

令和 5 年 5 月 30 日現在

機関番号：12601

研究種目：新学術領域研究（研究領域提案型）

研究期間：2018～2022

課題番号：18H05519

研究課題名（和文）水素の先端計算による水素機能の高精度予測

研究課題名（英文）High precision prediction of hydrogen function by advanced simulations

研究代表者

常行 真司（Tsuneyuki, Shinji）

東京大学・大学院理学系研究科（理学部）・教授

研究者番号：90197749

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 151,170,000円

研究成果の概要（和文）：観測の難しい水素を含む物質の構造や物性を明らかにするため、限られた実験データを利用して構造シミュレーションを加速するデータ同化構造探索手法や、原子核の量子効果を定量的に評価できる高効率・高機能な経路積分分子動力学法など、各種の第一原理シミュレーション手法を開発した。これらの手法により、領域内の実験グループと連携して、固体中の水素拡散、ヒドリド拡散、水の構造と電離、水素移動による固体の絶縁体金属転移、水素化触媒への分子吸着構造などの機構解明と予測を行なった。これにより、固体・液体中での水素原子の量子効果や荷電状態の変化が、さまざまな物性の変化をもたらすことを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

物質中での水素原子核の量子効果が、水の電離度など予想以上に多様な形であらわれることが示されたこと、物質内での水素移動にともなう荷電状態の変化がデバイス応用も期待できるほどの大きな物性変化をもたらすことを理論的に裏づけたことは、水素を含む材料の研究全般にインパクトを与える成果である。また限られた実験データを利用して物質の構造解明を可能にするデータ同化構造探索手法は汎用性が高く、高圧実験やコンビナトリアル実験手法と組み合わせてさまざまな材料研究に利用することができる。この成果は、実験とシミュレーションを相補的に利用する材料研究のためのデジタルツイン構築へとつながるものである。

研究成果の概要（英文）：To elucidate the structure and physical properties of hydrogen-containing materials, which are difficult to observe, we have developed various first-principles simulation methods, including data assimilation structure search methods that accelerate structural simulations using limited experimental data, and highly efficient and sophisticated path integral molecular dynamics methods that enable quantitative evaluation of quantum effects of atomic nuclei. Using these methods, in collaboration with experimental groups in this area, we have elucidated the mechanisms of hydrogen functionality, including hydrogen or hydride diffusion in solids, water structure and ionization, insulator-metal transition in solids due to hydrogen transfer, and molecular adsorption structure on hydrogen conversion catalysts. This revealed that quantum effects and changes in the charge state of hydrogen atoms in solids and liquids lead to changes in various physical properties of materials.

研究分野：計算物質科学

キーワード：水素 ハイドロジェノミクス 高次水素機能 第一原理計算 データ同化

### 1. 研究開始当初の背景

最近、従来の延長線上にない水素科学の萌芽が目撃されている。この萌芽の本質は複数の水素機能の相乗効果による“高次水素機能”の誘起であり、これにより個別の水素機能だけでは実現困難な革新的材料・デバイス・反応プロセスの創成が期待される。このような高次水素機能の研究を推進するためには、水素化物の構造と電子状態を解析し機能発現の起源を解明することが不可欠である。しかし、水素は電子を一つしか持たないため観測困難な元素と言われ、多くの分析法は水素に対して本質的に感度を持たない。一方、経験的パラメータを用いない第一原理電子状態計算を用いることで水素化物の水素を含む原子構造と電子状態を決定することが可能である。さらに原子核の量子効果および非断熱効果も含めた第一原理計算と高度なオペランド計測との連携による水素データ同化シミュレーションにより、高効率かつ高精度な構造決定および水素化物の高次水素機能発現機構の解明と新規材料の開発に資することができると期待される。

### 2. 研究の目的

本計画研究では、気象予測等で利用されているデータ同化技術を水素科学に初めて導入し、高精度解析により高次水素機能発現の機構解明・予測技術の創出を行う。A05-1のオペランド計測技術と連携して水素データ同化技術を確立することで、高次水素機能発現の機構解明と新規水素機能材料の予測を行う。これらの研究を通じて領域全体で連携して、変幻自在な水素の性質を人類が“使いこなす”ための指導原理となる新たな水素科学（＝ハイドロジェノミクス）の構築に貢献する。

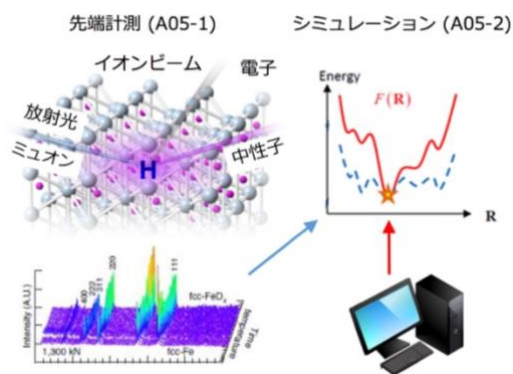


図1 各種先端ビームを用いた解析とデータ同化技術の概念図。

### 3. 研究の方法

本研究領域の達成目標は、多彩な高次水素機能を誘起し、領域全体で連携して革新的材料・デバイス・反応プロセスを創成することであり、本計画研究では水素の先端計算による水素機能の高精度解析により領域の研究推進に貢献する。水素解析技術と A05-1 のオペランド計測技術との密接な連携により水素データ同化技術の確立に向けた整備を進める（ステージ I）。他の計画研究と連携して種々の水素化物への水素データ同化技術の適用と機能解析を進めることで同技術の確立を行い、これまで不可能であった高精度・高効率解析を実現する（図 1）。これらの研究を通じて、高次水素機能を有する新規水素化物や反応プロセス予測のための指導原理の検討を行う（ステージ II）。錯体水素化物のイオン伝導特性解析（A01 との連携）、金属ナノ構造水素化の構造解析や薄膜・ヘテロ界面の光物性の解析（A02 との連携）などを推進し、効率的な物質合成や動作原理解明を行う。また、金属酸水素化物における水素の高速移動、量子拡散の観測（A03 との連携）や酵素・無機合金表面における反応水素種の理論解析（A03、A04 との連携）を行う。これらの解析法を駆使して領域内の各計画研究で開発される最先端水素機能材料の解析を進めることで、材料中水素の変幻自在な有り様を明らかにする。これにより、A05 が率先して新材料開発への指針を示す。さらに他の複数の水素機能との融合により、領域全体で連携して超機能材料を合成するとともに革新的エネルギーデバイスを開発する（ステージ III）。

### 4. 研究成果

#### ステージ I

データ同化構造探索手法は、原子座標から第一原理もしくは精密な原子間ポテンシャルモデルに基づき計算されるエネルギーに、粉末回折データの実験値と計算値の違いを表すペナルティ関数を適切な重みで足し合わせてハイブリッドコスト関数を定義し、このコスト関数を用いて構造シミュレーションを行うことで、構造探索を加速する手法である。従来の回折角度情報に加え、回折強度をそのまま用いる手法を検討し、ハイパーパラメータ依存性の決定方法に関する詳細な検討を行なった。またエネルギーとペナルティを足し合わせるのではなく、独立に取り扱う新しい同時最適化手法 (COM: Combined Optimization Method) を開発した。これにより 2 つ以上

の実験データを容易に利用することが可能になった。また、志賀によって開発された、原子核の量子効果を取り入れた第一原理計算を可能とするオープンソース・ソフトウェア PIMD の高度化と公開を行った。

## ステージ II

A01 と連携し、X 線粉末回折データと古典分子動力学計算を用いた水素データ同化を水素クラスターが無秩序化した  $\text{LiCB}_9\text{H}_{10}$  系に適用し、それらの構造決定に成功した (図 2)。このデータ同化による Li 位置の決定を踏まえて、現在  $\text{CB}_9\text{H}_{10}$  を中心とする水素クラスターの配向も含めたより詳細な解析に向け、各原子位置における安定性等の評価を進めた。

水素化物薄膜: A01、A02、A05-1 と連携し水素化物薄膜の一つである TiHX におけるキャリア反転機構の解明を行った。TiHX は低温では n 型伝導、高温では p 型伝導を示すユニークな水素化物である。第一原理計算により電子状態を詳細に解析したところ、水素量に応じた結晶の構造と対称性の変化によりフェルミ面への電子と正孔の寄与が変わることでキャリア反転が起こることを明らかにした。

A04 と連携し、水素キャリアとしてのギ酸分子について、触媒である銅表面上における吸着状態と脱水素化反応の素過程の解明を行った。

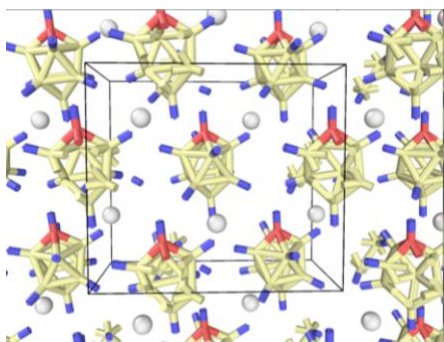


図 2 X 線粉末回折データと分子動力学シミュレーションを用いた水素データ同化により決定された  $\text{LiCB}_9\text{H}_{10}$  の原子構造。

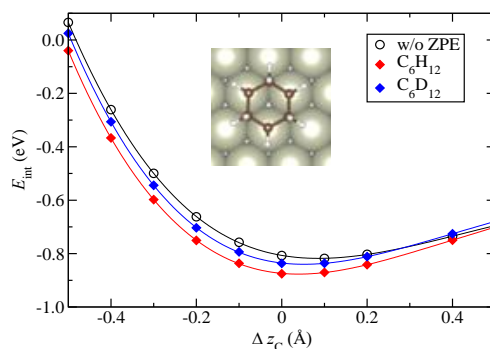


図 3 ロジウム(111)表面に吸着したシクロヘキサンの相互作用エネルギー。ゼロ点振動を考慮することで同位体効果を再現することに成功した。

水素同位体効果: ロジウム表面上に吸着したシクロヘキサン ( $\text{C}_6\text{H}_{12}$ ) は顕著な同位体効果を示すことが分かっている。A04 および国際共同研究を実施し、静的および第一原理経路積分分子動力学シミュレーションを実行し、H 体が D 体より強く基板と相互作用するという同位体効果の再現に成功した (図 3)。分子吸着による C-H ボンドのソフト化が同位体効果の起源であることを明らかにした。

A05-2 内において連携研究を実施し、白金吸着水素について密度汎関数を越える高精度全エネルギー計算法を利用して白金表面上における水素の吸着位置の再検討を行った。さらに PIMD を用いた第一原理経路積分分子動力学シミュレーションを実行し、白金吸着水素における量子多体効果の存在を明らかにした。また A05-1 と共同で、アモルファス氷のミューオン存在状態の計算、水の計算と中性子実験の比較を進めた。

## ステージ III

データ同化構造探索手法において、粉末回折実験データの強度を直接用いる相関関数型ペナルティー関数を用いることで、実験データが大きなノイズを含む場合にも結晶構造探索が可能であることを示し、手法の汎用性・実用性が確認された。

相関関数型ペナルティー関数は、回折実験データが明瞭なピーク構造を持たない場合にも適用することができる、そこで本手法を構造緩和に時間のかかるアモルファス ( $\text{SiO}_2$  および  $\text{H}_2\text{O}$ ) に応用し、低波数側のみの回折実験データから、実験データとの一致の良い、中距離秩序の発展した信頼性の高いアモルファス構造モデルが短時間のシミュレーションで作成できることを示した (図 4)。プログラムは GitHub で公開した。A05-1 と連携し、メタノールやエチレングリコールなど、緩和の遅い分子性液体にも応用を開始して、その有用性が確認されている。

最終年度には、高圧実験で得られた未知の水素化物超伝導体の構造決定を目指して、実験データから格子定数すら推定困難な場合にも使える結晶のデータ同化構造探索手法を開発した。簡単な既知物質のテスト計算により、格子定数の事前推定なしに低角側のピーク情報のみから正



しい結晶構造が得られるだけでなく、複相の回折が混在する場合には多結晶体が得られ(図5)、複相同時に構造推定が可能になることを実証した。

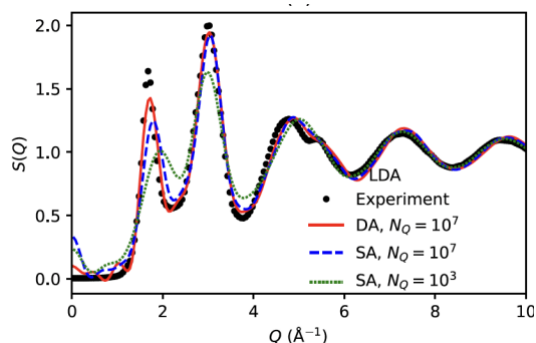


図4 低密度アモルファス氷(H<sub>2</sub>O)の S(Q)。データ同化(DA)は通常の徐冷法(SA)にくらべて実験(黒丸)の定波数側ピークをより良く再現する。

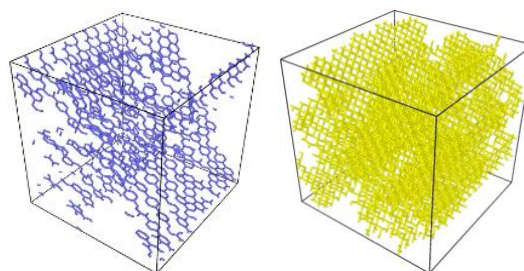


図5 新しいデータ同化構造探索手法で得られた炭素の多結晶体。結晶構造に関する先見知を一切用いず、クラスタリング手法により、グラファイト(左)とダイヤモンド(右)に分類した。

第一原理経路積分計算を用いて水素の量子効果を取り入れ、水溶液における酸解離定数を非経験的計算で正しく評価することに初めて成功した。古典論では水の自己解離定数 pK<sub>w</sub> を過大評価する問題が知られていたが、水素の量子ゆらぎは水分子の解離を大きく促進し、pK<sub>w</sub> を4程度下げる効果があることを見出し、実験と定量的に良く一致する結果を得た。また重水の pK<sub>w</sub> が軽水のそれよりも高い理由も説明することができた。この研究を通じて、酸・塩基性の基本的指標である酸解離定数の精緻な予測において、水素の量子効果の考慮が不可欠であることが明らかとなった。さらに温度や密度の異なる条件下での水の構造を調べた結果、核量子効果が高温でも無視できず、亜臨界・超臨界状態でも水の分子内構造や近接水分子間の水素結合構造に影響することがわかった。

同じく第一原理経路積分計算を用いて、金属格子間水素の量子拡散に関する研究を行った。計算をより高効率で行うため、機械学習ポテンシャルで計算を加速する技術や、非調和フォノン計算を可能にする新たな半古典論を確立した。面心立方格子金属の Pd, Al, Cu, Al、体心立方格子金属の Nb, Fe, W における軽水素、重水素の拡散係数を系統的に評価した結果、広い温度範囲において信頼性ある実験と優れた一致を得た。水素拡散現象では核量子効果(零点振動、トンネル効果)が重要な役割を果たし、面心立方格子金属においては高温での動的効果(再交差など)が無視できないことがわかった。

金属上に吸着したメタン分子における核の量子効果を擬調和近似の範囲で種々の金属表面上で系統的に検討し、吸着の強さに応じた水素の同位体効果があることを明らかにした。逆同位体効果は水素-炭素結合長の伸長、すなわちソフト化に起因していることを明らかにした。白金ステップ表面におけるメタン分子の吸着状態を解析し、その吸着構造と振動状態を定量的に特定することに成功した(図7)。

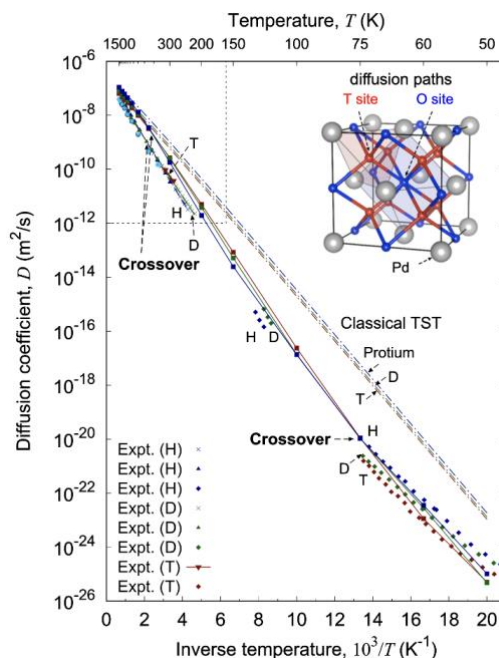


図6 Pd中のH, D, Tの拡散係数。量子効果を取り入れた計算結果(実線)は実験データ(シンボル)を精度良く再現する。

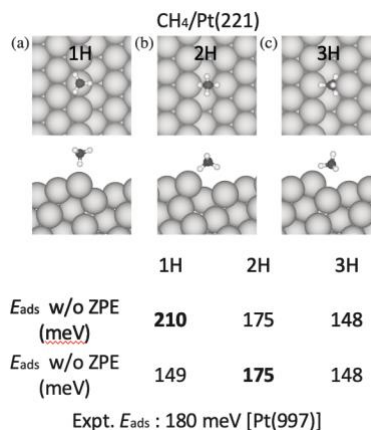


図7 Pt(221)表面へのメタン分子吸着状態と零点振動エネルギー

水素キャリアの候補の一つであるギ酸分子 ( $\text{HCOOH}$ ) は金属表面上で凝集体を形成し昇温により脱水素化しホルメイト ( $\text{HCOO}$ ) となり、昇温する温度に依存した  $\text{HCOOH-HCOO}$  複合体超構造を形成する。しかしながらそれらの構造は決定されていなかった。走査型トンネル顕微鏡、非接触原子間力顕微鏡および DFT 計算により銅(111)表面上に形成された  $\text{HCOOH}$  および  $\text{HCOOH-HCOO}$  複合体の凝集体超構造の決定に成功した。

また新しい水素貯蔵物質として最近合成されたホウ化水素 (HB) ナノシートについて、その水分子に対する化学的安定性を評価・確認し、その安定性の起源を電子状態解析から明らかにした。さらに二酸化炭素のメタン・エタンへの転換機構解明に向けて、二酸化炭素の吸着状態を特定した (図 8)。

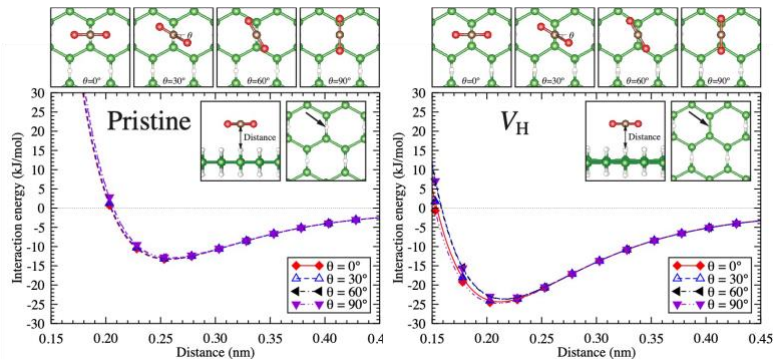


図 8 ホウ化水素シートへの  $\text{CO}_2$  吸着構造。右のように、水素欠陥があると吸着エネルギーが増大する。

水素ドープで電子状態が変わる  $\text{NdNiO}_3$  で、水素原子の拡散特性および歪みが拡散に与える影響を明らかにした。また  $\text{SmNiO}_3$  における濃度に依存した詳細な水素原子位置と絶縁体転移の起源を明らかにした。

実験グループ A02 が薄膜合成に成功した、光で金属化するイットリウム酸水素化物の結晶構造と電子状態について、水素データ同化手法と第一原理計算を用いて調べ、金属化がイットリウム格子の八面体格子間サイトを占める水素原子の移動と電荷状態の変化に由来することを示した。またいくつかの水素化物の超伝導転移に関する計算を行い、 $\text{ATiO}_2\text{H}$  (A はアルカリ金属) では少量ホールドープ領域において分極と超伝導の共存相が安定化することを提案した。

A03-2 班の小林グループと共同で  $\text{BaLiHO}$  ヒドリド伝導体の超イオン導電体としての機能性を調べた。実験から推定された構造に基づき第一原理分子動力学シミュレーションを行い、高温相において H が  $\text{Li}^+$  と相関しながら拡散する様子(協奏的拡散)を捉えた。ヒドリド拡散の詳細な解析により、Ba 空孔や H 空孔を通して H が高速に拡散することや、H-の集団運動が  $\text{Li}^+$  のゆっくりした運動とカップルして協奏的に起こることを示した。この結果はマキシマムエントロピー法による原子密度の実験をよく説明していることも分かった。

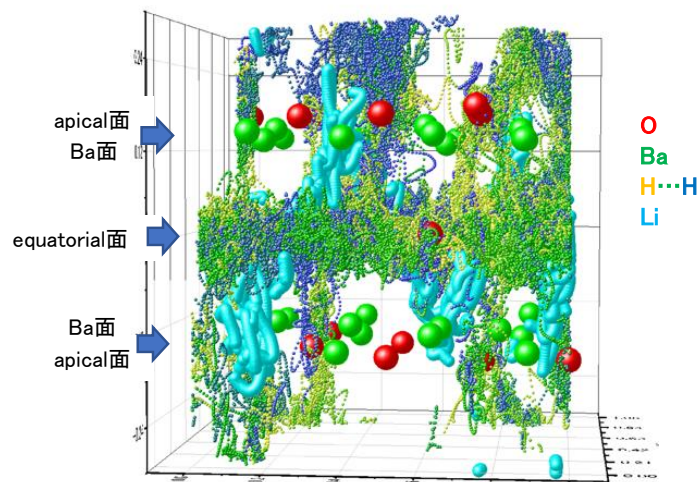


図 9 超イオン導電体  $\text{Ba}_{1.75}\text{LiH}_{2.7}\text{O}_{0.9}$  (BLHO) 中のヒドリドのステレオスコープ像 (第一原理分子動力学計算より)。ヒドリドイオン毎に色分けした小球でトラジェクトリーを示すことにより、equatorial 平面内で起こる拡散と apical 面を通して起こる拡散成分があり、それぞれ H 空孔と Ba 空孔により高速化される様子が明らかになった。大きな赤球と緑球はそれぞれ酸素原子、Ba 原子を示す。水色はヒドリドと連動する Li 原子のトラジェクトリー。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計30件（うち査読付論文 30件 / うち国際共著 11件 / うちオープンアクセス 9件）

1. 著者名 K. Tsutsumi, Y. Hizume, M. Kawamura, R. Akashi, S. Tsuneyuki	4. 巻 102
2. 論文標題 Effect of spin fluctuations on superconductivity in V and Nb: A first-principles study	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physica Review B	6. 最初と最後の頁 214515-1-10
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.102.214515	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 I. A. Troyan, D. V. Semenov, A. G. Kvashnin, A. V. Sadakov, O. A. Sobolevskiy, V. M. Pudalov, A. G. Ivanova, V. B. Prakapenka, E. Greenberg, A. G. Gavriliuk, I. S. Lyubutin, V. V. Struzhkin, A. Bergara, I. Errea, R. Bianco, M. Calandra, F. Mauri, L. Monacelli, R. Akashi, A. R. Oganov	4. 巻 33
2. 論文標題 Anomalous High Temperature Superconductivity in YH6	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Advanced Materials	6. 最初と最後の頁 2006832-1-10
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/adma.202006832	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 濱田幾太郎、常行真司	4. 巻 56
2. 論文標題 実験とシミュレーションのデータ同化に基づく効率的結晶構造決定	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 セラミックス	6. 最初と最後の頁 100-103
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 常行真司	4. 巻 60
2. 論文標題 水素の先端計算による水素機能の高精度解析	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 あたりあ	6. 最初と最後の頁 176-180
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Y. Nagai, M. Okumura, K. Kobayashi, M. Shiga	4. 巻 102
2. 論文標題 Self-learning hybrid Monte Carlo: A first principles approach	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B (Rapid Communication)	6. 最初と最後の頁 41124-1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.102.041124	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 T. Kondo, T. Sasaki, S. Ruiz-Barragan, J. Ribas-Arino, M. Shiga	4. 巻 42
2. 論文標題 Refined metadynamics through canonical sampling using time invariant bias potential: A study of polyalcohol dehydration in hot acidic solutions	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Computational Chemistry	6. 最初と最後の頁 156-165
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/jcc.26443	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 君塚肇, 尾方成信, 志賀基之	4. 巻 75
2. 論文標題 最近の研究から「経路積分法で探る金属中の水素の拡散メカニズム」	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 日本物理学会誌	6. 最初と最後の頁 484-490
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Y. Noguchi, M. Hiyama, M. Shiga, O. Sugino, H. Akiyama	4. 巻 153
2. 論文標題 Quantum-Mechanical Hydration Plays Critical Role in the Stability of Firefly Oxyluciferin Isomers: State-of-the-art Calculations of the Excited States	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 201103-1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0031356	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 B. Thomsen, M. Shiga	4. 巻 154
2. 論文標題 Nuclear quantum effects on autoionization of water isotopologs studied by ab initio path integral molecular dynamics	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 084117-1-10
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0040791	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 A. H. Basher, I. Hamada, and S. Hamaguchi	4. 巻 59
2. 論文標題 Self-limiting processes in thermal atomic layer etching of nickel by hexafluoroacetylacetone	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Jpn J. Appl. Phys.	6. 最初と最後の頁 90905-1-3
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1347-4065/aba9a7	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 R. Shimizu, Y. Sasahara, I. Hamada, H. Oguchi, S. Ogura, T. Shirasawa, M. Kitamura, K. Horiba, H. Kumigashira, S. Orimo, K. Fukutani, and T. Hitosugi	4. 巻 2
2. 論文標題 Polarity reversal of the charge carrier in tetragonal TiHx (x=1.6-2.0) at low temperatures	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Phys. Rev. Research	6. 最初と最後の頁 033467-1-9
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevResearch.2.033467	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 A. Shiotari, I. Hamada, T. Kakae, S. Mori, T. Okujima, H. Uno, H. Sakaguchi, Y. Hamamoto, Y. Morikawa, and Y. Sugimoto	4. 巻 20
2. 論文標題 Manipulable Metal Catalyst for Nanographene Synthesis	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Nano Lett.	6. 最初と最後の頁 8389-8345
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.nanolett.0c03510	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -



1. 著者名 K. Fidanyan, I. Hamada, and M. Rossi	4. 巻 4
2. 論文標題 Quantum nuclei at Weakly Bonded Interfaces: The Case of Cyclohexane on Rh(111)	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Adv. Theory Simul.	6. 最初と最後の頁 2000241-1-10
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/adts.202000241	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 A. Shiotari, S. E. M. Putra, Y. Shiozawa, Y. Hamamoto, K. Inagaki, Y. Morikawa Y. Sugimoto, J. Yoshinobu, and I. Hamada	4. 巻 2021
2. 論文標題 Role of intermolecular interactions in catalytic reaction of formic acid on Cu(111)	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Small	6. 最初と最後の頁 2008010-1-10
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/smll.202008010	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Adachi Daiki, Tsujimoto Naoto, Akashi Ryosuke, Todo Synge, Tsuneyuki Shinji	4. 巻 241
2. 論文標題 Search for common minima in joint optimization of multiple cost functions	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Computer Physics Communications	6. 最初と最後の頁 92 ~ 97
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cpc.2019.02.004	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 藤堂眞治, 常行真司	4. 巻 62
2. 論文標題 X線回折実験とシミュレーションのデータ同化による 結晶構造解析	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 日本結晶学会誌	6. 最初と最後の頁 51 ~ 55
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.5940/jcrsj.62.51	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Putra Septia Eka Marsha, Muttaqien Fahdzi, Hamamoto Yuji, Inagaki Kouji, Hamada Ikutaro, Morikawa Yoshitada	4. 巻 150
2. 論文標題 Van der Waals density functional study of formic acid adsorption and decomposition on Cu(111)	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 The Journal of Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 154707 ~ 154707
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5087420	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 Quan Jiamei, Muttaqien Fahdzi, Kondo Takahiro, Kozarashi Taijun, Mogi Tomoyasu, Imabayashi Takumi, Hamamoto Yuji, Inagaki Kouji, Hamada Ikutaro, Morikawa Yoshitada, Nakamura Junji	4. 巻 11
2. 論文標題 Vibration-driven reaction of CO <sub>2</sub> on Cu surfaces via Eley-Rideal-type mechanism	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Nature Chemistry	6. 最初と最後の頁 722 ~ 729
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41557-019-0282-1	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Wella Sasfan Arman, Hamamoto Yuji, Iskandar Ferry, Suprijadi, Morikawa Yoshitada, Hamada Ikutaro	4. 巻 152
2. 論文標題 Atomic and molecular adsorption on single platinum atom at the graphene edge: A density functional theory study	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 The Journal of Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 104707 ~ 104707
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0002902	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Yanagisawa Susumu, Hamada Ikutaro	4. 巻 -
2. 論文標題 Nanoscale First-Principles Electronic Structure Simulations of Materials Relevant to Organic Electronics	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Theoretical Chemistry for Advanced Nanomaterials - Functional Analysis by Computation and Experiment	6. 最初と最後の頁 89 ~ 131
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/978-981-15-0006-0_4	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kawashima Y., Ishimura K., Shiga M.	4. 巻 150
2. 論文標題 Ab initio quantum mechanics/molecular mechanics method with periodic boundaries employing Ewald summation technique to electron-charge interaction: Treatment of the surface-dipole term	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 The Journal of Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 124103 ~ 124103
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5048451	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kimizuka Hajime, Ogata Shigenobu, Shiga Motoyuki	4. 巻 100
2. 論文標題 Unraveling anomalous isotope effect on hydrogen diffusivities in fcc metals from first principles including nuclear quantum effects	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 24104
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.100.024104	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Noguchi Yoshifumi, Hiyama Miyabi, Shiga Motoyuki, Akiyama Hidefumi, Sugino Osamu	4. 巻 15
2. 論文標題 Photoabsorption Spectra of Aqueous Oxyluciferin Anions Elucidated by Explicit Quantum Solvent	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Chemical Theory and Computation	6. 最初と最後の頁 5474 ~ 5482
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jctc.9b00392	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Noguchi Yoshifumi, Hiyama Miyabi, Shiga Motoyuki, Akiyama Hidefumi, Sugino Osamu	4. 巻 15
2. 論文標題 Photoabsorption Spectra of Aqueous Oxyluciferin Anions Elucidated by Explicit Quantum Solvent	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Chemical Theory and Computation	6. 最初と最後の頁 5474 ~ 5482
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jctc.9b00392	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Yamamoto Yoshiyuki, Kasamatsu Shusuke, Sugino Osamu	4. 巻 123
2. 論文標題 Scaling Relation of Oxygen Reduction Reaction Intermediates at Defective TiO <sub>2</sub> Surfaces	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 19486 ~ 19492
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.9b03398	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Sugino Osamu	4. 巻 89
2. 論文標題 Hydrogen at Electrochemical Interfaces	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 051013 ~ 051013
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.89.051013	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Yan Lei, Sun Yang, Yamamoto Yoshiyuki, Kasamatsu Shusuke, Hamada Ikutaro, Sugino Osamu	4. 巻 149
2. 論文標題 Hydrogen adsorption on Pt(111) revisited from random phase approximation	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 The Journal of Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 164702-1-7
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5050830	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 Shiga Motoyuki	4. 巻 -
2. 論文標題 Path Integral Simulations	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Reference Module in Chemistry, Molecular Sciences and Chemical Engineering	6. 最初と最後の頁 1-20
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/B978-0-12-409547-2.11614-2	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 M. Shiga, M. E. Tuckerman	4. 巻 9
2. 論文標題 Finding Free Energy Landmarks of Chemical Reactions	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Journal of Physical Chemistry Letters	6. 最初と最後の頁 6207-6214
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcllett.8b01958	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 Shusuke Kasamatsu, Osamu Sugino	4. 巻 31
2. 論文標題 Direct coupling of first-principles calculations with replica exchange Monte Carlo sampling of ion disorder in solids	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Journal of Physics	6. 最初と最後の頁 085901 -1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-648X/aaf75c	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

[学会発表] 計31件 (うち招待講演 17件 / うち国際学会 15件)

1. 発表者名 S. Tsuneyuki
2. 発表標題 Crystal structure prediction by assimilating incomplete powder diffraction data
3. 学会等名 Conference on a Fair Data Infrastructure for Materials Genomics (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 S. Tsuneyuki
2. 発表標題 First-principles material simulation and beyond
3. 学会等名 MANA International Symposium 2021 Jointly with ICYS (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年



1. 発表者名 佐藤 龍平, 佐藤 豊人, 吉川 誠司, 本田 孝志, 大友 季哉, 折茂 慎一, 常行 真司:
2. 発表標題 LiCB9H10のLi伝導機構に関する分子動力学計算
3. 学会等名 日本物理学会 第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 常行真司
2. 発表標題 不完全な粉末回折実験データを用いたデータ同化結晶構造探索
3. 学会等名 787th ASRC Seminar, (招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 常行真司
2. 発表標題 計測とシミュレーションの水素データ同化
3. 学会等名 日本物理学会2020年秋季大会シンポジウム (招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 常行真司
2. 発表標題 マテリアルズインフォマティクスの近況について
3. 学会等名 物性研究所研究会「物性科学におけるデータ科学の今と未来」(招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 常行真司
2. 発表標題 計測とシミュレーションの水素データ同化
3. 学会等名 日本化学会第101春季年会 (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 M. Shiga
2. 発表標題 CMD Studies and Special Lecture: Path integral Simulations
3. 学会等名 37th Computational Materials Design Workshop (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 志賀基之
2. 発表標題 階層的並列化された第一原理経路積分計算
3. 学会等名 物性研究所スパコン共同利用・CCMS合同研究会「計算物質科学の新展開2020」(招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 S. Tsuneyuki
2. 発表標題 Crystal Structure Prediction by Assimilating Incomplete Powder Diffraction Data
3. 学会等名 The 18th International Conference on Density Functional Theory and its applications (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 常行真司
2. 発表標題 不完全な実験データを用いたデータ同化結晶構造探索
3. 学会等名 早稲田大学材研オープンセミナー（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 S. Tsuneyuki
2. 発表標題 First-principles material simulation and beyond
3. 学会等名 Materials Research Meeting 2019 (MRM2019)（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 常行真司
2. 発表標題 計算物質科学の立場からの新物質開発について
3. 学会等名 第9回電子光技術シンポジウム「機能性マテリアルの設計と実証 電子・光デバイスのイノベーション開拓に向けて -」（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 佐藤 龍平
2. 発表標題 Y0xHy系のバンド・構造計算及び励起状態構造の推定
3. 学会等名 ハイドロジェノミクス第4回若手育成スクール
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 R. Sato
2. 発表標題 Crystal structure prediction of Li(CB9H10): an example of XRD-data-assimilated molecular dynamic simulation
3. 学会等名 The 22nd Asian Workshop on First-Principles Electronic Structure Calculations ( 国際学会 )
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 R. Sato
2. 発表標題 Crystal Structure Prediction of LiCB9H10 by XRD-data-assimilated Molecular Dynamic Simulation
3. 学会等名 " TIAかけはし " ポスター交流会2019
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 R. Sato
2. 発表標題 Proton conduction on hydrated oxide surface for " electrolyte " of metal/oxide catalyts
3. 学会等名 Materials Research Meeting 2019 (MRM2019) ( 国際学会 )
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 R. Sato
2. 発表標題 Crystal Structure Prediction of Li(CB9H10) by XRD-assisted molecular dynamic simulation
3. 学会等名 "1st International Symposium "Hydrogenomics " combined with 14th International Symposium Hydrogen & Energy" ( 国際学会 )
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 I. Hamada
2. 発表標題 Heterogeneous catalytic reactions from van der Waals density functional
3. 学会等名 1st Intl. Symposium "Hydrogenomics" combined with 14th Int. Symposium "Hydrogen & Energy" (招待講演)(国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 志賀基之
2. 発表標題 水素系の新しい第一原理計算法の開発と応用
3. 学会等名 第2回ハイドロジェノミクス研究会(招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 M. Shiga
2. 発表標題 Nuclear Quantum Effects of Hydrogen in Materials
3. 学会等名 1st International Symposium Hydrogenomics combined with 14th International Symposium Hydrogen & Energy (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 志賀基之
2. 発表標題 自由エネルギー面上の鞍点探索法の開発
3. 学会等名 第22回理論化学討論会
4. 発表年 2019年



1. 発表者名 B. Thomsen
2. 発表標題 Describing Molecular Potential Energy Surfaces Using General Functions
3. 学会等名 第 2 2 回理論化学討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 B. Thomsen
2. 発表標題 Understanding the Broadening of the H904+ Infra-Red Spectrum Through Clustering of Path Integral Molecular Dynamics Trajectories
3. 学会等名 XV INTERNATIONAL WORKSHOP ON QUANTUM REACTIVE SCATTERING (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 近藤友美
2. 発表標題 メタダイナミクス法による高温水中糖アルコール脱水反応機構の解明
3. 学会等名 第 13 回分子科学討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 近藤友美
2. 発表標題 メタダイナミクス法による高温水中糖アルコール脱水反応機構の解明
3. 学会等名 第 33 回分子シミュレーション討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 B. Thomsen
2. 発表標題 Calculating pKa(H2O) and pKa(D2O) using path integral molecular dynamics
3. 学会等名 ハイドロジェノミクス第4回若手育成スクール
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 B. Thomsen
2. 発表標題 Calculating the pKw of subcritical and supercritical H2O and D2O
3. 学会等名 1st International Symposium Hydrogenomics combined with 14th International Symposium Hydrogen & Energy (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 O. Sugino
2. 発表標題 Density Functional Approach to Hydrogen on Electrode
3. 学会等名 Asian workshop on first-principles calculation (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Ikutaro Hamada
2. 発表標題 Toward predictive density functional theory calculations of surfaces and interfaces
3. 学会等名 Game of Materials (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Ikutaro Hamada
2. 発表標題 Image potential state from van der Waals density functional
3. 学会等名 Quantum Simulations: From Chemistry to Materials Science (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計2件

1. 著者名 折茂 慎一、福谷 克之、藤田 健一 (編著)、常行真司、志賀元之、杉野修 (分担執筆)	4. 発行年 2022年
2. 出版社 共立出版	5. 総ページ数 216
3. 書名 “水素”を使いこなすためのサイエンス ハイドロジェノミクス	

1. 著者名 折茂 慎一、福谷 克之、藤田 健一 (編著)、常行真司、志賀元之、杉野修 (分担執筆)	4. 発行年 2023年
2. 出版社 共立出版	5. 総ページ数 304
3. 書名 Hydrogenomics: The Science of Fully Utilizing Hydrogen	

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	志賀 基之  (Shiga Motoyuki)  (40370407)	国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・システム計算科学センター・研究主幹    (82110)	

6. 研究組織（つづき）

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	濱田 幾太郎 (Hamada Ikutaro)  (80419465)	大阪大学・大学院工学研究科・准教授  (14401)	
研究分担者	杉野 修 (Sugino Osamu)  (90361659)	東京大学・物性研究所・教授  (12601)	

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	有田 亮太郎 (Arita Ryotaro)  (12601)	東京大学・先端科学技術研究センター・教授  (12601)	
研究協力者	越智 正之 (Ochi Masayuki)  (14401)	大阪大学・大学院理学研究科・准教授  (14401)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関			
スペイン	バルセロナ大学			
ドイツ	ルール大学			
インド	インド工科大学カンブール校			