

MERIT 長期海外派遣報告書

新領域創成科学研究科 物質系専攻

リップマー研究室 博士課程 2 年 川崎聖治

概要

MERIT 長期海外派遣プログラムにより、8 月 12 日から 10 月 30 日の 80 日間、フィンランドの Aalto 大学で、Adam Foster 教授の指導のもと研究を行った。光触媒の反応場である水/光触媒界面の精密な理解を目指し、分子動力学法を用いた理論計算によって SrTiO₃ 表面上の水和構造を分析した。

渡航の経緯

私の研究分野は光触媒であり、光触媒の反応場である水/光触媒界面の精密な理解を目指し、界面の電子状態や水和構造の観察をしてきた。これまで光触媒材料として SrTiO₃ を中心に研究をしており、水と SrTiO₃ の界面には特異な電子状態が形成されること、光照射前後で水和構造が大きく変化すること、等の結果を得ている。しかしながら、結果の解釈は難しく、理解が不十分であることを強く認識していた。そこで、このような長期海外派遣のプログラムを利用して、自分の所属する研究室ではできないような手法を学び、異なる視点から水/光触媒界面について研究を掘り下げてみたいと考えた。滞在先の候補としては、最先端の実験装置を持つ実験系研究室への渡航も考えたが、このようなプログラムだからこそ経験できることをしてみたいと思い、固液界面の理論計算のできる理論系研究室を選定した。近年の計算科学の発展は目を見張るものがあり、計算結果の信頼性や実験結果に対する再現性はますます高まっている。実験科学者がこのような機会に計算科学の世界に身を置き、理論と実験の融合を高める経験は、非常に有意義なものであり、物質科学のリーダー的資質を養う上でも大いに役に立つものと考えた。

Adam Foster 教授は、第一原理計算、分子動力学計算などマルチスケールに固液界面を扱うことができる第一人者であり、今回の目的である固体表面の水和構造についても NaCl や CaF₂, CaCO₃, Mica, p-nitroaniline の固体表面についてこれまで論文を発表しており、固液界面の理論計算をするには最適な研究室であると判断した。私の共同研究者の大西洋教授（神戸大学）とも共同研究の経験のある方であり、大西洋教授からも勧めて頂いた。

留学先での研究

計算科学の経験が全くない状態で理論系研究室に 1 人飛び込んでいくことに心配はあったものの、渡航直後のちょうど良いタイミングで 8 月 18 日から 20 日に実施された分子動力学計算の Summer School に参加する機会があり、これから研究室に所属して理論計算を始める学生たちと共に理論計算の初歩を学ぶことで、よいスタートを切ることができた。

研究では、分子動力学計算により $\text{SrTiO}_3(100)$ 表面上の水和構造をモデル計算した。分子動力学計算は、LAMMPS というプログラム[1]を用いて行った。LAMMPS では、ニュートンの運動方程式を基礎とした古典的な手法により原子の運動をシミュレートする。系を構成する原子座標や結合、原子間のポテンシャルを入力して、系の熱力学アンサンブルを決めれば、シミュレーションが開始する。計算結果に大きく関わってくるのは、原子間のポテンシャルをどのような近似式で表すかという点である。今回の研究対象である水/ SrTiO_3 の計算に当たっては、先行論文[2]を参考にポテンシャルを記述した。まず練習のために、もっとも単純な表面構造である $\text{SrTiO}_3(100)(1 \times 1)$ の表面モデルについて水和構造を検討した。 (1×1) のモデルに関しては、先行の手法をそのまま採用することで、安定な表面モデルを得ることができ、水和構造として妥当な計算結果を得ることができた。しかし、実験では表面再構成によって $\text{SrTiO}_3(100)(\sqrt{13} \times \sqrt{13})$ の表面構造を持つ試料について、水和構造を観測しているので、この表面についてモデル計算をする必要がある。 $(\sqrt{13} \times \sqrt{13})$ の表面は (1×1) に比べてより複雑な構造をとっている。そのため、先行のポテンシャルをそのまま採用しただけでは、安定な表面モデルを得ることができなかった。そこで、原子間ポテンシャルを再検討し、 SrTiO_3 のイオン電荷を微修正することでモデルとして妥当な計算結果を得ることができた(図 1)。

今回の経験を通して、理論系研究の世界に実際に身を置くことで多くのことを学ぶことができた。理論系の論文を読んでもよく理解できないことが多かったが、実際にどうやって計算結果を得ているのかを肌で感じることで、より深く理解できるようになった。

帰国後もコンピューターがあればシミュレーションを続けることができるので、継続して研究を深めていく予定である。

留学先での生活

Adam Foster 研究室は、応用物理学科の Computational Nanoscience (COMP) グループの一研究室であり、滞在したフロアでは理論系の 3 つの研究室が交流し合って研究を進めている。異なる研究室の学生やポストドクが同じ部屋で生活しており、研究室を問わず互いに切磋琢磨し合える環境があった。留学生の受け入れや国際交流も盛んであり、昼食時に様々な国の文化を聞いたりするのは、楽しい経験であった。

理論系研究室では、それぞれの研究者がそれぞれのパソコンに集中し思考を働かせる。自分では解決できないことがある場合には他の研究者に相談したり、計算手法を教え合って研究を進めていくが、実験系の研究よりも個人プレーになりやすい。普段は個人がそれ

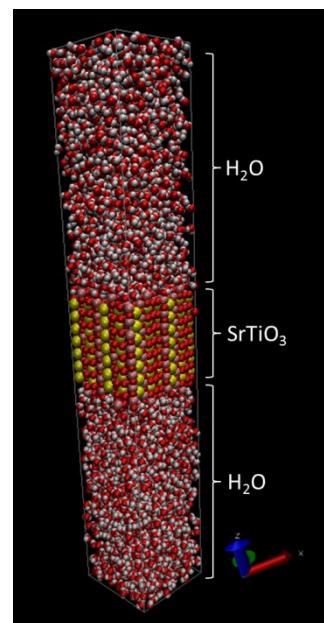


図 1. SrTiO_3 上の水和構造シミュレーション

ぞれの課題に集中して研究を進めているためか、研究室でのコミュニケーションを図る目的で、研究室では毎月一度の飲み会をする文化があった。飲み会では、先生も学生も一緒になってお酒を片手に様々な国のボードゲームを楽しんだ(図 2)。様々な国の人が集まってコミュニケーションを楽しむには、ボードゲームはとても良い方法だと感じた。



図 2. 研究室メンバーとの飲み会



図 3. 自然豊かなフィンランドの森林

フィンランド語の授業に参加する機会もあり、英語でフィンランド語を学ぶという面白い経験もすることができた。コミュニケーションに重きを置いた授業スタイルが組み立てられており、日本の英語教育を見つめ直す良い機会ともなった。

フィンランドは、国土の 70%は森林、10%は湖と非常に自然豊かな国である。休日には森の中を散歩したり(図 3)、湖の側でサウナを楽しんだりフィンランドを満喫することができた。中でも、80°Cのサウナで思いっきり汗をかいて、表層の凍る 0°Cの湖へ裸で飛び込む経験は、エキサイティングなものであった。日本食が恋しくもなったが、サーモンスープやトナカイ肉のソテーは絶品であった。

謝辞

海外派遣のプログラムを提供して下さった MERIT に感謝いたします。留学の受け入れを許可していただいた Adam Foster 教授、研究や生活面でお世話になった研究室の皆様へ感謝いたします。中でも、研究面で多くの指導を頂いた Peter Spijker 博士に心から感謝申し上げます。留学の準備段階でお世話になった神戸大学の大西洋教授、東京大学での指導教官であるリップマーミック准教授に感謝いたします。このような実りある経験ができたことに、この場を借りて感謝を表します。

参考文献

- [1] <http://lammps.sandia.gov/index.html> (LAMMPS)
- [2] S.I. Lukyanov *et al.*, *Surf. Sci.* **611**, 10-24 (2013).