二国間交流事業 共同研究報告書

令和6年4月19日

独立行政法人日本学術振興会理事長 殿

[日本側代表者所属機関・部局]
筑波大学・数理物質系
[職・氏名]
教授・西堀 英治
[課題番号]
JPJSBP 120229907

1. 事業名 相手国: デンマーク (振興会対応機関: OP)との共同研究

2. 研究課題名

(和文) 超時間・空間分解能物質構造計測

(英文) Ultra-high spatial and temporal resolution structure study of materials.

3. 共同研究実施期間 2022年4月1日 ~ 2024年3月31日 (2年0ヶ月)【延長前】 年 月 日 ~ 年 月 日 (年 ヶ月)

4. 相手国側代表者(所属機関名・職名・氏名【全て英文】)

Aarhus University・Professor・Iversen Bo Brummerstedt

5. 委託費総額(返還額を除く)

本事業により執行した委託費総額		3,900,000 円
内訳	1年度目執行経費	1,900,000 円
	2年度目執行経費	2,000,000 円
	3年度目執行経費	- 円

6. 共同研究実施期間を通じた参加者数(代表者を含む)

日本側参加者等	9名
相手国側参加者等	2名

* 参加者リスト(様式 B1(1))に表示される合計数を転記してください(途中で不参加となった方も含め、全ての期間で参加した通算の参加者数となります)。

7. 派遣・受入実績

	派遣		受入
	相手国	第三国	
1年度目	4		1 (0)
2年度目	2	2	2 (0)
3年度目			()

* 派遣・受入実績(様式 B1(3))に表示される合計数を転記してください。

派遣: 委託費を使用した日本側参加者等の相手国及び相手国以外への渡航実績(延べ人数)。

受入: 相手国側参加者等の来日実績(延べ人数)。カッコ内は委託費で滞在費等を負担した内数。

8. 研究交流の概要・成果等

(1)研究交流概要(全期間を通じた研究交流の目的・実施状況)

本研究では、デンマーク・オーフス大との国際共同研究により、中型(3GeV)と大型(6~8GeV)の先端放射光施設とX線自由電子レーザー(XFEL)とJ-PARCを含めた国内外の先端量子ビーム施設を利用し、物質合成から破壊挙動までのプロセスを解明する**時間・空間分解能で世界最先端の物質構造計測研究**を推進する。この超精密構造計測により、材料の合成し易さから、疲労・劣化の改善まで含めた材料開発指針の獲得を目指す。この研究を通じて次世代放射光計画(東北3GeV)とSPring-8アップグレード計画(SPring-8-II:6GeV)が実施後に世界トップのレベルの構造研究を推進するための技術と知見を獲得する。実験には、参加者とオーフス大で立ち上げたドイツ Petra-III の装置、オーフス大管理のスウェーデン MAX-IV の DanmaX ビームライン、共同でビームタイムを獲得した SPring-8 を用いる。また、XFEL SACLA と J-PARC についてもマシンタイムを申請し獲得して利用する。放射光、XFEL、中性子が最も威力を発揮する原子スケール構造計測の新境地を国際連携の知を集約して開拓する。

本研究では、先端放射光と XFEL を用いて TiO_2 , SnO_2 などの機能性金属酸化物と Pt 合金等を対象とした、**水熱合成の時分割その場観察**と、**レーザーおよび XFEL 照射による物質破壊その場観察**を行い、物質の生成挙動と破壊挙動の原子スケールでの解明を行う。1)では、それぞれの状態に X 線を照射して得られる回折データを PDF(Pair Distribution Function)構造解析、**3次元(3D) Δ PDF 解析**、粉末 X 線解析、**単粒子シリアルフェムト秒 X 線回折**の複数の先端的な構造解析手法を利用して網羅的に解析し、物質の生成と崩壊の原子スケール構造を実験的に解明する。構造解析での目標は、化学結合のピコメータ精度の決定、粒子形状のサブナノメータ精度の決定であり、分子動力学計算のみならず、第一原理電子状態計算とも比較可能な構造の獲得を目指した。

2022 年度の研究にて開発した SACLA での単粒子シリアルフェムト秒 X 線回折データ解析法については、論文が inpress の状態である。本年度は、開発した手法を利用した利用研究を進める。また、SACLA の共同利用で見出したフェムト秒時分割 PDF 解析に挑戦する。尚、SACLA のマシンタイムは 2023 年 4 月~8 月の期間に確保し、国際共同実験を実施した。また 2024 年 3 月にオーフス大学にてワークショップを開催し日本から 2 名が参加した。

(2)学術的価値(本研究交流により得られた新たな知見や概念の展開等、学術的成果)

最も大きな成果は、X 線自由電子レーザー(XFEL)施設 SACLA においてフェムト秒の時間スケールで測定した酸化ハフニウム(HfO_2)ナノ粒子の X 線散乱データに二体分布関数(PDF)解析を適用した。分解能 $Q_{\text{max}}: \sim 8 \text{ \AA}^{-1}$ の PDF を得たことにある。その XFEL の PDF はドイツ・PETRA III の放射光を用いて得た $Q_{\text{max}}: 20 \text{ \AA}^{-1}$ の PDF と比較して、主な特徴が再現した。XFEL の PDF から決定した格子定数や粒子サイズなどの構造パラメータは信頼できる値を与えた。これらの結果は、実験条件をより最適化すれば、フェムト秒の時間分解能で質の高い PDF が測定できることを示したことを意味する。

この研究の先には、フェムト秒レーザーポンプ・プローブPDF解析による原子スケールの「分子映画」がある。特に、PDF解析は結晶性のない試料に適用可能であるため、その研究対象は飛躍的に拡大する。この意味で、きわめて重要な研究成果である。

(3)相手国との交流(両国の研究者が協力して学術交流することによって得られた成果)

SACLA の実験での国際共同研究は、共同でのデータ解析法の開発につながった。これを受けて、先方の研究者から 2024 年度のオーフス大でのワークショップが開催され、その成果をさらに発展させることが進められている。具体的には、世界で唯一無二の XFEL の短粒子構造解析法とソフトウェアの開発が共同で進んでいる。この成果によって SACLA/SPring-8 基盤開発プログラムを申請中である。

(4)社会的貢献(社会の基盤となる文化の継承と発展、社会生活の質の改善、現代的諸問題の克服と解決に資する等の社会的貢献はどのようにあったか)

物質科学の構造計測の研究であるため、社会生活の質の改善に資するような貢献をすぐに得るには難しいが、スマートフォンなどに大量に搭載されるナノ機能性酸化物のフェムト秒スケールの構造変化を追跡できることが示されたため、高速電子デバイスの動作下での機能理解に向けた観点で進展がみられたといえる。

(5)若手研究者養成への貢献(若手研究者養成への取組、成果)

本事業の経費で国際結晶学連合 (International Union of Crystallography:IUCr) の 2023 年 8 月にメルボルンで開催された IUCr の研究集会 IUCr2023 において、本経費で参加した 2 名の修士の学生林が Quantum Crystallography Prize を受賞した。これは、共同研究成果が国際的に評価されたとみなすことができる。なお、当該学生は、2023 年 10 月には日本結晶学会ポスター賞、2024 年 3 月には筑波大学数理物質科学研究群長賞も受賞した。数多くの受賞から見られるように、きわめて質の高い研究成果を上げ、各方面で高く評価されている。同時に IUCr2023 に参加した学生も、多くの学会や学内の発表会で高い評価を受けている。

(6)将来発展可能性(本事業を実施したことにより、今後どのような発展の可能性が認められるか)

本事業の実施により、XFEL SACLA を基軸とした強固な国際共同研究が構築され、SPring-8/SACLA 基板開発プロジェクトの申請(ヒアリング審査済み)などにつながっている。加えて、事業をもとに申請した筑波大学海外教育研究ユニット招致プロジェクトにも採択された。さらに、来年度から新しい二国間交流事業を実施する予定である。以上のように本事業で XFEL をもちいた構造研究の新境地を開拓したことで、学内、学外様々な方面で研究が発展している。

(7)その他(上記(2)~(6)以外に得られた成果があれば記載してください)

例:大学間協定の締結、他事業への展開、受賞など

この共同研究を足掛かりに、筑波大学海外教育研究ユニット招致プロジェクトに令和 6 年度から3年間採択された。今後、より一層の国際共同研究を進める予定である。受賞については、参加した学生の受賞が(5)に記述したように3件あった。