

---

# 機能コアの材料科学

---

領域略称名：機能コア科学

領域番号：6103

令和元年度～令和5年度  
科学研究費助成事業（科学研究費補助金）  
（新学術領域研究（研究領域提案型））  
研究成果報告書

令和6年6月

領域代表者 松永 克志

名古屋大学・工学研究科・教授

## はしがき

人類文明の発生以来、環境エネルギー・社会基盤・情報通信などの各分野で新材料が開発され、文明社会の発展を支えてきた。近年、社会の複雑化・多様化が急激に進み、材料の高性能化・高機能化・高信頼性化に対する要求がますます高くなっている。材料の基礎から応用までをカバーする材料科学は、その期待に応えるための欠かせない学問分野となっている。しかし現在、材料科学にもとづく新材料開発には停滞感が漂っている。経験やノウハウにもとづき行われてきた、伝統的な経験知にもとづく材料開発に限界が来ているためである。この状況を打破するには、既存の材料・プロセスの延長線上でない、幅広い学問分野を融合した、新しい観点に立った学問体系の構築が切望される。

従来の材料科学研究では、材料内部の「バルク領域」の平均的構造と巨視的特性を主たる対象としていた。平衡状態図や自由エネルギー、結晶構造等の経験的データベースにもとづき、材料開発が行われてきたためである。これに対し、近年、電子顕微鏡技術や計算科学が著しく発展し、材料の構造や安定性を原子レベルから高精度に解析することが可能となった。その結果、粒界・転位などの結晶中の「格子不整合領域」（結晶欠陥）が「バルク」と全く異なる原子配列をもち、様々な材料現象や特性と密接に関係していることが明らかにされてきた。しかし、偶発的な成功例は別にして、結晶欠陥を高度に制御して材料特性を飛躍的に向上させた、革新的な材料開発につながった、という例はほとんど存在しない。この原因は、従来研究の多くが個別の結晶欠陥の構造解析を行った研究であり、結晶欠陥の原子レベル構造と局所特性の関係に対する系統的理解が確立されていないためである。

格子不整合領域にもとづく新しい材料科学を構築し、革新的な新材料機能創出につなげていくには、特定の結晶欠陥の原子レベル構造解析に留まるのではなく、結晶欠陥のナノ構造を系統的に制御し、さらに機能の起源まで掘り下げた研究を行う必要がある。結晶欠陥の機能は、そのバルクと異なる原子配列と局所的な化学組成に加え、そこに局在した電子、電子と相互作用する電磁場、光子、フォノン等によって形成される量子場を起源とする。機能発現の源となる格子不整合領域に創り出されるこの量子場こそ、本領域の研究対象とする「機能コア」である。本領域は、機能コア概念に基づく新材料学理の構築と、それに基づく新材料機能の創出を目的とした。

## 研究組織

領域代表	松永 克志 (名古屋大学・工学研究科・教授)
総括班	
研究代表者	松永 克志 (名古屋大学・工学研究科・教授)
研究分担者	溝口 照康 (東京大学・生産技術研究所・教授) 柴田 直哉 (東京大学・工学系研究科・教授) 阿部 真之 (大阪大学・基礎工学研究科・教授) 遊佐 斉 (物質材料研究機構・ナノアーキテクニクス材料研究センター・主席研究員) 太田 裕道 (北海道大学・電子科学研究所・教授) 北岡 諭 (一般財団法人ファインセラミクスセンター・材料技術研究所・主幹研究員) 平山 雅章 (東京工業大学・物質理工学院・教授)
研究協力者	吉矢 真人 (大阪大学・工学研究科・教授) 吉田 英弘 (東京大学・工学系研究科・教授) 中村 篤智 (大阪大学・基礎工学研究科・教授)
評価委員	佐久間 健人 (東京大学・名誉教授) 森 博太郎 (大阪大学・招聘教授) 森田 清三 (大阪大学・名誉教授) 香山 正憲 (産業技術総合研究所・名誉リサーチャー)
領域アドバイザー	幾原 雄一 (東京大学・工学系研究科・教授) 田中 功 (京都大学・工学研究科・教授)

## 計画研究

### A01(ア)「機能コアのモデリング」

研究代表者	松永 克志 (名古屋大学・工学研究科・教授)
研究分担者	中村 篤智 (大阪大学・基礎工学研究科・教授) 吉矢 真人 (大阪大学・工学研究科・教授)

### A01(イ)「情報科学による機能コア計算設計」

研究代表者	溝口 照康 (東京大学・生産技術研究所・教授)
研究分担者	世古 敦人 (京都大学・工学研究科・准教授) 豊浦 和明 (京都大学・工学研究科・准教授) 柴田 基洋 (東京大学・生産技術研究所・助教)

### A02(ウ)「界面機能コア解析」

研究代表者	柴田 直哉 (東京大学・工学系研究科・教授)
研究分担者	石川 亮 (東京大学・工学系研究科・特任准教授) 栃木 栄太 (東京大学・生産技術研究所・准教授) 馮 斌 (東京大学・工学系研究科・特任准教授) 山本 剛久 (名古屋大学・工学研究科・教授) 関 岳人 (東京大学・工学系研究科・助教) 近藤 隼 (東京大学・工学系研究科・助教)

### A02(エ)「表面機能コア解析」

研究代表者	阿部 真之 (大阪大学・基礎工学研究科・教授)
-------	-------------------------

研究分担者 稲見 栄一（高知工科大学・システム工学群・准教授）  
勝部 大樹（理化学研究所・開拓研究本部・研究員）  
クスタンセ オスカル（物質材料研究機構・先端材料解析研究拠点・上席研究員）

#### A03(オ)「高温高压プロセスによる新材料機能創出」

研究代表者 遊佐 斉（物質材料研究機構・ナノアーキテクニクス材料研究センター・主席研究員）  
研究分担者 長谷川 正（名古屋大学・工学研究科・教授）  
川村 史朗（物質材料研究機構・ナノアーキテクニクス材料研究センター・主任研究員）  
宮川 仁（物質材料研究機構・ナノアーキテクニクス材料研究センター・主任研究員）

#### A03(カ)「界面制御による高機能薄膜材料創製」

研究代表者 太田 裕道（北海道大学・電子科学研究所・教授）  
研究分担者 寺崎 一郎（名古屋大学・理学研究科・教授）  
齊藤 圭司（京都大学・理学研究科・教授）

#### A03(キ)「耐熱・耐環境セラミックスの高機能化」

研究代表者 北岡 諭（一般財団法人ファイセラミックスセンター・材料技術研究所・主幹研究員）  
研究分担者 中平 敦（大阪公立大学・工学研究科・教授）  
吉田 英弘（東京大学・工学系研究科・教授）

#### A03(ク)「高機能固体イオニクス材料の創出」

研究代表者 平山 雅章（東京工業大学・物質理工学院・教授）  
研究分担者 鈴木 耕太（東京工業大学・科学技術創成研究院・准教授）  
森 大輔（三重大学・工学研究科・准教授）

#### 文部科学省 研究振興局 学術調査官

倉持 光（自然科学研究機構分子科学研究所・准教授）  
河原 吉伸（大阪大学・教授）

#### 公募研究（第一期）

嶋田 隆広（京都大学・工学系研究科・准教授）  
池野 豪一（大阪府立大学・工学系研究科・准教授）  
藤井 進（大阪大学・工学研究科・助教）  
森川 大輔（東北大学・多元物質科学研究所・助教）  
杉本 宜昭（東京大学・新領域創成科学研究科・准教授）  
宮町 俊生（名古屋大学・未来材料・システム研究所・准教授）  
吉田 要（一般財団法人ファイセラミックスセンター・ナノ構造研究所・研究員）  
八木 俊介（東京大学・生産技術研究所・准教授）  
横井 太史（東京医科歯科大学・生体材料工学研究所・准教授）  
平原 徹（東京工業大学・理学院物理学系・教授）  
藤井 孝太郎（東京工業大学・理学院化学系・助教）  
清水 荘雄（物質材料研究機構・機能性材料研究拠点・独立研究者）  
伊藤 暁彦（横浜国立大学・環境情報研究院・准教授）  
黒川 康良（名古屋大学・工学研究科・准教授）  
黒澤 昌志（名古屋大学・工学研究科・講師）  
蒲 江（名古屋大学・工学研究科・助教）

石部 貴史（大阪大学・基礎工学研究科・助教）

### 公募研究（第二期）

池野 豪一（大阪公立大学・工学研究科・准教授）

横井 達矢（名古屋大学・工学研究科・講師）

森川 大輔（東北大学・多元物質科学研究所・助教）

杉本 宜昭（東京大学新領域創成科学研究科・准教授）

吉田 要（一般財団法人ファイセラミックスセンター・ナノ構造研究所・主任研究員）

八木 俊介（東京大学・生産技術研究所・准教授）

横井 太史（東京医科歯科大学・生体材料工学研究所・准教授）

打田 正輝（東京工業大学・理学院物理学系・准教授）

平原 徹（東京工業大学・理学院物理学系・教授）

藤井 孝太郎（東京工業大学・理学院化学系・助教）

相馬 拓人（東京工業大学・物質理工学院応用化学系・助教）

清水 亮太（東京工業大学・物質理工学院応用化学系・准教授）

神戸 徹也（大阪大学・工学研究科・准教授）

石部 貴史（大阪大学・基礎工学研究科・助教）

吉田 朋子（大阪公立大学・人工光合成研究センター・教授）

酒井 求（早稲田大学・ナノ・ライフ創新研究機構・講師）

小林 玄器（理化学研究所・開拓研究本部・主任研究員）

### 交付決定額

年度	合計	直接経費	間接経費
令和元年度	304,460,000 円	234,200,000 円	70,260,000 円
令和2年度	293,670,000 円	225,900,000 円	67,770,000 円
令和3年度	293,540,000 円	225,800,000 円	67,740,000 円
令和4年度	293,540,000 円	225,800,000 円	67,740,000 円
令和5年度	242,190,000 円	186,300,000 円	55,890,000 円
合計	1,427,400,000 円	1,098,000,000 円	329,400,000 円

## 研究発表

【主な雑誌論文】（一部抜粋、すべて査読有り。研究代表者には二重下線、研究分担者には一重下線、corresponding author には左に\*印を付す）

### 研究項目 A01(ア) 機能コアのモデリング

- [1] \*Y. Ogura, A. Nakamura, T. Kameyama, Y. Kurokawa, E. Tochigi, N. Shibata, T. Torimoto, S. Hoshino, T. Yokoi, K. Matsunaga, “The effect of room-temperature plastic deformation in darkness on the photoluminescence properties of ZnS” *J. Am. Ceram. Soc.* **107**, 2040-2047 (2024).
- [2] \*Y. Li, X. Fang, E. Tochigi, Y. Oshima, S. Hoshino, T. Tanaka, H. Oguri, S. Ogata, Y. Ikuhara, K. Matsunaga, A. Nakamura, “Shedding new light on the dislocation-mediated plasticity in wurtzite ZnO single crystals by photoindentation”, *J. Materi. Sci. Tech.*, **156**, 206-216 (2023).
- [3] \*S. Kitou, \*Y. Oshima, A. Nakamura, K. Matsunaga, H. Sawa, “Room-temperature plastic deformation modes of cubic ZnS crystals”, *Acta Mater.* **247** 118738 (2023).
- [4] V. P. Kumar, S. P., B. Zhang, S. Fujii, K. Yoshizawa, P. Boullay, S. L. Tonquesse, C. Prestipino, B. Raveau, P. Lemoine, A. Paecklar, N. Barrier, X. Zhou, M. Yoshiya, K. Suekuni, \*E. Guilmeau, “Engineering transport properties in interconnected enargite-stannite type  $\text{Cu}_{2+x}\text{Mn}_{1-x}\text{GeS}_4$  nanocomposites”, *Angew. Chem.Int. Ed.* **61**, e202210600 (2022).
- [5] \*A. Nakamura, \*X. Fang, A. Matsubara, E. Tochigi, Y. Oshima, T. Saito, T. Yokoi, Y. Ikuhara, K. Matsunaga, “Photoindentation: A new route to understanding dislocation behavior in light”, *Nano Lett.* **21**, 1962-1967 (2021).
- [6] Q.K. Muhammad, \*L. Porz, A. Nakamura, K. Matsunaga, M. Rohnke, J. Janek, J. Rödel, \*T. Frömling, “Donor and acceptor-like self-doping by mechanically induced dislocations in bulk  $\text{TiO}_2$ ”, *Nano Energy* **85**, 105994 (2021).
- [7] \*T. Kanno, H. Tamaki, M. Yoshiya, H. Uchiyama, S. Maki, M. Tanaka, Y. Miyazaki, “High-density Frenkel defects as origin of n-type thermoelectric performance and low thermal conductivity in  $\text{Mg}_3\text{Sb}_2$ -based materials”, *Adv. Funct. Mater.* **31**, 2008469 (2021).
- [8] \*L. Porz, T. Frömling, A. Nakamura, N. Li, R. Maruyama, K. Matsunaga, P. Gao, H. Simons, C. Dietz, M. Rohnke, J. Janek, J. Rödel, “Conceptual framework for dislocation modified conductivity in oxide ceramics deconvoluting mesoscopic structure, core, and space charge exemplified for  $\text{SrTiO}_3$ ”, *ACS Nano* **15**, 9355-9367 (2020).
- [9] Y. Oshima, \*A. Nakamura, K. P. D. Lagerlöf, T. Yokoi, K. Matsunaga, “Room-temperature creep deformation of cubic ZnS crystals under controlled light conditions”, *Acta Mater.* **195**, 690-697 (2020).
- [10] \*K. Matsunaga, S. Hoshino, U. Masaya, Y. Oshima, T. Yokoi, A. Nakamura, “Carrier-trapping induced reconstruction of partial-dislocation cores responsible for light-illumination controlled plasticity in an inorganic semiconductor”, *Acta Mater.* **195**, 645-653 (2020).
- [11] \*S. Fujii, T. Yokoi, C. A. J. Fisher, H. Moriwake, \*M. Yoshiya: “Quantitative prediction of grain boundary thermal conductivities from local atomic environments”, *Nature Commun.* **11**, 1854 (2020).
- [12] T. Nishi\*, K. Matsunaga, T. Mitsuoka, Y. Okimura, Y. Katsu, “Advanced superhard composite materials with extremely improved mechanical strength by interfacial segregation of dilute dopants”, *Sci. Rep.* **10**, 21008 (2020).

### 研究項目 A01(イ) 情報科学による機能コア計算設計

- [13] \*PY. Chen, \*K. Shibata, K. Hagita, T. Miyata, \*T. Mizoguchi, “Prediction of the Ground State Electronic Structure from Core-loss Spectra of Organic Molecules by Machine Learning”, *J. Phys. Chem. Lett.* **14**, 4858-4865 (2023).
- [14] \*YS. Xie, K. Shibata, T. Mizoguchi, “A defect formation mechanism induced by structural reconstruction of a well-known silicon grain boundary”, *Acta Mater.* **250**, 118827 (2023).
- [15] H. Hayashi, A. Seko, \*I. Tanaka, “Recommender system for discovery of inorganic compounds”, *npj Comput. Mater.* **8**, 217 (2022).
- [16] \*K. Shibata, K. Kikumasa, S. Kiyohara, \*T. Mizoguchi, “Simulated carbon K edge spectral database of organic molecules”, *Scientific Data* **9**, 214-1-11 (2022).
- [17] P. Zhong, \*K. Toyoura, L. Jiang, L. Chen, S. A. Ismail, N. Hatada, \*T. Norby, \*D. Han, “Protonic Conduction in  $\text{La}_2\text{NiO}_{4+\delta}$  and  $\text{La}_{2-x}\text{A}_x\text{NiO}_{4+\delta}$  (A = Ca, Sr, Ba) Ruddlesden–Popper Type Oxides”, *Adv. Energy Mater.* **12**, 2200392 (2022).
- [18] K. Kikumasa, S. Kiyohara, K. Shibata, \*T. Mizoguchi, “Quantification of the Properties of Organic Molecules Using Core-Loss Spectra as Neural Network Descriptors”, *Advanced Intelligent Systems* **4**, 2100103 (2022).
- [19] \*Y.S. Xie, K. Shibata, \*T. Mizoguchi, “A brute-force code searching for cell of non-identical displacement for CSL grain boundaries and interfaces”, *Computer Physics Communications* **273**, 108260 (2022).
- [20] K. Liao, K. Shibata, \*T. Mizoguchi, “Nanoscale Investigation of Local Thermal Expansion at  $\text{SrTiO}_3$  Grain Boundaries by Electron Energy Loss Spectroscopy”, *Nano Lett.* **21**, 24, 10416–10422 (2021).
- [21] M. Tsubaki, \*T. Mizoguchi, “Quantum Deep Field: Data-Driven Wave Function, Electron Density Generation, and

Atomization Energy Prediction and Extrapolation with Machine Learning”, *Phys. Rev. Lett.* **125**, 206401 (2020).

- [22] K. Nakazawa, S. Amma, \*T. Mizoguchi, “In situ observation of the dynamics in the middle stage of spinodal decomposition of a silicate glass via scanning transmission electron microscopy”, *Acta Mater.* **200**, 720-726 (2020).
- [23] K. Suzuki, K. Ohura, A. Seko, Y. Iwamizu, G. Zhao, M. Hirayama, I. Tanaka, \*R. Kanno, “Fast material search of lithium ion conducting oxides using a recommender system”, *J. Mater. Chem. A* **8**, 11582-11588 (2020).
- [24] S. Kiyohara, M. Tsubaki, \*T. Mizoguchi, “Learning excited states from ground states by using an artificial neural network”, *npj Comp. Mater.* **6**, 68 (2020).

#### 研究項目 A01 公募研究

- [25] M. Higashi, H. Ikeno: “Extraction of Local Structure Information from X-ray Absorption Near-Edge Structure: A Machine Learning Approach”, *Mater. Trans.* **64**, 2179-2184 (2023).
- [26] M. Matsuura, \*T. Yokoi, Y. Ogura, K. Matsunaga, “Anharmonicity in grain boundary energy for Al: thermodynamic integration with artificial-neural-network potential”, *Scripta Mater.* **236**, 115685 (2023).
- [27] \*T. Yokoi, A. Hamajima, J. Wei, B. Feng, Y. Oshima, K. Matsunaga, N. Shibata, Y. Ikuhara, “Atomic and electronic structure of grain boundaries in  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>: A combination of machine learning, first-principles calculation and electron microscopy”, *Scripta Mater.* **229**, 115368 (2023).
- [28] \*S. Fujii, K. Shimazaki, A. Kuwabara, “Empirical interatomic potentials for ZrO<sub>2</sub> and YSZ polymorphs: Application to a tetragonal ZrO<sub>2</sub> grain boundary”, *Acta Mater.* **262**, 119460 (2024).

#### 研究項目 A02(ウ) 界面機能コア解析

- [29] \*T. Seki, T. Futazuka, N. Morishige, R. Matsubara, Y. Ikuhara, \*N. Shibata, “Incommensurate grain-boundary atomic structure”, *Nature Commun.* **14**, 7806 (2023).
- [30] C. Yang, \*B. Feng, J. Wei, N. Shibata, \*Y. Ikuhara, “Dopant-impurity interactions on grain boundary segregation in alumina”, *J. Mater. Sci. & Tech.* **181**, 58-62 (2023).
- [31] \*K. Matsui, K. Hosoi, \*B. Feng, H. Yoshida, \*Y. Ikuhara, “Ultrahigh toughness zirconia ceramics”, *Proc. Nat. Acad. Sci.* **120**, e2304498120 (2023).
- [32] S. Toyama, \*T. Seki, Y. Kanitani, Y. Kudo, S. Tomiya, Y. Ikuhara, \*N. Shibata, “Real-space observation of a two-dimensional electron gas at semiconductor heterointerfaces”, *Nature Nanotech.* **18**, 521-528 (2023).
- [33] T. Futazuka, \*R. Ishikawa, N. Shibata, \*Y. Ikuhara, “Grain boundary structural transformation induced by co-segregation of aliovalent dopants”, *Nature Commun.* **13**(1), 5299 (2022).
- [34] \*R. Ishikawa, Y. Ueno, Y. Ikuhara, N. Shibata, “Direct Observation of Atomistic Reaction Process between Pt Nanoparticles and TiO<sub>2</sub> (110)”, *Nano Lett.* **22** (10), 4161-4167 (2022).
- [35] Y. Kohno, T. Seki, S. D. Findlay, Y. Ikuhara, N. Shibata, “Real-space visualization of intrinsic magnetic fields of an antiferromagnet”, *Nature* **602**, 234-239 (2022).
- [36] \*J. A. Quirk, B. Miao, B. Feng, G. Kim, H. Ohta, Y. Ikuhara, \*K. P. McKenna, “Unveiling the Electronic Structure of Grain Boundaries in Anatase with Electron Microscopy and First-Principles Modeling”, *Nano Lett.* **21**, 9217-9223 (2021).
- [37] \*E. Tochigi, B. Miao, A. Nakamura, N. Shibata, Y. Ikuhara, “Atomic-scale mechanism of rhombohedral twinning in sapphire”, *Acta Mater.* **216**, 117137 (2021).
- [38] S. Sasano, \*R. Ishikawa, G. Sánchez-Santolino, H. Ohta, N. Shibata, \*Y. Ikuhara, “Atomistic Origin of Li-Ion Conductivity Reduction at (Li<sub>3</sub>xLa<sub>2/3-x</sub>)TiO<sub>3</sub> Grain Boundary”, *Nano Lett.* **21**, 6282-6288 (2021).
- [39] \*R. Ishikawa, R. Tanaka, K. Kawahara, N. Shibata, Y. Ikuhara, “Atomic-resolution topographic imaging of crystal surface”, *ACS Nano* **15**, 9186 (2021).
- [40] J. Wei, \*B. Feng, R. Ishikawa, T. Yokoi, K. Matsunaga, N. Shibata, \*Y. Ikuhara, “Direct imaging of atomistic grain boundary migration”, *Nature Mater.* **20**, 951-955 (2021).
- [41] J. Wei, T. Ogawa, B. Feng, T. Yokoi, R. Ishikawa, A. Kuwabara, K. Matsunaga, N. Shibata, \*Y. Ikuhara, “Direct measurement of electronic band structures at oxide grain boundaries”, *Nano Lett.* **20**, 2530-2536 (2020).

#### 研究項目 A02(エ) 表面機能コア解析

- [42] \*E. Inami, K. Nishioka, and J. Kanasaki, “Atomic-scale view of the photoinduced structural transition to form sp<sup>3</sup>-like bonded order phase in graphite”, *Sci. Rep.* **13**, 21439 (2023).
- [43] Z. Diao, K. Ueda, L. Hou, H. Yamashita, O. Custance, \*M. Abe, “Automatic Drift Compensation for Nanoscale Imaging Using Feature Point Matching”, *Appl. Phys. Lett.* **122** (12), 121601 (2023).
- [44] \*D. Katsube, R. Shimizu, Y. Sugimoto, T. Hitosugi, M. Abe, “Identification of OH groups on SrTiO<sub>3</sub>(100)-(R13xR13)-R33.7° reconstructed surface by non-contact atomic force microscopy and scanning tunneling microscopy”, *Appl. Phys. Lett.* **122** (7), 071602 (2023).
- [45] A. Tsuji, \*H. Yamashita, O. Hisatomi, M. Abe, “Dimerization processes for light-regulated transcription factor

Photozipper visualized by high-speed atomic force microscopy”, *Sci. Rep.* **12**, 12903 (2022).

- [46] \*H. Yamamura, T. Hagiwara, Y. Hayashi, K. Osawa, H. o Kato, T. Katsu, K. Masuda, A. Sumino, H. Yamashita, R. Jinno, M. Abe, A. Miyagawa, "Antibacterial Activity of Membrane-Permeabilizing Bactericidal Cyclodextrin Derivatives", *ACS Omega* **6**, 47, 31831–31842 (2021).
- [47] \*D. Katsube, S. Ohno, S. Takayanagi, S. Ojima, M. Maeda, N. Origuchi, A. Ogawa, N. Ikeda, Y. Aoyagi, Y. Kabutoya, K. Kyungmin, H. Linfeng, L. Fengxuan, Y. Tsuda, H. Yoshida, S. Nishi, T. Sakamoto, E. Inami, A. Yoshigoe, M. Abe, "Oxidation of Anatase TiO<sub>2</sub>(001) Surface Using Supersonic Seeded Oxygen Molecular Beam", *Langmuir* **37**, 42, 12313–12317 (2021).
- [48] \*S. Jinno, S. Kitora, H. Toki, M. Abe, "The time domain numerical method of three-dimensional conductors including radiation with lumped parameter circuit", *Sci. Rep.* **11**, 4598 (2021).
- [49] \*H. Kashida, K. Nishikawa, W. Shia T. Miyagawa, H. Yamashita, M. Abe, H. Asanuma, "Helical amplification system composed of artificial nucleic acids", *Chem. Sci.* **12**, 1656 (2021).
- [50] Z. Diao, D. Katsube, H. Yamashita, Y. Sugimoto, O. Custance, \*M. Abe, "Automated extraction of the short-range part of the interaction in non-contact atomic force microscopy", *Appl. Phys. Lett.* **117**, 033104 (2020).
- [51] \*S. Jinno, S. Kitora, H. Toki, M. Abe, "Time-domain formulation of a multi-layer plane circuit coupled with lumped-parameter circuits using Maxwell equations", *Sci. Rep.* **9**, 17891 (2019).

### 研究項目 A02 公募研究

- [52] \*K. Yoshida, A. Nakahira, "Atomic-scale imaging of electron sensitive zeolites with aberration corrected transmission electron microscopy", *Open Ceramics* **16**, 100494 (2023).
- [53] \*D. Morikawa, Y. Noguchi, K. Tsuda, "Direct observation of rotation of polarization at 90-degree domain walls in BaTiO<sub>3</sub>", *Jpn. J. Appl. Phys.* **62**, SM1003 (2023).
- [54] \*M. S. Islam, D. Morikawa, S. Yamada, B. Aryal, K. Tsuda, M. Terauchi, "Determination of the crystal structures of NdBaMn<sub>2</sub>O<sub>6</sub>: Coexisting polar and nonpolar phases", *Phys. Rev. B* **108**, L060104 (2023).
- [55] Y. Adachi, R. Zhang, X. Wang, M. Fukuda, T. Ozaki, \*Y. Sugimoto, "Atomic arrangement of Si adatom on the Silicene/Ag(111) surface", *Appl. Surf. Sci.* **630**, 157336 (2023).

### 研究項目 A03(オ) 高温高压プロセスによる新材料機能創出

- [56] \*H. Yusa, M. Miyakawa, "High-pressure synthesis of corundum-type Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Cr<sup>3+</sup> and application of its fluorescence to the pressure scale", *Inorg. Chem.*, (2024), in press.
- [57] T. Naka, J. Valenta, T. Nakane, S. Ishii, M. Nakayama, H. Mamiya, K. Takehana, N. Tsujii, Y. Imanaka, Y. Matsushita, H. Abe, T. Uchikoshi, \*H. Yusa, "Phase transitions and slow spin dynamics of slightly inverted A-site spinel CoAl<sub>2-x</sub>GaxO<sub>4</sub>", *J. Phys.: Condens. Matter* **36**, 125801 (2024).
- [58] Y. Umeda, Y. Nagai, N. Tomioka, T. Sekine, M. Miyakawa, T. Kobayashi, \*H. Yusa, T. Okuchi, "Deformation microstructures in shock-compressed single crystal and powdered rutile", *J. Mineral. Petrol. Sci.* **119**, 230706 (2024).
- [59] \*L. Li, N. Watanabe, C. Jiang, A. Yamamoto, T. Fujita, M. Miyakawa, T. Taniguchi, H. Hosono, T. Kondo "Development of a highly stable nickel-foam-based boron monosulfide–graphene electrocatalyst with a high current density for the oxygen evolution reaction" *Sci. Technol. Adv. Mater.* **24**, 2277681 (2023).
- [60] \*K. Miyazaki, A. Yamaguchi, H. Kusaka, N. Watanabe, A. C. Wardhana, S. Ishii, A. Yamamoto, M. Miyakawa, T. Taniguchi, T. Kondo, M. Miyauchi, "Rhombohedral boron monosulfide as a metal-free photocatalyst", *Sci. Rep.* **13**, 19540 (2023).
- [61] S. Asano, K. Niwa, K. V. Lawler, S. Kawaguchi-Imada, T. Sasaki, \*M. Hasegawa, "High-Pressure Synthesis of a High-Pressure Phase of MnN Having NiAs-Type Structure", *Inorg. Chem.* **62**, 20271-20278 (2023).
- [62] \*H. Yusa, H. Fujihisa, "Dense structure of yttriumnitride as a post-rock-salt phase: High-pressure experiments and computations", *Inorg. Chem.* **61**, 20906-20912 (2022).
- [63] \*F. Kawamura, \*Y. Song, \*H. Murata, H. Tampo, T. Nagai, T. Koida, M. Imura, N. Yamada, "Tunability of the bandgap of SnS by variation of the cell volume by alloying with A.E. elements", *Sci. Rep.* **12**, 7434 (2022).
- [64] \*F. Kawamura, \*H. Murata, M. Imura, N. Yamada, T. Taniguchi, "Synthesis of CaSnN<sub>2</sub> via a High-Pressure Metathesis Reaction and the Properties of II-Sn-N<sub>2</sub> (II = Ca, Mg, Zn) Semiconductors", *Inorg. Chem.* **60**, 1773-1779 (2021).

### 研究項目 A03(力) 界面制御による高機能薄膜材料創製

- [65] \*A. Tsurumaki-Fukuchi, T. Katase, H. Ohta, M. Arita, Y. Takahashi, "Direct Imaging of Ion Migration in Amorphous Oxide Electronic Synapses with Intrinsic Analog Switching Characteristics", *ACS Appl. Mater. Interfaces* **15**, 13, 16842–16852 (2023).
- [66] Q. Yang, H. J. Cho, Z. Bian, M. Yoshimura, J. Lee, H. Jeon, J. Lin, J. Wei, B. Feng, Y. Ikuhara, \*H. Ohta, "Solid-State Electrochemical Thermal Transistors", *Adv. Funct. Mater.* 202214939 (2023).

- [67] T. V. Vu, K. Saito, “Thermodynamic Unification of Optimal Transport: Thermodynamic Uncertainty Relation, Minimum Dissipation, and Thermodynamic Speed Limits”, *Phys. Rev. X* **13**, 011013 (2023).
- [68] \*A. Nakano, U. Maruoka, I. Terasaki, “Correlation between thermopower and carrier mobility in the thermoelectric semimetal Ta<sub>2</sub>PdSe<sub>6</sub>”, *Appl. Phys. Lett.* **121**, 153903 (2022).
- [69] L. Gong, M. Wei, R. Yu, H. Ohta, \*T. Katayama, “Significant Suppression of Cracks in Freestanding Perovskite Oxide Flexible Sheets Using a Capping Oxide Layer”, *ACS Nano* **16**, 21013-21019 (2022).
- [70] X. Zhang, \*Y. Zhang, L. Wu, A. Tsuruta, M. Mikami, H. J. Cho, H. Ohta, “Ba<sub>1/3</sub>CoO<sub>2</sub>: A Thermoelectric Oxide Showing a Reliable ZT of ~0.55 at 600 °C in Air”, *ACS Appl. Mater. Interfaces* **14**, 29, 33355–33360 (2022).
- [71] T. Kuwahara, K. Saito, “Exponential clustering of bipartite quantum entanglement at arbitrary temperatures”, *Phys. Rev. X* **12**, 021022 (2022).
- [72] A. Tao, T. Yao, Y. Jiang, L. Yang, X. Yan, H. Ohta, Y. Ikuhara, \*C. Chen, H. Ye, \*X. Ma, “Single-Dislocation Schottky Diodes”, *Nano Lett.* **21**, 5586-5592 (2021).
- [73] Y. Takashima, \*Y. Zhang, J. Wei, B. Feng, Y. Ikuhara, H.J. Cho, \*H. Ohta: “Layered cobalt oxide epitaxial films exhibiting thermoelectric ZT = 0.11 at room temperature”, *J. Mater. Chem. A* **9**, 274-280 (2021).

#### 研究項目 A03(キ) 耐熱・耐環境セラミックスの高機能化

- [74] F. S. Ong, K. Nambu, K. Hosoi, K. Kawamura, H. Masuda, B. Feng, K. Matsui, Y. Ikuhara, \*H. Yoshida, “Tetragonal phase stabilization and densification in AC flash-sintered 1.5 mol% yttria-stabilized zirconia polycrystals with high toughness”, *J. Eur. Ceram. Soc.* **44**, 1036-1043 (2024).
- [75] \*T. Matsudaira, T. Ogawa, M. Takeuchi, J. Wei, B. Feng, N. Shibata, Y. Ikuhara, \*S. Kitaoka, “Effect of oxygen potential gradient on mass transfer along grain boundary in alumina bicrystal”, *J. Ceram. Soc. Jpn.* **131**, 632-639 (2023)
- [76] \*S. Kitaoka, T. Matsudaira, N. Kawashima, T. Ogawa, N. Yamazaki, N. Hosoya, T. Nakamura, “Mass transfer in Yb<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub> films at high temperatures under oxygen potential gradients”, *J. Eur. Ceram. Soc.* **44**, 1188-1201 (2024).
- [77] A. Nakamoto, K. Nambu, H. Masuda, \*H. Yoshida, “Chemical bonding and crystal structure in flash sintered Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> under DC or AC field”, *J. Eur. Ceram. Soc.* **43**, 3516-3523 (2023).
- [78] \*T. Matsudaira, T. Ogawa, M. Takeuchi, N. Shibata, Y. Ikuhara, \*S. Kitaoka, “Effect of Oxygen Potential Gradient on Mass Transfer in Polycrystalline Alumina Film Doped with Trace Elements”, *Acta Mater.* **252**, 118927 (2023).
- [79] \*H. Murata, T. Nakamura, R. Kawanabe, Y. Tokudome, A. Nakahira, “Reaction of stoichiometric hydroxyapatite with different crystallinity in Mg<sup>2+</sup> aqueous solution”, *J. Ceram. Soc. Jpn.* **131**, 8-11 (2023).
- [80] H. Masuda, K. Morita, T. Tokunaga, T. Yamamoto, \*H. Yoshida, “Anelasticity induced by AC flash processing of cubic zirconia”, *Acta Mater.* **227**, 117704 (2022).
- [81] \*K. Nambu, K. Morita, K. Soga, T. Yamamoto, H. Masuda, H. Yoshida, “Densification of Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> by flash sintering under an AC electric field”, *J. Eur. Ceram. Soc.* **42**, 567-575 (2022).
- [82] \*T. Yokoi, T. Goto, M. Hara, T. Sekino, T. Seki, M. Kamitakahara, C. Ohtsuki, S. Kitaoka, S. Takahashi, M. Kawashita, “Incorporation of tetracarboxylate ions into octacalcium phosphate for the development of next-generation biofriendly materials”, *Commun. Chem.* **4**, 4 (2021).
- [83] \*Y. Sasaki, K. Morita, T. Yamamoto, K. Soga, H. Masuda, H. Yoshida, “Electric current dependence of plastic flow behavior with large tensile elongation in tetragonal zirconia polycrystal under a DC field”, *Scripta Mater.* **194**, 113659 (2021).

#### 研究項目 A03(ク) 高機能固体イオニクス材料の創出

- [84] Y. Lee, S. Song, H. Kim, K. Nomoto, H. Kim, X. Sun, S. Hori, K. Suzuki, N. Matsui, M. Hirayama, T. Mizoguchi, T. Saito, T. Kamiyama, \*R. Kanno, “A lithium superionic conductor for millimeter-thick battery electrode”, *Science* **381**, 50-53 (2023).
- [85] \*K. Watanabe, Y. Horisawa, M. Yoshimoto, K. Tamura, K. Suzuki, R. Kanno, \*M. Hirayama, “Stable Photoelectrochemical Reactions at Solid/Solid Interfaces toward Solar Energy Conversion and Storage”, *Nano Lett.* **24**, 1916-1922 (2024).
- [86] N. Matsui, T. Seki, K. Suzuki, M. Hirayama, \*R. Kanno, “Accelerated Exploration of Fast Fluoride-Ion Conductors Based on Compositional Descriptors”, *ACS Appl. Ener. Mater.* **6**(22), 11663–11671 (2023).
- [87] S. Song, S. Hori, Y. Li, K. Suzuki, N. Matsui, M. Hirayama, T. Saito, T. Kamiyama, \*R. Kanno, “Material Search for a Li<sub>10</sub>GeP<sub>2</sub>S<sub>12</sub>-Type Solid Electrolyte in the Li–P–S–X (X = Br, I) System via Clarification of the Composition–Structure–Property Relationships”, *Chem. Mater.* **34**, 8237-8247 (2022).
- [88] G. Zhao, K. Suzuki, T. Okumura, T. Takeuchi, M. Hirayama, \*R. Kanno, “Extending the Frontiers of Lithium-Ion Conducting Oxides: Development of Multicomponent Materials with γ-Li<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>-Type Structures”, *Chem. Mater.* **34**,

3948-3959 (2022).

- [89] K. Hikima, K. Shimizu, H. Kiuchi, Y. Hinuma, K. Suzuki, M. Hirayama, E. Matsubara, \*R. Kanno, “Reaction Mechanism of  $\text{Li}_2\text{MnO}_3$  Electrodes in an All-Solid-State Thin-Film Battery Analyzed by Operando Hard X-ray Photoelectron Spectroscopy”, *J. Am. Chem. Soc.* **144**, 236-247 (2022).
- [90] X. Sun, Y. Yamada, S. Hori, Y. Li, K. Suzuki, M. Hirayama, \*R. Kanno, “Discharge voltage profile changes via physicochemical phenomena in cycled all-solid-state cells based on  $\text{Li}_{10}\text{GeP}_2\text{S}_{12}$  and  $\text{LiNbO}_3$ -coated  $\text{LiCoO}_2$ ”, *J. Mater. Chem. A* **9**, 17905-17912 (2021).
- [91] X. Sun, S. Hori, Y. Li, Y. Yamada, K. Suzuki, M. Hirayama, \*R. Kanno, “Annealing-induced evolution at the  $\text{LiCoO}_2/\text{LiNbO}_3$  interface and its functions in all-solid-state batteries with a  $\text{Li}_{10}\text{GeP}_2\text{S}_{12}$  electrolyte”, *J. Mater. Chem. A* **9**, 4117-4125 (2021).
- [92] N. Matsui, Y. Hinuma, Y. Iwasaki, K. Suzuki, J. Guangzhong, H. Nawaz, Y. Imai, M. Yonemura, M. Hirayama, G. Kobayashi, \*R. Kanno, “The effect of cation size on hydride-ion conduction in  $\text{LnSrLiH}_2\text{O}_2$  ( $\text{Ln} = \text{La, Pr, Nd, Sm, Gd}$ ) oxyhydrides”, *J. Mater. Chem. A* **8**, 24685-24694 (2020).

### 研究項目 A03 公募研究

- [93] \*T. Kambe, \*H. Nishihara, \*K. Yamamoto, “Chemical bottom-up approach for inorganic single-atomic layers aiming beyond graphene”, *Dalton Trans.* **52**, 15297-15302 (2023).
- [94] W. Wang, W. Liu, M. Kamiko, \*S. Yagi, “Effect of cation vacancies in nonstoichiometric  $(\text{LaMn})_{1-x}\text{O}_3$  on oxygen reduction reaction catalysis”, *JALCOM.* **946**, 169398 (2023).
- [95] Y. Yasui, M. Tansho, K. Fujii, Y. Sakuda, A. Goto, S. Ohki, Y. Mogami, T. Iijima, S. Kobayashi, S. Kawaguchi, K. Osaka, K. Ikeda, T. Otomo, \*M. Yashima, “Hidden chemical order in disordered  $\text{Ba}_7\text{Nb}_4\text{MoO}_{20}$  revealed by resonant X-ray diffraction and solid-state NMR”, *Nature Commun.* **14**, 2337 (2023).
- [96] Y. Izumi, F. Takeiri, K. Okamoto, T. Saito, T. Kamiyama, A. Kuwabara, \*G. Kobayashi, “Electropositive Metal Doping into Lanthanum Hydride for H<sup>-</sup> Conducting Solid Electrolyte Use at Room Temperature”, *Adv. Energy Mater.* **13**, 2301993 (2023).
- [97] Y. Sakuda, T. Murakami, M. Avdeev, K. Fujii, Y. Yasui, J. R. Hester, M. Hagihala, Y. Ikeda, Y. Nambu, \*M. Yashima, “Dimer-Mediated Cooperative Mechanism of Ultrafast-Ion Conduction in Hexagonal Perovskite-Related Oxides”, *Chem. Mater.* **35**, 9774-9788 (2023).
- [98] K. Kuroyama, R. Fujikawa, T. Goto, T. Sekino, F. Nakamura, H. Kimura-Suda, P. Chen, H. Kanetaka, T. Hasegawa, K. Yoshida, M. Murata, H. Nakata, M. Shimabukuro, M. Kawashita, T. Yoda, \*T. Yokoi, “Development of bioinspired damage-tolerant calcium phosphate bulk materials”, *Sci. Technol. Adv. Mater.* **24**, 2261836 (2023).
- [99] S. Nishihaya, A. Nakamura, M. Ohno, M. Kriener, Y. Watanabe, M. Kawasaki, and \*M. Uchida, “Intrinsic insulating transport characteristics in low-carrier density  $\text{EuCd}_2\text{As}_2$  films”, *Appl. Phys. Lett.* **124**, 023103 (2024).

### 【学会発表】（一部抜粋）

- [1] (基調講演) Katsuyuki Matsunaga: “Electronic and Atomic Structures of Crystal Defect Cores in Advanced Materials”, The 3<sup>rd</sup> Materials Research Meeting (MRM 2023) (2023.12.12, Kyoto).
- [2] (基調講演) Katsuyuki Matsunaga: “Electronic and Atomic Structures of Glide Dislocations in Inorganic Semiconductors Relevant to Their Light-illumination Dependent Mechanical Behavior”, The 11<sup>th</sup> International Conference Pacific Rim on Advanced Materials & Processing (PRICM11) (2023.11.20, Korea).
- [3] (基調講演) Katsuyuki Matsunaga: “Electronic Structures of Dislocation Cores in Zinc Sulfide Showing Extraordinary Plastic Deformation”, The 2nd Global Forum on Advanced Materials and Technologies for Sustainable Development (GFMAT-2) (2019.7.26, Toronto, Canada).
- [4] (基調講演) Teruyasu Mizoguchi: “Bridging Atomic-Resolution Experiment and Computation Using Machine Learning”, Materials Research Meeting (MRM) (2019.12.11, Yokohama).
- [5] (基調講演) Naoya Shibata: “Development and Application of Magnetic-Field-Free Atomic-Resolution Scanning Transmission Electron Microscopy”, The 2<sup>nd</sup> Materials Research Meeting (MRM 2021) (2021.12.15, Yokohama).
- [6] (招待講演) Hiromichi Ohta: “Single Crystalline Film Growth of Layer Structured Oxides and Their Phonon Transports”, 2019 Materials Research Society Fall Meeting (2019.12.1, Boston, USA).
- [7] (基調講演) Satoshi Kitaoka: “The Effects of Yttrium Segregated at Grain Boundaries on Mass Transfer in Polycrystalline Alumina under Oxygen Potential Gradients at High Temperatures”, International Symposium on High-temperature Oxidation and Corrosion 2022 (ISHOC-2022) (2022.10.16, Takamatsu).
- [8] (基調講演) Masaaki Hirayama: “Electrochemical Interface Phenomena: Toward the Development of Next-generation Lithium-ion Batteries”, The 2nd Global Forum on Advanced Materials and Technologies for Sustainable Development (GFMAT-2) (2019.7.26, Toronto, Canada).

### 【産業財産権】（一部抜粋）

- [1] 太田裕道, 楊 倩, チョ ヘジュン, “熱トランジスタ”, 特開 2023-055209
- [2] 遊佐 斉, 宮川 仁, “蛍光体、その製造方法、それを用いた顔料、圧力標準材料、および、発光装置”, 特願 2023-118909
- [3] 遊佐 斉, 川村史朗, 谷口尚 “窒化レニウムを含有する硬質材料、その製造方法およびそれを用いた切削工具”, 特許第 2021-6950942

### 【ホームページ】

- [1] 「機能コアの材料科学」領域ホームページ <https://www.core.mp.pse.nagoya-u.ac.jp/>
- [2] 「機能コアの材料科学」YouTube チャンネル <https://www.youtube.com/channel/UC0Uz0GvdjCIyaFVF5s5C3NA>

### 【主催シンポジウム】（一部抜粋）

- [1] 2024年3月9日 2023年度「機能コア科学」公開シンポジウム
- [2] 2023年12月11日～16日 The 3rd Materials Research Meeting (MRM 2023) / The 24th IUMRS-International Conference in Asia (IUMRS-ICA 2023) (Kyoto, Japan)
- [3] 2023年9月19日～22日 日本金属学会秋季講演大会公募シンポジウム「機能コアの材料科学Ⅳ」
- [4] 2023年3月28日 2022年度「機能コア科学」公開シンポジウム
- [5] 2022年9月21日～23日 日本金属学会秋季講演大会公募シンポジウム「機能コアの材料科学Ⅲ」
- [6] 2022年3月30日 2021年度「機能コア科学」公開シンポジウム
- [7] 2021年12月13日～16日 国際会議 PACRIM14 (online)  
Symposium1: “Characterization and Modeling of Ceramic Interfaces: Structure, Bonding, and Grain Growth”
- [8] 2021年9月14日～17日 日本金属学会秋季講演大会公募シンポ「機能コアの材料科学Ⅱ」
- [9] 2021年3月8日 2020年度「機能コア科学」公開シンポジウム
- [10] 2020年9月15日～18日 日本金属学会秋季講演大会公募シンポジウム「機能コアの材料科学Ⅰ」
- [11] 2020年9月2日～4日 日本セラミックス協会秋季シンポジウム  
特定セッション「機能コア構造解析に基づく材料科学の新展開」
- [12] 2019年12月18日～20日 The 3rd Workshop on Functional Materials Science (Sapporo, Japan)
- [13] 2019年11月10日～12日 Joint 5th International Symposium on Frontiers in Materials Science, Nano-materials, Technology and Applications (Da Nang, Viet Nam)
- [14] 2019年10月27日～11月1日 国際会議 PACRIM13 (Okinawa, Japan)  
Symposium15: “Advanced Nanocharacterization and Atomic-Scale Modeling of Grain Boundaries and Interfaces in Ceramics: Structures, Dynamics and Properties”
- [15] 2019年9月11日～13日 日本金属学会秋季講演大会公募シンポジウム  
「先進ナノ構造解析に基づく材料科学の新展開Ⅱ」

### 【一般向けアウトリーチ活動】（一部抜粋）

- [1] 2023年10月21日 テクノフェア名大 2023 「機能コアの材料科学」
- [2] 2022年10月15日 テクノフェア名大 2022 「機能コアの材料科学」
- [3] 2021年3月21日 名大オープンレクチャー2021 「結晶における原子の並び方のはなし」
- [4] 2020年10月17日 テクノフェア名大 2020 「機能コアの材料科学」
- [5] 2020年8月17日 名大オープンキャンパス講義 「物質における原子配列の乱れと物質科学」
- [6] 2019年10月19日 テクノフェア名大 2019 「結晶中の原子配列の乱れを科学する」

## 研究成果

### 研究項目 A01 機能コアの理論解析

本研究項目では、第一原理計算、情報科学にもとづく計算解析に加え、粒界や転位のモデル試料の創製・解析を行う。A02 と連携し計算・実験の両面から、機能コアのナノレベル構造と特性の関係を解明することを目的とする。得られた主な成果を以下に記す。

#### A01(ア) 機能コアのモデリング

##### ● 結晶粒界・転位の熱伝導度の定量予測手法開発

計算科学と機械学習の融合により、結晶粒界の熱伝導度を予測するモデルの構築に成功するとともに、粒界コアのフォノン状態（粒界量子場）の熱機能コアとしての重要性も解明した。これにより、熱伝導度を制御するための粒界設計を世界で初めて得た。さらに、結晶中の転位に応用できることも実証した（図1）。これらは、結晶欠陥コアによる熱伝導特性制御の指針であり、熱電変換材料や耐熱材料の設計、電子デバイスの性能向上に貢献しうる（*Nature Commun.* 2020, *Scripta Mater.* 2021, *J. Ceram. Soc. Jpn.* 2023(優秀論文賞受賞)）。

##### ● 結晶転位の力学的・光学的機能

第一原理計算、モデル試料実験、電子顕微鏡解析の連携により、化合物半導体結晶 ZnS における転位コアの静電場（転位コア量子場）と可視光の相互作用が、同結晶の光照射硬化の起源であることを突き止めた（図2上）。さらに、転位コアのキャリア捕獲に着想を得て、転位による蛍光・燐光の発現とその強度の制御にも成功した（図2下）。転位は外力に応答する力機能コアとしてのみならず、光物性にも関わる光機能コアとして機能することを示した（*Acta Mater.* 2020, *Nano Lett.* 2021, *Phys. Rev. Mater.* 2023 等）。

#### A01(イ) 情報科学による機能コア計算設計

##### ● 機械学習を利用した機能コア構造の高速決定法開発とデータベース公開

機能コア解析を効率的かつ高精度に実施するための機械学習原子間ポテンシャルを開発し、データベースとして一般公開した（<https://sekocha.github.io/>）。この応用として、公募班（阪大・藤井）と共同で Si 界面の大規模 MD 計算を行い、熱と界面との相関性を明らかにした（*Comp. Mater. Sci.* 2022, 図3）。さらに、Si 界面の熱による構造および物性の解析から、同界面の熱機能コアとしての役割を解明した（*Acta Mater.* 2023）。その他、ELNES/XANES から動径分布関数や電子構造を抽出する手法の開発（*Mater. Trans.* 2023, *J. Phys. Soc. Jpn.* 2022）、A03(キ)班との共同研究によりガラス中の配位数分布の解明に成功し（*J. Phys. Chem. Lett.* 2020）、得られた計算スペクトル群はデータベースとして公開した（*Sci. Data* 2023）。

##### ● イオン伝導物質探索

A03(ク)との連携し、高性能リチウムイオン伝導物質の探索と新規物質の合成に成功し、イオン機能コアとなる置換元素種の役割やリチウムイオン伝導経路を解明した（*Science* 2023, *J. Mater. Chem. A* 2020）。またデータ駆動型手法を適用し、層間化合物の安定性に対する新たな帰式を導き、層間化合物探索の道を切り拓いた（*J. Phys. Chem. C* 2023, *ACS Phys. Chem. Au* 2024）。

#### 公募研究 1 期

第一原理量子応力場解析法により、結晶欠陥固有の力場とマルチフェロイック機能を解明した。欠陥からの電子線損失エネルギー分光スペクトルを予測する機械学習手法を開発した。機械学習による熱伝導予測モデルを構築し、粒界・界面の熱機能コアとしての役割を定量化した。

#### 公募研究 2 期

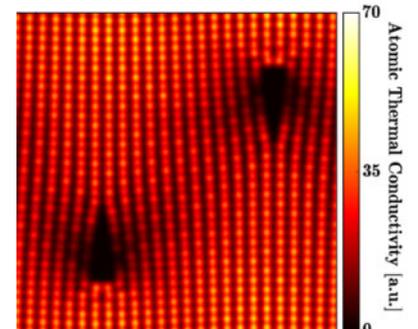


図1 MgO 転位コア近傍の熱伝導

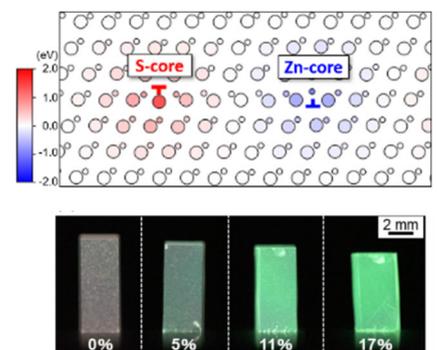


図2 ZnS 転位コアの静電場(上)、転位導入試料のりん光発現(下)

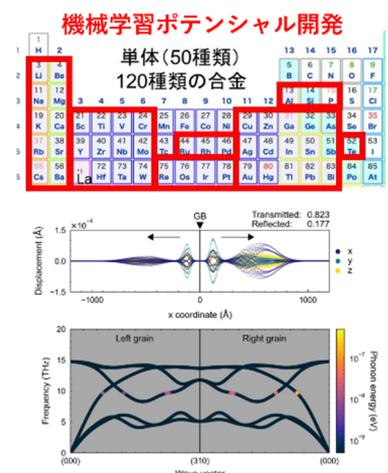


図3 開発原子間ポテンシャルと Si 界面の構造・機能予測

機械学習原子間ポテンシャルを開発し、Si 材料における転位の構造と移動度を解明した。STEM-EELS スペクトルから、対象物質の局所構造を抽出できるアルゴリズムを開発した。

## 研究項目 A02 機能コアのナノ計測

本研究項目は、世界最先端の分解能を有する電子顕微鏡および非接触原子間力顕微鏡等を駆使し、A01 と連携しながら、機能コアの原子レベル構造や電子状態の解析を行うことを目的とする。得られた主な成果を以下に記す。

### A02(ウ) 界面機能コア解析

#### ● 酸化物粒界バンドギャップの定量計測

A01(ア)+A03(キ)と連携し、原子分解能 STEM-EELS の計測条件を最適化し、高温構造用セラミックスの代表格である、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  粒界の局所バンドギャップの直接定量計測に世界で初めて成功した (*Nano Lett.* 2020, 図 4)。また粒界バンドギャップは、粒界コア特有の配位構造を起源とすることも突き止めた。

高温クリープや酸素透過性能など、高温構造材料・耐環境性材料の特性は、粒界でのイオン拡散によって決定される。理論計算および双結晶モデル実験との連携で、粒界イオン拡散は粒界バンドギャップ=粒界量子場に支配されていることを示す画期的な成果となった。

#### ● 酸化物粒界移動機構の直接観察

原子分解能 STEM による  $\text{Al}_2\text{O}_3$  粒界移動現象の原子レベル直接観察に成功した。さらに、A01(ア)と連携による理論計算により、粒界移動過程は粒界性格に依存し、粒界コアにおける原子多面体の逐次構造変化というメカニズム(*Nature Mater* (2021), *Nature Comm.* (2022), 図 5)を見出した。

#### ● 原子分解能局所電磁場観察 STEM 法の開発と応用

回折コントラストを大幅に低減する tilt-scan averaging 微分位相コントラスト法(tDPC)を開発することにより、界面機能コアの局所電磁場定量観察法を確立した。本手法を用いて、これまで直接観察が困難であった GaN 系半導体異相界面の二次元電子ガスの定量観察(*Nature Nanotech.* (2023))、イオン伝導体 YSZ 粒界における空間電荷層存在の実証と Y 粒界偏析強度との相関性の解明、さらに同 DPC 法を原子分解能化させ、反強磁性ヘマタイト( $\text{Fe}_2\text{O}_3$ )結晶中の原子磁場の実空間観察を世界で初めて実現した (*Nature* (2022), 図 6)。

### A02(エ) 表面機能コア解析

#### ● 酸化物表面の原子分解能観察

超高分解能 NC-AFM/STM により、ルチル型  $\text{TiO}_2(110)-(1 \times 2)$  表面における特異な表面線欠陥の存在を見出した。A01(ア)と公募班との連携により、この線欠陥は負に帯電し水が全く吸着しないことが判明し、吸着分子の還元反応に重要な役割を果たす光機能コアであることを明らかにした (*Beilstein J. Nanotechnol.*(2020), *Langmuir* 2021, 図 7)。また公募班との連携で  $\text{SnO}_2$  表面や  $\text{SrTiO}_3$  表面の表面欠陥とそのイメージコントラストについても詳細に解明した (*Appl. Phys. Lett.* 2023)。

#### 公募研究 1 期

ナノ電子プローブを用いた局所領域の結晶構造解析を応用し、強誘電体双晶境界における分極構造の発現を観測することに成功した。AFM と STM の複合装置により、シリセンの欠陥構造と電子状態を解明した。新規蛍光材料銀ゼオライトについて、内包される銀クラスター構造を解明した。

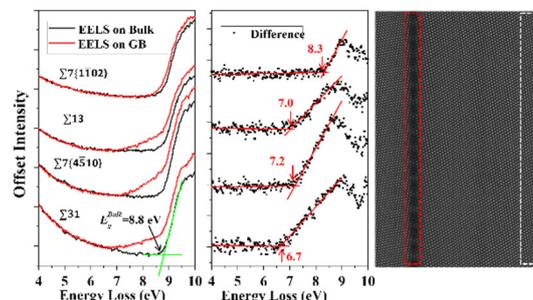


図 4 粒界バンドギャップと粒界性格依存性

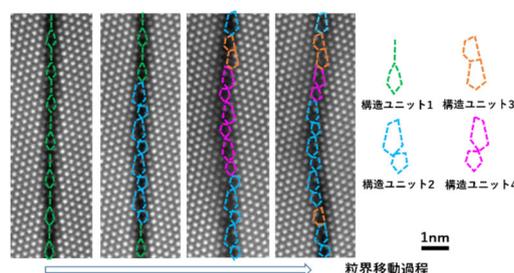


図 5 粒界移動の原子レベル直接観察

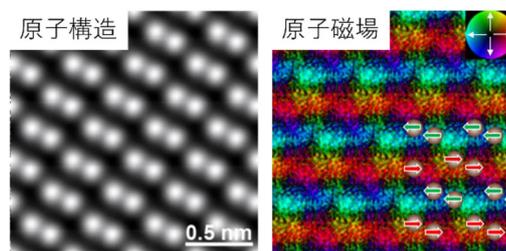


図 6  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  結晶中の原子磁場の直接観察

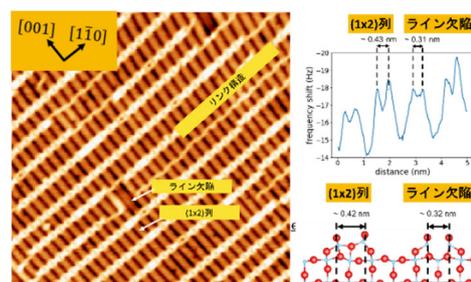


図 7  $\text{TiO}_2$  表面の光触媒機能コアとなる線欠陥

## 公募研究 2 期

収束電子顕微鏡法により、強誘電体ドメイン壁の局所構造解析に成功した。シリセン表面にさらに Si 原子を吸着した構造について、AFM による原子操作と原子分解能観察に成功した。

## 研究項目 A03 機能コア制御にもとづく新材料機能創出

本研究項目は、各種合成プロセスを活用し、機能コア概念を応用した多様な材料機能創製を行うだけでなく、機能コアによる機能発現機構に関する知見を A01 および A02 にフィードバックし、学理構築をサポートすることを目的とする。得られた主な成果を以下に記す。

### A03(オ) 高温高压プロセスによる新材料機能創出

#### ● 新規窒化物結晶の開発

大型ベルト型高压装置を用い、窒化が困難とされてきた多元性スズ窒化物半導体結晶の合成に成功するとともに、Ca 等の元素ドーピングによるバンドギャップ制御(1.0~2.4 eV)を達成した(*Eur. J. Inorg. Chem.* 2020, 図 8)。また、これまで実現されていなかった窒素量に富んだ多数の金属窒化物の合成にも成功した。A03(キ)との連携で、同物質の高硬度の起源が、結晶中の配位多面体構造とそれらの連結様式に起因することを突き止めた(*Inorg. Chem.* 2021, *Dalton Trans.* 2022, *Inorg. Chem.* 2023)。

#### ● 高压合成による Cr-Ge 化合物の発見

ダイヤモンドアンビルセルによる高温高压合成により、新規化合物である MoSi<sub>2</sub> 型 CrGe<sub>2</sub> および Chimney-Ladder 型 CrGe<sub>1.77</sub> の合成に成功した。A01(ア)による理論計算により、CrGe<sub>2</sub> が熱電変換材料として有望であり、機能コアとなる Ge 空孔の配置が重要であることを解明した(*Inorg. Chem.* 2021)。

### A03(カ) 界面制御による高機能薄膜材料創製

#### ● 高温・空气中で使える実用的な熱電変換材料を実現

層状コバルト酸化物 Na<sub>3/4</sub>CoO<sub>2</sub> の Na<sup>+</sup>イオンを Ba<sup>2+</sup>に置換した Ba<sub>1/4</sub>CoO<sub>2</sub> を合成し、カルコゲン化合物に匹敵する性能指数 ZT (0.11@室温、0.55@600°C) を達成した。A02(ウ)との連携による構造評価により、Ba<sup>2+</sup>置換したときの層界面が機能コアとなり、電気特性に影響を及ぼすことなく熱伝導率を劇的に低減することを見出した。従来材料より飛躍的に再現性良くかつ高性能を示す実用的な熱電変換材料の実現に成功した(*J. Mater. Chem. A* 2020, *ACS Appl. Mater. Interf.* 2022, 図 9)。

#### ● 世界初の全固体熱トランジスタを実現

結晶構造を維持したまま酸素含有率を変えることができる SrCoO<sub>x</sub> (2 ≤ x ≤ 3) 薄膜 (活性層) と、固体電解質である YSZ を組み合わせ、電気化学的に酸化することで高熱伝導率 (~3.8 W/mK) 化、還元することで低熱伝導率 (~0.95 W/mK) 化する全固体熱トランジスタを実現した(*Adv. Funct. Mater.* 2023, 図 10)。A02(ウ)との連携および国際共同研究による成果である。

### A03(キ) 耐熱・耐環境セラミックスの高機能化

#### ● 高酸素遮蔽性向上のための酸化物セラミックス膜の粒界機能コアの高度制御

航空機エンジン等の過酷な熱的・化学的環境下で用いられる Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 多結晶保護膜の、寿命を決める組織安定性向上の基本原則を解明した。A01(ア)および A02(ウ)と連携し、これらの保護膜組織安定性を決める機能コアが粒界近傍の Al<sup>3+</sup>空孔であることを突き止め、その生成と移動が保護膜中の粒界バンドギャップにより支配されていることを解明した(*Nano Lett.* 2020)。さらに、高温酸素分圧勾配下での保護膜組織の構造変化から Al<sup>3+</sup>空孔濃度の制御が重要であることに着目し、複合酸化物を用いた積層膜を設計・

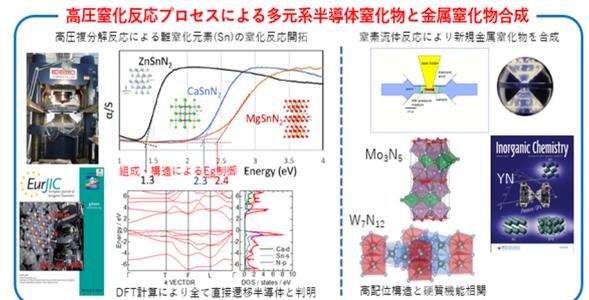


図 8 高压合成による新規多窒化物の発見

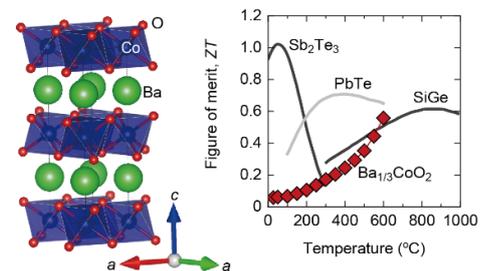


図 9 新熱電材料 Ba<sub>1/3</sub>CoO<sub>2</sub> の構造と特性

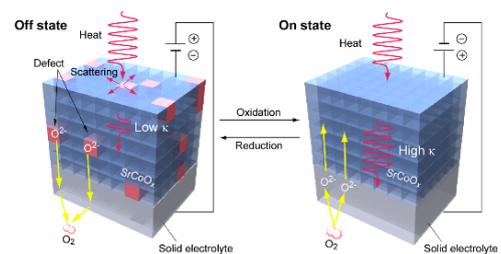


図 10 世界初の全固体熱トランジスタ

適用することで、飛躍的な酸素遮蔽性と組織安定性の向上に成功した(*Acta Mater.* 2023, *J. Ceram. Soc. Jpn.* 2023)。

### ● 高電場焼結法開発によるセラミックスの高機能化

高電磁場を活用した革新的焼結プロセスにより、酸化物粉末成形体の高速緻密化やより低温での超塑性を実現するとともに、蛍光発光等の新機能の発現を見出した (*J. Eur. Ceram. Soc.* 2020, *Appl. Phys. Exp.* 2020, 図 11)。新規光物性は、高電磁場により形成されるイオン機能コアとなる酸素イオン空孔によることを解明した。また A02(ウ)との連携により、高速焼結や低温超塑性は高電磁場下で生成される酸素空孔に強調して誘起されたカチオン空孔の生成と移動によることを突き止めた(*Ceram. Int.* 2022, *Acta Mater.* 2022)。

### A03(ク) 高機能固体イオニクス材料の創出

#### ● 超イオン伝導体の創出

機能コアとなるアニオン種の導入と制御により、新硫化物系イオン伝導体  $\text{Li}_{9.54}[\text{Si}_{0.6}\text{Ge}_{0.4}]_{1.74}\text{P}_{1.44}\text{S}_{11.1}\text{Br}_{0.3}\text{O}_{0.6}$  (LSiGePSBrO, *Science* 2023)、 $\text{Li}_{10}\text{P}_3\text{S}_{12}\text{Br}$  (*Chem. Mater.* 2022)の創製に成功した。特筆すべきは、LSiGePSBrO(図 12)においては世界最高のイオン伝導率  $32 \text{ mS cm}^{-1}$  を達成したことである。さらに A01(イ)との連携による第一原理計算から、添加アニオンがリチウムイオンの拡散障壁を低下させることを解明した。このような可動イオンの制御・設計指針をヒドリド系にも展開し、いくつかの高性能な新イオン伝導体の創出にも成功した(*J. Mater. Chem. A* 2021, *ACS Appl. Ener. Mater.* 2022)。

#### ● リチウム電池電極/電解質界面構造の制御と高機能化

リチウムイオン伝導を決めるリチウム電池正極/固体電解質界面を薄膜モデル系で構築し、in situ 中性子反射率解析から電解質側界面構造を実測することで、リチウム脱溶媒和の律速過程を解明した(*Adv. Ener. Mater.* 2023, *Adv. Mater. Inter.* 2024)。固体系では、粒界への異種イオン導入により、リチウム負極/酸化物固体電解質界面におけるリチウムデンドライド成長の抑制に成功した(*J. Ceram. Soc. Jpn.* 2023)。

### 公募研究 1 期

生体親和材料の層状リン酸カルシウム結晶の中に、蛍光性テトラカルボン酸を導入した新規蛍光生体材料の合成に成功した (*Commun. Chem.* 2021)。SrTiO<sub>3</sub> (001) 基板上鉄セレン(FeSe)層の超伝導転移温度が、表面酸素欠陥に強く依存することを明らかにした。高イオン伝導体である、層状ペロブスカイト型 BaNdScO<sub>4</sub> を見出し、プロトン伝導経路と結晶構造の関係を解明した (*J. Mater. Chem. A* 2021)。太陽電池材料 BaSi<sub>2</sub> 中の点欠陥や粒界とキャリアの相互作用を解明した。p 型 IV 族混晶薄膜において、正孔や電子、フォノン散乱に有効な粒界構造を明らかにした。遷移金属ダイカルコゲナイドにおける、局所歪みによる力場と結晶・電子構造の相関を解明した。

### 公募研究 2 期

高い触媒活性を有する(LaMn)<sub>1-x</sub>O<sub>3</sub> について、カチオン欠損量制御による触媒活性向上に成功した。RuO<sub>2</sub> 薄膜に超伝導が発現することを見出し、表面局所の異方的歪みに起因していることを解明した。放射光結晶構造解析技術を駆使して、高プロトン伝導体 Ba<sub>7</sub>Nb<sub>4</sub>MoO<sub>20</sub> の結晶構造とプロトン位置の決定に成功した (*Nature Commun.* 2023, 図 13)。エピタキシャル薄膜成長技術を高度に制御し、Sc<sup>2+</sup>添加による SrFeO<sub>3</sub> や Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の電子物性制御を行った。新規電子物性発現を目指して、Ca-窒素-水素からなる複合アニオン化合物の合成に成功し、希土類イオンを添加した物質の光・磁気特性を評価した。有機分子を鋳型とした金属元素集積手法を用いて、原子の数や配列を高度に制御したクラスターの系統的な合成に成功した。人工光合成を促進する Ag/Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 触媒の活性サイトの評価と特性制御を行った。室温で作動するヒドリド系電解質の開発や新規酸水素化物の合成に成功した。

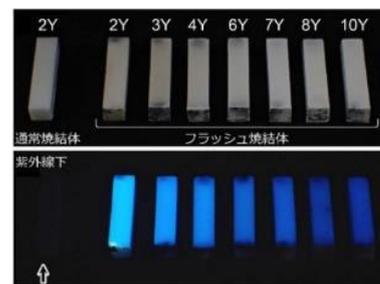


図 11 高電場焼結 YSZ の高機能化

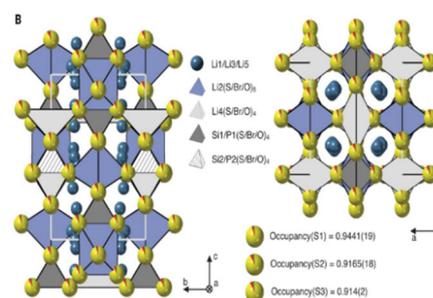


図 12 新規超イオン伝導体の結晶構造

### 高イオン伝導体 Ba<sub>7</sub>Nb<sub>4</sub>MoO<sub>20</sub> 中の隠れた規則性を発見 共鳴X線回折 & 固体NMR & DFT

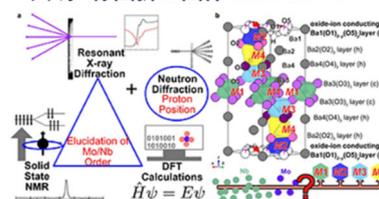


図 13 新規プロトン伝導体の構造決定