研究機関名：公益財団法人高輝度光科学研究センター

部局名：利用研究促進部門

職名：主席研究員

研究者番号（8桁）：60202040

研究分担者氏名：若林 裕助

ローマ字氏名：WAKABAYASHI, Yusuke

所属研究機関名：大阪大学

部局名：基礎工学研究科

職名：准教授

研究者番号（8桁）：40334205

様式 F-19-1

研究分担者氏名：細川 伸也
ローマ字氏名：HOSOKAWA, Shinya
所属研究機関名：熊本大学
部局名：大学院先端科学研究部（理）
職名：教授
研究者番号（8桁）：30183601

研究分担者氏名：松井 文彦
ローマ字氏名：MATSUI, Fumihiko
所属研究機関名：分子科学研究所
部局名：極端紫外光研究施設
職名：主任研究員
研究者番号（8桁）：60324977

研究分担者氏名：筒井 一生
ローマ字氏名：TSUTSUI, Kazuo
所属研究機関名：東京工業大学
部局名：科学技術創成研究院
職名：教授
研究者番号（8桁）：60188589

研究分担者氏名：福村 知昭
ローマ字氏名：FUKUMURA, Tomoaki
所属研究機関名：東北大学
部局名：材料科学高等研究所
職名：教授
研究者番号（8桁）：90333880

研究分担者氏名：森川 良忠
ローマ字氏名：MORIKAWA, Yoshitada
所属研究機関名：大阪大学
部局名：工学研究科
職名：教授
研究者番号（8桁）：80358184

様式 F-19-1

研究分担者氏名：小林 伸彦

ローマ字氏名：KOBAYASHI, Nobuhiko

所属研究機関名：筑波大学

部局名：数理物質系

職名：准教授

研究者番号 (8桁)：10311341

研究分担者氏名：郷原 一寿

ローマ字氏名：GOHARA, Kazutoshi

所属研究機関名：北海道大学

部局名：工学研究院

職名：教授

研究者番号 (8桁)：40153746

研究分担者氏名：山田 容子

ローマ字氏名：YAMADA, Hiroko

所属研究機関名：奈良先端科学技術大学院大学

部局名：先端科学技術研究科

職名：教授

研究者番号 (8桁)：20372724

研究分担者氏名：松下 智裕

ローマ字氏名：MATSUSHITA, Tomohiro

所属研究機関名：公益財団法人高輝度光科学研究センター

部局名：情報処理推進室

職名：室長・主席研究員

研究者番号 (8桁)：10373523

研究分担者氏名：鷹野 優

ローマ字氏名：TAKANO, Yu

所属研究機関名：広島市立大学

部局名：情報科学研究科

職名：教授

研究者番号 (8桁)：30403017

(2) 研究協力者

研究協力者氏名：

ローマ字氏名：