

令和 5 年 6 月 12 日現在

機関番号：12612

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2019～2022

課題番号：19K21844

研究課題名（和文）量子チューリングパターンの理論

研究課題名（英文）Theory of Quantum Turing Patterns

研究代表者

伏屋 雄紀（Fuseya, Yuki）

電気通信大学・大学院情報理工学研究科・准教授

研究者番号：00377954

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 5,000,000円

研究成果の概要（和文）：形態形成におけるチューリングの反応拡散理論は、生物学や化学におけるマクロなパターン形成については非常に成功を収めてきました。しかし、原子レベルのスケールにおいてチューリング・パターンが存在するの否かについては、全く未解明でした。本研究では、ビスマス原子1個分の厚さの単原子層がチューリング・パターンを形成することを明らかにしました。三体までの原子間ポテンシャルから構成された微視的有効モデルを基に時間発展方程式を導き、ビスマス単原子層で観測された奇妙な模様がチューリング・パターンであることを解析的にも数値的にも証明しました。これにより、世界最小のチューリング・パターンの発見が確立されました。

研究成果の学術的意義や社会的意義

生物学や化学における従来のチューリング・パターンは、小さくとも数分の1mm程度でした。しかし本研究によって、これまでのスケールより一気に7桁も小さい原子スケールでもチューリング・パターンが発現することが明らかとなりました。今回の発見は、これまで生物学や化学で考えられてきたよりもずっと多くの対象でチューリング理論が成り立つことを強く示唆しています。本成果は、非平衡・非線形現象の研究に新たな方向性をもたらすもので、非常に高い学術的意義があります。また、新しいナノデバイス設計に向けて、オンデマンドでパターンを制御し、作製できる道が拓けたことで、社会的意義も高い成果です。

研究成果の概要（英文）：The reaction-diffusion theory of Turing in morphogenesis has achieved remarkable success in understanding macro-scale pattern formation in biology and chemistry. However, the existence of Turing patterns at the atomic-scale remained unexplored until now. In this study, we have unveiled the formation of Turing patterns in a bismuth monolayer fabricated on an NbSe₂ substrate. By deriving time-evolution equations based on an effective model composed of atomic potentials up to three bodies, we have analytically and numerically proved that the mysterious patterns observed in the bismuth monolayer are indeed Turing patterns. This groundbreaking achievement establishes the discovery of the world's smallest Turing patterns.

研究分野：理論物質科学

キーワード：チューリング・パターン 反応拡散方程式 非平衡非線形現象 ビスマス 原子層 結晶成長 パターン形成 理論物質科学

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、研究者個人に帰属します。

1. 研究開始当初の背景

近年の固体物理学では、センサーやフレキシブルエレクトロニクス、スピントロニクスなど多彩な応用に向けた期待から、ポストグラフェン物質としての原子層の研究が活発に進められている。なかでも、非常に大きなスピン軌道結合を持つビスマスの単原子層は、電流を伴わずにスピン流が生成できる(量子スピンホール状態)可能性が理論的に指摘され、エネルギー散逸を伴わない革新的デバイスの候補として注目を集めている。この潮流の中で2018年、スタンフォード大のKapitulnikのグループが、基板にNbSe₂を用いてビスマス単原子層の合成に成功した。しかし彼らが得たビスマス単原子層の表面には、見たこともないような奇妙な模様が原子スケールで描かれていた[図1.(a), Fang et al., Sci. Adv. 4, eaaq0330 (2018)].

従来の固体物理学の知見に基づけば、このような原子によるパターン形成は、電荷密度波に伴う格子歪み(パイエルスひずみ)と考えるのが最も“常識”的である。しかしその場合、結晶の回転対称性を反映した明瞭な3倍周期が観測されるべきで、いまの場合それは一切観測されていない。これまでの固体物理学の知見では理解出来ない、何か新しい現象が見つかった可能性が高いが、その正体が何であるかは、まだ誰にも分かっていなかった。

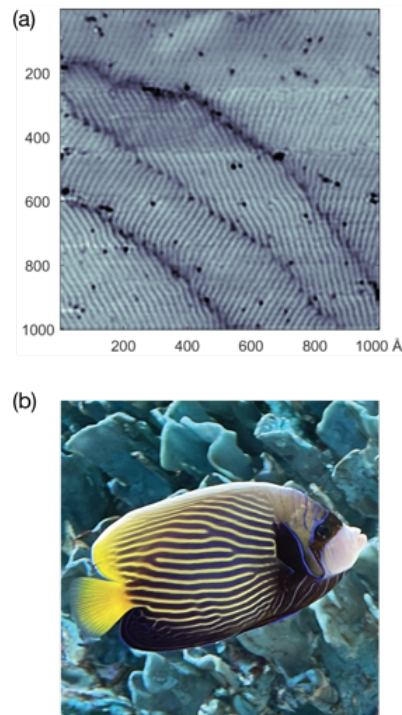


図1. (a) NbSe₂基板上Bi単原子層で見つかった奇妙な模様。
(b) タテジマキンチャクダイ。

2. 研究の目的

ではビスマスの奇妙な模様の起源は何か?我々が注目したのは、その模様と熱帯魚の縞模様との類似性である。図1.(b)はタテジマキンチャクダイの写真である。タテジマキンチャクダイの模様は基本的にストライプであるが、所々に特徴的なY字模様が現れる。タテジマキンチャクダイでは、このY字模様が成長に合わせて変化することが実際に観測され、それが生物におけるチューリング・パターンの決定的な証拠となった[S. Kondo, R. Asai, Nature, 376, 765 (1995)].

チューリング理論にとって極めて重要な意味を持つY字模様とビスマスの模様の類似性をヒントに、我々は

「単原子層におけるチューリング・パターン形成の可能性」

について調べることが目的とした。ただし、模様が似ているといっても、そのスケールは大きく異なる。タテジマキンチャクダイの模様の幅はおよそ1cmであるのに対し、ビスマス単原子層で観測された模様の幅は1nmで、7桁も異なる。さらに、一方はソフトマター、他方はハードマターで、材質も全く異なる。

「はたしてそれほど異なる対象が同じ理論で統一的に説明できるのか?」

これが我々の挑戦する課題である。

チューリング・パターンが現れるには主に3つの条件がある:(1)活性因子と抑制因子が存在し、それぞれが自己触媒作用を持つこと。(2)両者の間に交差触媒作用があること。(3)抑制因子の拡散が活性因子より十分速いこと、である。これらの条件を満たした系が実際にパターンを形成することは、「反応拡散方程式」とよばれる連立微分方程式を解くことで確かめられる。チューリングの反応拡散方程式には、長さスケールに上限も下限もない。よって、チューリング・パターンは如何なる長さスケールで現れてもよいことになる。しかしこれまで生物学や化学において実際に報告されてきたチューリング・パターンは小さくて数分の1mm程度であり、これより小さなスケールの報告はほとんどない。

以上のチューリング理論および反応拡散方程式の従来理解を基に考えると、本当に原子スケールのチューリング・パターンが実現可能なのであれば、

Q1. 何が活性・抑制因子の役割を担っているのか?

Q2. なぜ両者の拡散速度が大きく異なるのか?

Q3. 何がパターンのスケールを決めているのか?

といった疑問が次々に湧いてくる。これらの疑問に一つ一つ答えることが本研究の具体的な目的である。

3. 研究の方法

原子によるチューリング・パターン形成の研究は前例がない。どのようなモデルをどのように解けば良いかについては、研究開始当初、全く見当もつかなかった。従って、研究の方法を確立すること自体が本研究の重要な成果の一つである。よって研究の方法も含めて、研究成果として次節で述べる。

4. 研究成果

(1) 原子間ポテンシャル模型の構築

初めに二体原子間ポテンシャルとして、Bi-Bi 間の弾性ポテンシャルと Bi-Se 間の吸着ポテンシャルを考えた。原子間ポテンシャルは一般にレナード・ジョーンズ型などで表されるが、今の場合、ポテンシャルの極小付近のみを取り出した調和振動子として近似できる。Se 原子は残りの NbSe₂ 基板に強く束縛されているので、Se の原子変位は無視できるほど小さい。よって吸着ポテンシャルは一体ポテンシャルで表される。

通常の金属原子であれば、これら二種類の原子間ポテンシャルで十分なはずである。しかし実際には、二種類だけで長周期のパターンは形成されなかった (図2)。試行錯誤の結果、欠けていたピースの正体は、共有結合に由来する結合角ポテンシャルであると分かった。Bi は半金属であるため、金属結合のみを考えがちであるが、その結晶構造を理解するには、実は共有結合性を十分に考えなければいけない。これは Bi に限らず、他の V 族元素にも共通する性質である。

共有結合性を考慮するには、三体の原子間ポテンシャルを考えれば良い。今の場合、Bi-Bi-Bi 間の結合角に依存する結合角ポテンシャルを導入することで、共有結合性を実効的に取り入れることができる。弾性、吸着ポテンシャルは古典的な力に由来するものであるが、結合角ポテンシャルの起源は共有結合であり、電子の波動関数の形状に由来することから、量子的なポテンシャルといえる。

最終的に、吸着 (一体)、弾性 (二体)、結合角 (三体) ポテンシャルの 3 種の原子間ポテンシャルを考慮して初めて長周期のパターンが現れることが分かった。これが本研究第一の成果である。

(2) 数値シミュレーションによるパターン形成

3つの原子間ポテンシャルを取り込んだ有効ハミルトニアンを構築し、そこからさらに時間発展方程式を導出した。それを数値的に解いた結果を図3に示す。図の明暗は原子位置の高低を表す。初期状態では、原子変位がわずかな乱雑さをもってほぼ均一に分布している。時間とともに系の対称性は自発的に破れ、単一の周期5原子分のストライプが得られる。ドメイン間でストライプは120°を成し、ドメイン間に明瞭な一連のY字模様が現れる。これらの結果は、何れも実験と非常に良く一致する (図4)。

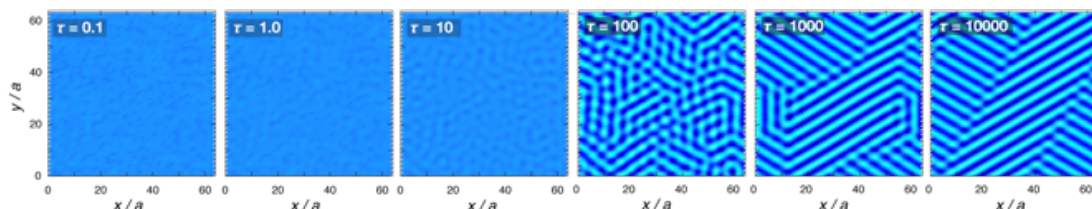


図3. Bi 単原子層のパターン形成にいたる時間発展。明暗は原子位置の高低を表す。

(3) チューリング・パターンであることの証明

実験とよく一致するシミュレーション結果を得たことで、我々の大きな目的の一つは達成された。しかしまだ疑問は残っている。はたして、得られたパターンはチューリング・パターンなのであろうか? 数値シミュレーションの結果は、典型的なチューリング・パターンのふるまいとよく一致する。しかし、我々の時間発展方程式はチューリングの反応拡散方程式とは似ても似つかない形をしている。このままではシミュレーション結果がチューリング・パターンであると結論することは難しい。我々の方程式が数学的にチューリングの反応拡散方程式と等価であることを示す必要がある。

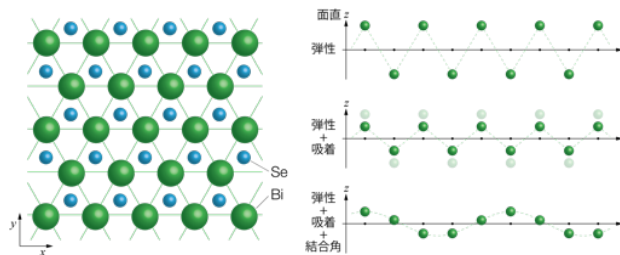


図2. (左) 基板最上面の Se とその上に成膜された Bi 単原子層はそれぞれ六方格子 (三角格子) を形成する。

(右) 弾性・吸着ポテンシャルのみでは長周期のパターンは現れない。結合角ポテンシャルが入って初めてチューリング・パターンが形成される。

結論を先に述べると、我々の時間発展方程式は、実はチューリングの反応拡散方程式と同等の形であることが数理的に証明できる。証明の要点は次の通りである。

反応拡散方程式の第一の特徴は、活性・抑制因子の2要素から構成されることである。一方、我々の時間発展方程式は原子変位の1要素しか含んでいない。よって反応拡散方程式とは質的に異なるかに思える。しかし原子変位はベクトルで表されているため、単一に見える方程式は、実は3成分の連立微分方程式である。原子変位を面直方向と面内方向の2成分に分けて考えると、それは見事に反応拡散方程式に一致する形に書き換えられる。すなわち、面直方向の原子変位が活性因子に、面内方向が抑制因子に対応していたのである（Q1の答え）。これは予想外の対応関係であったが、分かっただけで済めば極めて合理的である。

自己触媒作用と交差触媒作用は主に弾性ポテンシャルが担う。ある原子に向かって両側から水平応力がはたらけば、その原子は面直方向に動くことで弾性エネルギーを下げる。一方、面内方向の原子変位に関しては、両側から反対方向の力がかかっているため、相殺されてしまう。面直方向と面内方向で明確な差異があることから、面直・面内で拡散係数にも差が生じ、チューリング・パターンの発現条件が満たされる（Q2の答え）。

もう一つの重要な点は、拡散項がどこから出てくるかということである。時間発展方程式を変形していくと、原子変位は隣接原子の差分として現れる。これらはそれぞれ微分形に対応しており、離散化された系における拡散項とみなせる。主要な拡散項は結合角ポテンシャルから出てくる。ある原子が周囲の原子よりも突出すればそれを抑えて平坦化するのが結合角ポテンシャルであり、それが拡散項に対応するのは直感的イメージとも一致する。

(4) 様々なチューリング・パターンを創り出す

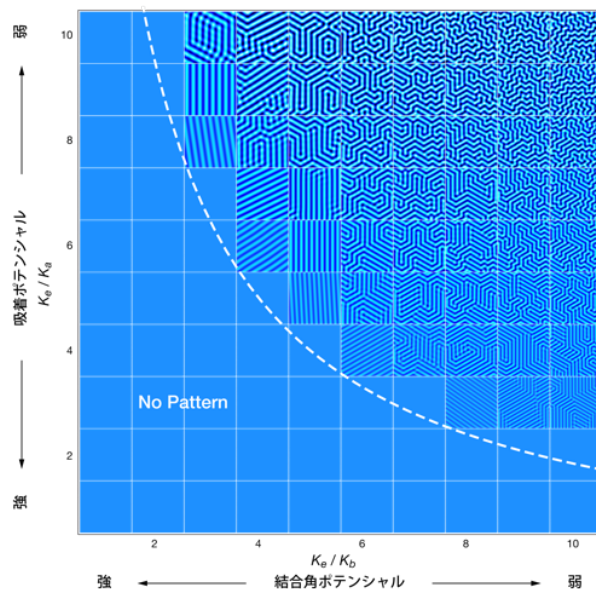


図5. 吸着ポテンシャルと結合角ポテンシャルを変化したときのパターン・ダイアグラム。

(5) 非平衡現象としてのチューリング・パターン

チューリング・パターンはプリゴジンらが提唱する散逸構造の一種で、非平衡（かつ非線形）現象である。チューリング・パターンの本質は、その動的ふるまいに最も顕著に表れる。実際、生物の模様がチューリング・パターンであることは、模様が動的に変化する様子を捉えたことで

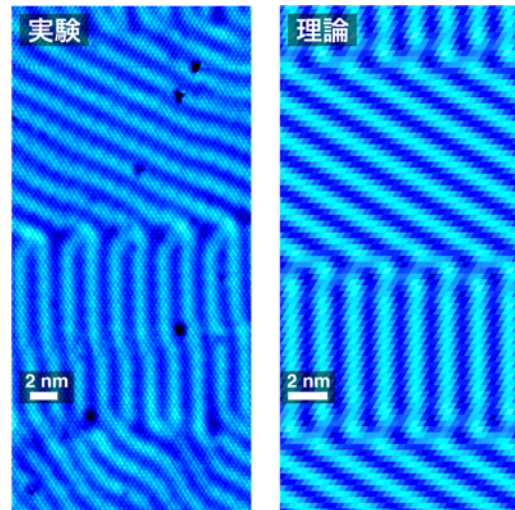


図4. Bi 単原子膜のSTM像と今回の研究によって得られたシミュレーション結果の比較。ストライプ構造やその周期（5原子）が一致するだけでなく、ドメイン構造、Y字模様まで極めて良い一致が得られた。

我々の微視的模型に含まれるパラメーターを変えれば、ストライプ模様以外に多彩なパターンを創り出すことができる。線形安定性解析の結果から、模様の幅は吸着ポテンシャルと結合角ポテンシャルの比（の1/4乗）で決まることが分かった（Q3の答え）。それぞれのポテンシャルによりパターンがどのように変わるかを調べたパターン・ダイアグラムを図5に示した。

そうして得られた理解を基に、パターンの制御法についての知見も得られた。原子層と基板の組合せや、原子層を構成する元素、あるいは成膜条件や環境を変えることにより、パラメーターを調整でき、ストライプやラビリンス型の模様を制御して作製できる可能性がある。将来的には、新しいナノデバイス設計に向けて、オンデマンドでパターンを制御し、作成できる技術に繋がると、高い期待が寄せられている。

決定づけられた。

①創傷治癒 チューリング・パターンの動的性質の一つの重要な結果として、「創傷治癒」が挙げられる。創傷治癒は生物が生命を維持する上で極めて重要な性質で、それは反応拡散方程式によって説明できる。この創傷治癒が、我々の単原子層のパターンでも現れる。図6のように、パターンが形成されたあとに円形の“キズ”をつけ、その後の時間発展を観察した。するとキズはみるみる治癒していき、少し経つと綺麗に完治する。キズの痕跡は一切みられず、元のストライプばかりか、ドメイン構造やY字模様まで再現される。無機の固体であっても、自ら意思を持った生物かのように勝手にキズを治す、驚くべき性質を持つことが分かった。

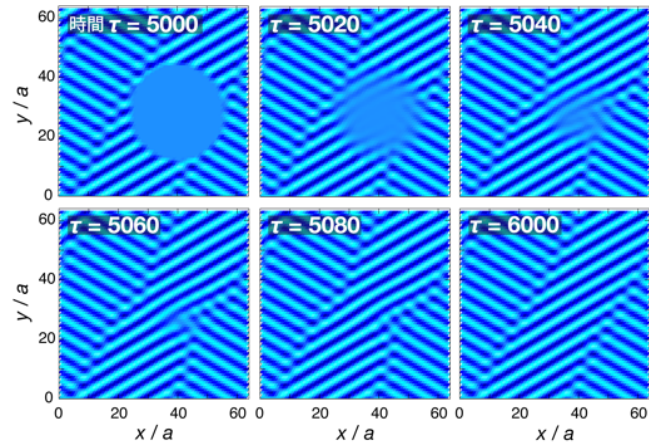


図6. Bi 単原子層のパターン形成後、円形の“キズ”をつけると、あたかも生きているかのようにキズはみるみる癒えていき、もとのパターンが再現される。

②ドメイン制御 さらに、ドメイン構造も制御できることが分かった。近年、 piezoelectric素子を用いた応力デバイスにより、試料に一軸応力を加える方法が頻繁に活用されている。我々の理論では、一軸応力の効果は一方向の格子定数を変えることでシミュレーションできる。そのシミュレーション結果を図7に示す。一軸性の引っ張り応力を加えると、両側のドメインが互いに近づき、ドメインが単一化されることが示された。

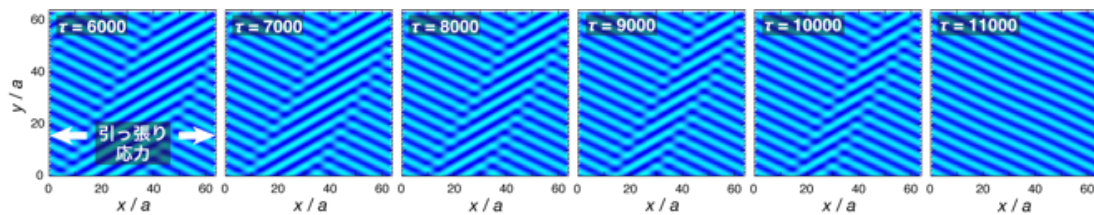


図7. Bi 単原子層のパターン形成後、引っ張り応力を加えると、ドメイン構造が消え、単一ドメインのストライプへと変わる。

まとめ・将来の展望

Bi 単原子膜に現れた模様がチューリング・パターンであったと示したことで、結果として世界最小のチューリング・パターンが発見されたこととなった。これまでのチューリング・パターンは生物学で cm から mm、化学でサブ mm 程度がほとんどであった。これが一気に nm まで7桁も押し下げられた。

今回の発見は、これまで生物学や化学で考えられてきたよりもずっと多くの対象でチューリング理論が成り立つことを意味している。これまでチューリング・パターンが実現する舞台は色素など有機化学物質であったが、これが無機物質にまで広がった。さらに従来のパターンは主に化学物質の濃度によって形成されたが、今回は原子位置（高低差）によって形成されている。物質系の幅が広がっただけでなく、パターンを担う対象の概念も広がっている。本研究で、一見関係のないような時間発展方程式が反応拡散方程式と等価になり得ることが示された。同様の解析に基づき、これまで無関係とされてきた現象が、実はチューリング理論として理解を再構築できる道筋も見えてきた。

さらに本研究で原子スケールでのパターン形成メカニズムへの理解が深まったことで、オンデマンドでパターンを制御し、作成できる可能性もでてきた。チューリング理論を用いた新しいナノデバイス設計に高い期待が寄せられ、本研究の発表後、すでいくつかのナノデバイス関連の論文が出版されている。

本研究が契機となり、非平衡非線形現象の特徴を活かした、原子スケールの自発的な構造形成の新しい学理が切り拓かれ、基礎のみならず応用面でもチューリング理論に係る物質科学の今後の展開が大いに期待される。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Fuseya Yuki, Katsuno Hiroyasu, Behnia Kamran, Kapitulnik Aharon	4. 巻 17
2. 論文標題 Nanoscale Turing patterns in a bismuth monolayer	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Nature Physics	6. 最初と最後の頁 1031 ~ 1036
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41567-021-01288-y	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

〔学会発表〕 計7件（うち招待講演 2件/うち国際学会 2件）

1. 発表者名 伏屋雄紀, 勝野弘康
2. 発表標題 チューリング理論に基づいた原子スケールの自発的パターン形成機構の解明
3. 学会等名 日本結晶成長学会 第51回結晶成長国内会議(招待講演) (招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 勝野弘康
2. 発表標題 データ駆動その場液中 TEM に向けた機械学習の活用
3. 学会等名 日本結晶成長学会 第51回結晶成長国内会議(招待講演) (招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 勝野弘康, 木村勇氣, 山崎智也, 瀧川一学
2. 発表標題 機械学習を用いたLC-TEM観察像の核生成検出による核生成経路の検討
3. 学会等名 日本物理学会 2022年秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 伏屋雄紀, 勝野弘康, Kamran Behnia, Aharon Kapitulnik
2. 発表標題 ナノスケールのチューリング・パターン：単層ビスマスの形態形成
3. 学会等名 日本物理学会 2021年秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Yuki Fuseya, H. Katsuno, K. Behnia, A. Kapitulnik
2. 発表標題 Nanoscale Turing patterns in bismuth monolayer
3. 学会等名 International Conference on Strongly Correlated Electron Systems (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 伏屋雄紀, 勝野弘康, Kamran Behnia, Aharon Kapitulnik
2. 発表標題 ナノスケールのチューリング・パターン：単層ビスマスの形態形成
3. 学会等名 日本結晶成長学会 JCCG-50
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Y. Fuseya, H. Katsuno, K. Behnia, A. Kapitulnik
2. 発表標題 Nanoscale Turing patterns in bismuth monolayer
3. 学会等名 The 9th International Symposium on Surface Science (ISSS-9) (国際学会)
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

本研究の成果は、世界の様々なメディアで取り上げられました。

"Tiniest Turing patterns found in atomically thin bismuth" (Chemistry World, 英国王立化学会誌)
<https://www.chemistryworld.com/news/tiniest-turing-patterns-found-in-atomically-thin-bismuth/4013979.article>

"Des atomes qui se mettent en bandes" (Pour la Science, 仏一般向け科学雑誌)
<https://www.cairn.info/magazine-pour-la-science-2021-9-page-14.htm>

"Turing Patterns Turn Up in a Tiny Crystal" (Quanta Magazine)
<https://www.quantamagazine.org/physicists-spot-turing-patterns-in-a-tiny-crystal-20210810/>

"Exploring Turing Patterns at Atomic Levels" (SciTube)
<https://www.youtube.com/watch?v=Y4y-UERkr8o&t=29s>

「原子膜に「しま模様」、電通大など原理解明 超薄膜、歩留まりよく作製」(日刊工業新聞)
<https://www.nikkan.co.jp/articles/view/00604979>

「熱帯魚の模様は原子の世界にもあった!？」(子供の科学)
<https://www.kodomonokagaku.com/read/26857/>

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	勝野 弘康 (Katsuno Hiroyasu) (70377927)	北海道大学・低温科学研究所・博士研究員 (10101)	

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			
フランス	ESPCI, PSL Research University			
米国	Stanford University			