

4-6 物質分子科学研究領域

電子構造研究部門

横山 利彦（教授）（2002年1月1日～2026年3月31日）*）

倉橋 直也（特任助教）

杉山 研嗣（特別共同利用研究員）

栗田 佳子（事務支援員）

A-1) 専門領域：表面科学，X線分光学

A-2) 研究課題：

- a) 雰囲気制御型硬X線光電子分光法の開発と不均一触媒その場観察への応用
- b) X線磁気円二色性などを用いた磁性薄膜の磁気構造解析
- c) X線吸収分光を用いた機能合金の局所構造と熱的性質
- d) X線発光分光による固体高分子形燃料電池の電解質に関する研究

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) SPring-8 BL36XU で我々が開発した雰囲気制御型硬X線光電子分光装置により不均一触媒の反応進行中のオペランド観測を行っている。本設備は NEDO 燃料電池プロジェクトにより導入され、固体高分子形燃料電池（PEFC）電極触媒の in situ 測定を行っていたが、NEDO 終了後は、より一般的な不均一触媒等について対象を拡げて研究を遂行しているものである。
- b) 分子研シンクロトン放射光施設 UVSOR-III BL4B を用いた高磁場極低温X線磁気円二色性法（XMCD）を共同利用公開し、様々な磁性薄膜の磁気特性検討について国内外との共同研究を広く実施している。また、磁性薄膜の原子層毎の磁性を解析するべく軟X線共鳴反射測定技術開発を行っているところである。
- c) X線吸収分光を用いて、強磁性などの機能を発現する合金の局所構造と熱的性質を理論計算を含めて検討している。
- d) 遷移金属リン化合物単結晶・薄膜の触媒活性・磁性に関する研究を行っている。

B-1) 学術論文

J. YAHIRO, S. MITSUI, H. SHIMURA, K. OZAKI, M. NAKADA, M. KUNISU, N. KURAHASHI, H. KIUCHI and Y. HARADA, “Hydrogen-Bonded Structure Analysis of Water Molecules in the Subnanoscale Pores of Reverse Osmosis Membrane,” *Langmuir* **41**(45), 30160–30166 (2025). DOI: 10.1021/acs.langmuir.5c03228

Y. UEMURA, K. YAMAMOTO, Y. NIWA, T. BUTTIENS, H. ELNAGGAR, R. -P. WANG, M. LAZEMI, F. DE GROOT, T. KATAYAMA, M. YABASHI, C. J. MILNE and T. YOKOYAMA, “Electronic and Structural Relaxation of Photoexcited WO₃ Observed by Femtosecond Resonant X-Ray Emission Spectra,” *J. Phys. Chem. Lett.* **16**, 6138–6145 (2025). DOI: 10.1021/acs.jpcclett.5c01062

T. FUJINO, M. HISHIDA, M. ITO, T. NAKAMURA, M. ASADA, N. KURAHASHI, H. KIUCHI, Y. HARADA, K. HARANO, R. MAKIURA, K. J. TAKENO, S. YOKOMORI, H. OIKE and H. MORI, “Macroscopic Structural Transition of Nickel Dithiolate Capsule with Uniaxial Magnetic Anisotropy in Water,” *Adv. Sci.* **12(29)**, 2504967 (2025). DOI: 10.1002/adv.202504967

S. NISHIMURA, N. KURAHASHI, S. SHIOMOTO, Y. HARADA and M. TANAKA, “Effects of Hydration Water on Bioresponsiveness of Polymer Interfaces Revealed by Analysis of Linear and Cyclic Polymer-Grafted Substrates,” *Soft Matter* **20**, 9454 (2024). DOI: 10.1039/D4SM00977K

B-3) 総説, 著書

A. -A. HAGHIGHIRAD, R. ICHIKAWA, T. MIYAMACHI, H. ISHII, S. AKAMATSU, E. MASUI, O. ISHIYAMA, H. IWAYAMA, E. NAKAMURA, T. YOKOYAMA, E. INAMI and T. YAMADA, “STM Imaging and Electronic Correlation in van der Waals Ferromagnet Fe_3GeTe_2 ,” *Jpn. J. Appl. Phys.* **64(4)**, 040805 (2025). DOI: 10.35848/1347-4065/adc7be
横山利彦, 「XAFS の理論」, 「XAFS の基礎と応用」, 日本XAFS 研究会 (太田俊明, 朝倉清高, 畑田圭介, 朝倉博行, 片山真祥, 阿部 仁) 編, 講談社, 2 章, 1, 2, 4, 5 節, 9–23, 60–75 (2025).

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

日本放射光学会評議員 (2024–2026).

文部科学省, 学術振興会, 大学共同利用機関等の委員等

広島大学 放射光科学研究センター協議会委員 (2020–).

その他

文部科学省マテリアル先端リサーチインフラ・スポーク機関「マテリアルの高度循環のための技術」業務主任者 (2021–2031).

文部科学省マテリアル先端リサーチインフラ・運営機構業務「横断技術領域 (物質・材料合成プロセス)」業務主任者 (2022–2031).

B-10) 競争的資金

科研費若手研究, 「テンダー X 線発光分光法によるプロトン伝導性高分子膜の電子状態解析」, 倉橋直也 (2024 年度–2027 年度).

C) 研究活動の課題と展望

2002 年 1 月着任以降, 磁性薄膜の表面分子科学的制御と新しい磁気光学分光法の開発を主テーマとして, 高磁場極低温 X 線磁気円二色性 (UVSOR) や紫外磁気円二色性光電子顕微鏡の発明, 広域 X 線吸収微細構造 (EXAFS) 法と経路積分法によるインバー等磁性合金の熱膨張などで成果を上げてきた。2011 年度から, SPring-8 の超高輝度硬 X 線を利用した燃料電池の in situ 雰囲気制御型硬 X 線光電子分光の開発を行い, 2017 年度には完全大気圧での光電子分光観測に世界で初めて成功した。光電子分光は, 燃料電池中の各構成成分の電位を電極なしに観測可能な有効手法であることを示し, 今後もこれを中心課題に据えた研究を推進する。さらに, 2013 年度からは放射光や X 線自由

電子レーザーを用いた(超)高速時間分解X線吸収法の開発的研究を行ってきた。2022年度は、SPring-8を用いた雰囲気制御光電子分光等を用いた表面化学反応研究、UVSORを利用した共鳴X線磁気散乱による磁性薄膜解析、KEK-PFを用いた合金のEXAFS局所構造解析等を行った。2023年8月16日に着任した前島尚行特任助教は2025年4月に立命館大に助教として転出した。また、2022年12月に着任した倉橋特任助教は2025年7月にQST NanoTerasuに転出した。2024年10月から2025年9月においては、X線自由電子レーザー SACLAにおいてフェムト秒時間分解X線発光分光・高分解能XAFSの開発とこれを用いた光触媒酸化タングステンのポーロン形成以前の電子励起状態の解析、ならびに、新報国マテリアル(株)との共同研究としてステンレスインバー合金の局所熱膨張に関する研究で成果が挙げられた。後者に関してはさらに関連研究を進めているところである。

＊) 2026年3月31日定年退職

杉本 敏樹（准教授）（2018年5月1日着任）

櫻井 敦教（助教）
金井 恒人（特任講師）
斎藤 晃（特任助教）
高橋 翔太（特任助教）
佐藤 宏祐（特任助教）
瀬戸 啓介（特任研究員）
林 仲秋（特任研究員）
酒井広文（特別協力研究員）
望月 達人（大学院生）
金 成翔（大学院生）
吉澤 龍（大学院生）
常川 響（大学院生）
高原 裕大（大学院生）
手塚 玄惟（特別共同利用研究員）
北山 拓（特別共同利用研究員）
吉村 凜士（特別共同利用研究員）
土居 篤史（特別共同利用研究員）
天野 里咲（特別共同利用研究員）
殿元 裕介（特別共同利用研究員）
榊原 隆之（技術支援員）
浦野 宏子（事務支援員）
大久保 麻由佳（事務支援員）

A-1) 専門領域：物理化学，分光学，機能物性化学，表面界面科学

A-2) 研究課題：

- a) 非熱的触媒反応系のオペランド分光と新奇界面現象の発見
- b) 高感度ラマン分光計測法の開発：電子非共鳴・表面プラズモン共鳴から脱却した表面分子吸着系の汎用的ラマン観測の実現
- c) 高次非線形分光法の開発と埋没界面計測への応用
- d) 二次非線形極微分光法の開発と新奇ナノ非線形光学応答現象の発見

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 天然ガス中に豊富に含まれる資源であるメタンを光により活性化し，水素の生成やより高付加価値の分子への返還をエネルギー低消費型の温和な条件で実現する非熱的触媒技術は，持続可能な社会の実現に向けた重要課題である。一般に，酸化物光触媒に担持された金属助触媒は，光誘起電子を補足して還元反応（水素発生）を促進すると考えられてきた。これに対し，我々はメタン・水共存条件下でのオペランド分光により，金属助触媒そのものに注入された光誘起電子ではなく，酸化物と金属助触媒の間の複合界面，特に金属助触媒の縁部にトラップされた光誘起電子こそが高い反応活性を示すことを先駆的に明らかにし，さらに原子間力顕微鏡及びケルビンプローブ力顕微鏡を用いてその活

- 性電子の存在サイトを実空間で特定すること成功した [Sato *et al.*, submitted, *J. Am. Chem. Soc.* **146**, 24800 (2024)]。また、担持する金属種及び担持量に応じて、メタン・水混合系における完全酸化生成物・部分酸化生成物の選択性や反応カインेटクスが大きく変調されることを見出した。これは、「金属助触媒が正孔を補足し酸化反応にも積極的に関与している [Sato *et al.*, *Angew. Chem., Int. Ed.* **62**, e2023060 (2023)]」という我々が禁煙世界に先駆けて提示した新たな描像を速度論的観点からさらに強く裏付ける成果である [Chem. Commun. **61**, 5942 (2025)]。さらに、近年注目される他の非熱的反応場として、直流電流印加触媒によるメタンドライリフォーミング反応にも着目し、オペランド赤外・可視・軟X線分光 (UVSOR) を先駆的に展開した。その結果、半導体エレクトロニクス (電子・正孔) と固体イオニクス (カチオン・アニオンレドックス) の物理が融合した新しい化学反応メカニズムを見出した [Sato *et al.*, *J. Phys. Chem. Lett.* **16**, 12973 (2025)]。加えて、表面分子科学の観点からは、水酸基と分子状吸着水の存在量や水素結合状態を系統的に制御させたオペランド分光実験から、水酸基や強い水素結合ネットワークの存在が光触媒や直流電流印加触媒といった非熱的反応を阻害することを見出し、既存の元素戦略・材料戦略の限界を超えて水素発生反応の更なる活性向上を目指す「界面水エンジニアリング」の指針を提示・実証した [Lin *et al.*, *J. Phys. Chem. Lett.*, submitted]。
- b) 二つの光の差周波の喰りによって分子振動を共鳴励起 (強制振動) させる非線形ラマン分光法に着目し、MHz 高繰返しフェムト秒レーザーを基盤として、時間的に非対称なパルス波形制御とフェムト秒精度の遅延制御を導入した新しい“時間-周波数領域ハイブリッドコヒーレント界面非線形分光法”を開発した。本手法により、従来は電子共鳴やプラズモン共鳴を用いて信号増大しなければ観測が不可能であった表面吸着分子系のラマン振動モードを、汎用的かつ高感度に検出可能とした [T. Sugimoto *et al.*, *Nano Lett.*, submitted]。これにより、金属・絶縁体の表面分子系として Pt(111)・Au(111)・SiO₂(0001) 基板表面に吸着した水分子の超薄膜やサブナノメートル薄さの自己組織化単分子膜の計測に成功した [Yoshizawa *et al.*, submitted, Seto *et al.*, in preparation, Takahara *et al.*, in preparation]。さらに、本分光手法において重要となる ω_3 パルスの時間遅延をフェムト-ピコ秒の超高速領域で系統的に制御することにより、アモルファス材料に特有のブロードで重なり合った振動スペクトルを一意的に成分分解する新たな解析法の開発に成功し、非晶質材料の微視的構造解析と構造機能関連の解明に新しい道を拓いた [特許出願 2025-144216, Yoshizawa *et al.*, in preparation]。さらに本手法をアモルファス氷 (H₂O・CO₂) に吸着した水素分子系の量子回転状態検出に発展させ、低次元束縛回転状態の直接観測に成功した [Oyamada *et al.*, in preparation, Furuya *et al.*, *Astrophys. J.* **1001**, 62 (2026)]。
- c) 和周波発生振動分光法に代表される二次非線形分光法は、空間反転対称性が界面に選択的な強力な計測法である。一方で、振動励起に赤外光を用いるため、赤外光が透過しない物質内部の“埋もれた界面”には適用が難しいという本質的制約があった。この課題を克服するため、物質中透過に優れた二つの光の差周波の喰りで分子振動を共鳴励起 (強制振動) し、それを第二高調波でコヒーレントにアップコンバートする四次非線形界面分光法を新たに開拓している [Kanai *et al.*, in preparation]。複数のフェムト秒パルスを用いる埋没界面の非線形分光においては、バルク物質由来の白色光の異常発生が界面信号観測の主要な妨害要因であったが、我々は相互位相変調効果に着目することでその妨害光の発生を抑制・制御する方法を新たに確立することに成功した [Kanai *et al.*, *Opt. Lett.* **50**, 7087 (2025)]。更に、空間分散を有する広帯域フェムト秒パルスを集光した際の波面回転現象を新たに非線形分光に導入することで、既存の分光法では困難であった、水溶液環境下に埋没した電極材料系の界面を高感度に観測することに成功すると共に、電気化学条件下での界面状態変化をリアルタイムに捉えるオペランド観測にも成果に先駆けて成功した。これにより、電極の劣化挙動の解析から電極の高耐久性の付与指針の提示や、非自明な固液界面分子ダイナミクスを発見するに至った [Kin *et al.*, in preparation, Kanai *et al.*, in preparation, *CLEO/Europe-EQEC, Optica, EI-2.4*. (2025)]。

d) 走査トンネル顕微鏡 (STM) と和周波発生振動分光法を組み合わせ、空間反転対称性が破れた表面界面系における極性分子凝集系の機能発現のカギを握る up/down 配向構造を光の回折限界を超えたナノ空間分解能で観測可能とする探針増強和周波発生振動分光法の開発に世界に先駆けて成功した [Sakurai *et al.*, *Nano Lett.* **25**, 6390 (2025), Takahashi *et al.*, *J. Phys. Chem. C* **130**, 373–385 (2026), *Phys. Rev. Lett.* **134**, 206901 (2025)]。更に、本手法の高度化として、STM の局所電場変調によりナノギャップ近接場和周波信号を飛躍的に増大する新技術を開発し [Takahashi *et al.*, *Nature Commun.* **17**, 2012 (2026)], 加えてフェムト秒時間分解能を有する局所位相敏感ダイナミクス計測法の構築 [Sakurai *et al.*, *J. Chem. Phys.* **164**, 074202 (2026), Featured Article], 及びより高次の非線形信号の探針増強検出に世界初で成功した [Sakurai *et al.*, in preparation]。また、従来困難と考えられていた Pt や Ni などの非プラズモニック基板表面上の分子系に対しても本探針増強分光が可能性であることを実証し [Mochizuki *et al.*, in preparation, 講演奨励賞受賞 (望月達人), 第 23 回日本表面真空学会中部支部若手講演会], 探針先端ので生じる極限的な光電場増強現象を分子の量子状態制御へ応用する新しいナノフォトニクス研究にも着手すると共に [Takahashi *et al.*, in preparation], 通常の遠隔場分光では達成不可能であった高励起振動状態の生成にも成功した [Mochizuki *et al.*, submitted]。

B-1) 学術論文

A. SAKURAI, S. TAKAHASHI, T. MOCHIZUKI, T. HIRANO, A. MORITA and T. SUGIMOTO, “Tip-Enhanced Sum Frequency Generation Spectroscopy Using Temporally Asymmetric Pulse for Detecting Weak Vibrational Signals,” *J. Chem. Phys.* **164**(7), 074202 (2026). DOI: 10.1063/5.0310824

S. TAKAHASHI, A. SAKURAI, T. MOCHIZUKI and T. SUGIMOTO, “Giant Near-Field Nonlinear Electrophotonic Effects in an Angstrom-Scale Plasmonic Junction,” *Nat. Commun.* **17**, 2012 (2026). DOI: 10.1038/s41467-026-68823-4

S. TAKAHASHI, K. KUMAGAI, A. SAKURAI, T. MOCHIZUKI, T. HIRANO, A. MORITA and T. SUGIMOTO, “Tip-Enhanced Sum-Frequency Vibrational Nanoscopy beyond the Diffraction Limit,” *J. Phys. Chem. C* **130**(1), 373–385 (2026). DOI: 10.1021/acs.jpcc.5c05411

T. KANAI, C. X. JIN, H. TSUNEKAWA, A. SAKURAI and T. SUGIMOTO, “Dramatic Enhancement of Supercontinuum Generation in H₂O by Non-Harmonic Two-Color Excitation,” *Opt. Lett.* **50**(22), 7087–7090 (2025). DOI: 10.1364/OL.575734

H. TEDZUKA, H. SAITO, N. MATSUMOTO, M. NAGASAKA, H. SATO, Y. SEKINE and T. SUGIMOTO, “Nonthermal Catalytic Origin in DC-Enhanced Dry Reforming of Methane Unveiled by Multimodal Operando Analyses,” *J. Phys. Chem. Lett.* **16**, 12973–12981 (2025). DOI: 10.1021/acs.jpcclett.5c03159

A. SHIOTARI, S. LIU, G. TRENINS, T. SUGIMOTO, M. WOLF, M. ROSSI and T. KUMAGAI, “Picocavity-Enhanced Raman Spectroscopy of Physisorbed H₂ and D₂ Molecules,” *Phys. Rev. Lett.* **134**(20), 206901 (2025). DOI: 10.1103/PhysRevLett.134.206901

A. SAKURAI, S. TAKAHASHI, T. MOCHIZUKI and T. SUGIMOTO, “Tip-Enhanced Sum Frequency Generation for Molecular Vibrational Nanospectroscopy,” *Nano Lett.* **25**(16), 6390–6398 (2025). DOI: 10.1021/acs.nanolett.4c06065

B-3) 総説, 著書

T. SUGIMOTO, “Bridging Ideal Model Surfaces and Practical Material Surfaces: Unveiling Reaction Field of Photocatalytic Water-Splitting Hydrogen Evolution via Operando Infrared Spectroscopy,” *Vac. Surf. Sci.*, **68**(4), 218–225 (2025). DOI: 10.1380/vss.68.218 (in Japanese)

B-4) 招待講演

杉本敏樹,「次世代表面・界面科学の開拓に向けたオペランド分光の新展開・非線形分光計測の限界突破」, 東京大学物性研究所短期研究会「現代表面科学の到達点とフロンティアを超えて」, 柏, 2026年2月.

杉本敏樹,「非線形分子分光計測の限界突破:遠隔場から近接場へ」, 表面界面スペクトロスコピー, 湘南, 2025年12月.

櫻井敦教,「探針増強非線形分光の開発と和周波発生分光への挑戦」, 新領域開拓課題「一分子の科学」合同合宿セミナー, 長柄町, 2025年10月.

櫻井敦教,「探針増強非線形分光の開拓と振動和周波発生分光法への展開」, 第9回日本表面真空学会若手部会研究会, つくば, 2025年10月.

杉本敏樹,「非線形分子分光分析の限界突破:近接場和周波発生振動分光の新展開」, 日本分析化学会第74年会, 札幌市, 2025年9月.

杉本敏樹,「探針増強型近接場非線形分光の新展開:次世代界面分子観測と巨大非線形ナノエレクトロフォニクスの開拓」, 第28回プラズモニク化学シンポジウム, 東京, 2025年6月.

T. SUGIMOTO, “Innovations in Sum-Frequency Generation Vibrational Spectroscopy of Interfacial Molecular Systems: From Far-Field to Near-Field,” The 2nd International Symposium on Molecular Materials for Future International Workshop on Molecular Materials, Sendai (Japan), September 2025.

T. SUGIMOTO, “Advancing Second-Order Nonlinear Sum-Frequency Generation Vibrational Spectroscopy from Far-Field to Near-Field,” 15th Asia-Pacific Conference on Near-field Optics, Bali (Indonesia), August 2025.

T. SUGIMOTO, “Probing Interfacial Molecular Structures on Metal Surfaces: Advances in Sum-Frequency Generation from Far-Field to Near-Field,” The 82nd Okazaki Conference “Recent Advances and Perspectives of Interfacial Materials and Molecular Sciences Lead by Next-Generation Laser Techniques and Computational Science,” Okazaki (Japan), July 2025.

A. SAKURAI, “Tip-Enhanced Sum Frequency Generation for Detecting Weak Vibrational Signals Using a Temporally Asymmetric Pulse and Self-Heterodyne Detection,” Spins on Surfaces and Light-Matter Interaction—Satellite Workshop to STM’25, Seoul (Korea), July 2025.

B-6) 受賞, 表彰

櫻井敦教, 原子・分子・光科学 (AMO) 討論会第12回ポスター発表賞 (2025).

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

日本表面真空学会若手部会幹事 (2018–).

分子科学会運営委員 (2020–).

その他

分子科学若手の会夏の学校分子科学研究所対応者 (2018–).

B-8) 大学等での講義, 客員

理化学研究所, 客員研究員, 2021年4月–2027年3月.

理化学研究所, 客員研究員, 2021年4月–2027年3月. (櫻井敦教)

総合研究大学院大学先端学術院, 講義「基礎光科学」, 2025年7月–2025年10月.

B-10) 競争的資金

科研費基盤研究(B), 「探針増強を用いた振動和周波発生分光法の実現と表面分子科学の開拓」, 櫻井敦教 (2023年度–2026年度).

科研費挑戦的研究(萌芽), 「少数分子の配向を検出可能にする新規振動和周波発生分光法の創出」, 櫻井敦教 (2024年度–2025年度).

科学技術振興機構ACT-X研究(受託研究), 「光触媒表面の反応場設計を拓く光誘起活性種のアナログ分光」, 斎藤 晃 (2024年度–2025年度).

科研費基盤研究(B), 「zepto秒原子・分子・素粒子物理学のための中赤外レーザー駆動X線分光システムの開発」, 金井恒人 (2024年度–2025年度).

科研費若手研究, 「オペランド分光計測に基づく光触媒表面反応の微視的理解と機能創出」, 斎藤 晃 (2025年度–2027年度).

科学技術振興機構CREST研究(受託研究), 「in-situ 高次非線形分光によるアップサイクリング反応場観測」(代表者: 斎藤 進), 杉本敏樹(共同研究者) (2022年度–2027年度).

早稲田大学環境省委託事業「地域資源循環を通じた脱炭素化に向けた革新的触媒技術の開発・実証事業」(受託研究), 「革新的多元素ナノ合金触媒・反応場活用による省エネ地域資源循環を実現する技術開発(非在来型触媒反応による次世代プロセス開発と学理構築)」(代表者: 関根 泰), 杉本敏樹(共同実施者) (2022年度–2029年度).

科学技術振興機構創発的研究支援事業(受託研究), 「次世代アクアナノ界面機能化学を拓く高次非線形分子分光」, 杉本敏樹 (2023年度–2025年度).

科研費学術変革領域研究(A), 「イオン渋滞現象の解明に向けた高度計測技術の統合利用」(代表者: 中村崇司), 杉本敏樹(研究分担者) (2024年度–2028年度).

科学技術振興機構経済安全保障重要技術育成プログラム(K Program)研究開発構想(個別研究型)「輸送機等の革新的な構造を実現する複合材料等の接着技術」, 「革新的軽量構造を実現する複合材接着技術に関する研究開発とその学理構築」(代表者: 岡部朋永), 杉本 敏樹(研究分担者) (2025年度–2030年度).

科学技術振興機構K Program(受託研究), 「in-situ 非線形分光による界面凝集構造評価」(代表者: 田中敬二), 杉本敏樹(研究分担者) (2025年度–2026年度).

C) 研究活動の課題と展望

これまで当研究室では, 表面界面系の分子計測法の限界突破を目指し, 従来の手法では困難であった3つの課題に真正面から挑戦してきた。第一に, 「プラズモン共鳴や電子共鳴に依存せず, 表面界面少数分子系に対しても汎用的に振動分光計測を可能とする新しい非線形分光計測法の開発」, 第二に「光の回折限界を超えたナノスケール空間で表面・界面分子系を観測する極微非線形分光法の開発」, 第三に「オペランド分光法の開拓による光触媒微粒子をはじめとする複雑系・実材料系の表面界面分子科学の開拓」に取り組んできた。2018年5月の当研究室が発足以来, こ

れら3つの基軸に沿って進めてきた分野先導的研究は着実に成果として結実し、現在は、各分野においてさらなる飛躍につながる新現象の発見や新展開のフェーズに移りつつある。その進展は、競争的資金の獲得、国際的な成果発信、若手研究者の育成、共同研究の拡大という形で高いレベルで実を結んできている。

加えて、表面・界面分光分野における国際会議(岡崎コンファレンス)の企画・開催を通じて、国内外の第一線研究者と次世代研究者が集う議論と連携の場を形成し、日本発の研究潮流を発信する当該分野の拠点としての存在感を高めてきている。研究成果の創出にとどまらず、分野全体の発展を牽引する学術コミュニティ形成にも貢献している。今後は、これまで独立に発展・挑戦してきた上記3つの研究機軸をより高度に融合し、従来の実験手法で開拓が困難であった未踏の表面・界面領域や実材料・複雑系界面における新たな分子科学の創成を力強く推進する。また、こうした先端的計測研究を産学官の緊密な連携のもとで発展・応用し、「表面界面エンジニアリング」および「界面分子戦略」に基づく革新的な材料創製・新技術創出に向けた大きな原動力・研究潮流を作り出す。これにより、環境・エネルギー分野をはじめとする人類社会が直面する重要課題の解決に貢献していく。

電子物性研究部門

清水 亮太（教授）（2025 年 4 月 1 日着任）

LUSTIKOVA, Jana（特任講師）

野田 彩加（事務支援員）

A-1) 専門領域：無機固体化学，表面・界面科学，固体電気化学，マテリアルズインフォマティクス

A-2) 研究課題：

- a) 金属水素化物における固体内水素の科学と荷電状態制御による新奇物性探索
- b) 薄膜モデル界面を用いた全固体電池の動作機構解明
- c) 実験自動・自律化による研究スタイルの革新

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 金属水素化物だけでなく，水素化物イオンに異種アニオンを複合した複合アニオン水素化物を薄膜状に非平衡合成し，その基礎学理構築と物性の探索を行っている。とりわけ，固体内の水素の荷電状態・結合状態に着目し，現時点で，光・熱による可逆的な物性変調を実現し，さらなる展開に向けて，電場や電気化学的な応答も含めた複合外場応答を探索している。
- b) 大気非曝露系における薄膜型全固体 Li 電池の作製と評価を進めてきたが，現在その対象をフッ化物イオン電池に拡張し，その動作機構の解明と電池特性の飛躍的な向上を目指している。電極・固体電解質の薄膜合成技術を確立し，多層膜化によるデバイス動作を進めている。
- c) 薄膜材料を対象とし，機械学習とロボット技術を組み合わせた「物質合成・評価・次の候補予測」のサイクルを自律的に繰り返す装置を開発してきた。現在は自動化の技術を拡張し，様々な評価系への導入と統合，新しい合成系の開発を進めている。

B-1) 学術論文

T. OZAWA, R. SHIMIZU, I. HARAYAMA, T. HITOSUGI, D. SEKIBA and K. FUKUTANI, “Observation of Proton Tunneling Correlated with Phonons and Electrons in Pd,” *Sci. Adv.* **11(47)**, 1–7 (2025). DOI: 10.1126/sciadv.ady8495

C. ZHU, S. KOBAYASHI, Y. SUGISAWA, F. WEBER, K. H. LIN, M. KITAMURA, K. HORIBA, H. KUMIGASHIRA, K. NISHIO, R. SHIMIZU, D. SEKIBA, T. HITOSUGI and R. BERGER, “Space Charge Layer Evolution in All-Solid-State Batteries Probed via Operando Kelvin Probe Force Microscopy and Nuclear Reaction Analysis,” *ACS Nano* **19(45)**, 39062–39075 (2025). DOI: 10.1021/acsnano.5c10125

R. UEDA, T. SUDARE, R. SHIMIZU, K. NISHIO, R. NAKAYAMA, Y. MIURA, K. KANEKO, N. YAMADA and T. HITOSUGI, “Anatase TiO₂(112) Epitaxial Thin Films Grown by Mist Chemical Vapor Deposition,” *Cryst. Growth Des.* **25(21)**, 9086–9091 (2025). DOI: 10.1021/acs.cgd.5c00986

N. KISHI, S. SHINOHARA, Y. SUGISAWA, K. YAMAMOTO, S. KOBAYASHI, R. SHIMIZU, T. HITOSUGI and D. SEKIBA, “Application of $^7\text{Li}(p, \alpha)^4\text{He}$ NRA for Thin Film Type All-Solid-State Li Battery; Reinvestigation of $^7\text{Li}(p, \alpha)^4\text{He}$ Cross-Section and Optimization of Experimental Arrangement,” *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B* **566**, 165787 (2025). DOI: 10.1016/j.nimb.2025.165787

K. NISHIO, A. AIBA, K. TAKIHARA, Y. SUZUKI, R. NAKAYAMA, S. KOBAYASHI, A. ABE, H. BABA, S. KATAGIRI, K. OMOTO, K. ITO, R. SHIMIZU and T. HITOSUGI, “A Digital Laboratory with a Modular Measurement System and Standardized Data Format,” *Digital Discovery* **4**(7), 1734–1742 (2025). DOI: 10.1039/d4dd00326h

S. KOBAYASHI, N. ZETTSU, K. NISHIO, R. SHIMIZU, T. IMABORI, Y. SAITO, K. TESHIMA and T. HITOSUGI, “Solid Thin-Film Battery Using a Densely Packed $\text{LiNi}_{0.5}\text{Mn}_{1.5}\text{O}_4$ Crystal Layer,” *ACS Omega* **10**(16), 16073–16078 (2025). DOI: 10.1021/acsomega.4c09393

R. ZHENG, S. KOBAYASHI, M. OGAWA, H. KATSURAGAWA, Y. WATANABE, J. DENG, R. NAKAYAMA, K. NISHIO, R. SHIMIZU, Y. TATEYAMA, M. MORIYA and T. HITOSUGI, “Investigating the Interface of $\text{Li}\{\text{N}(\text{SO}_2\text{F})_2\}(\text{NCCH}_2\text{CH}_2\text{CN})_2$ Molecular Crystal Electrolytes for 5 V Class Solid-State Batteries,” *ACS Appl. Mater. Interfaces* **17**(14), 21951–21957 (2025). DOI: 10.1021/acsami.4c22076

T. SUDARE, H. XU, R. NAKAYAMA, R. UEDA, R. NAITO, R. SHIMIZU, Y. MIURA, K. KANEKO, N. YAMADA and T. HITOSUGI, “Extremely Low Electrical Contact Resistance at the Interface of Carbon-Fiber-Based Gas Diffusion Layer and Anatase TiO_2 Thin Films,” *ACS Appl. Electron. Mater.* **7**(7), 2785–2792 (2025). DOI: 10.1021/acsaelm.4c02236

B-3) 総説, 著書

安藤康伸, 清水亮太 (分担執筆), 「計測の自動化で拓ける世界」, 「走査プローブ顕微鏡／分光法 第2版 (表面分析技術選書)」, (公社) 日本表面真空学会編, 2.4章 (2025).

B-4) 招待講演

清水亮太, 「ラボオートメーションの動向と勘所～表面・真空関連の実例を交えて～」, 表面科学セミナー 2026 「実践！インフォマティクスと自律計測の基礎と応用」, 東京, 2026年3月.

清水亮太, 「物質科学における オートメーション・オートノマス型実験：現状とクラウドラボ化への展望」, 共創戦略統括本部企画「ラボオートメーションの現在と未来」, 岡崎, 2026年2月.

清水亮太, 「大学共同利用機関における AI・ロボット駆動型ラボシステムとは」, JAIMA-CORE 共催シンポジウム 2026, オンライン開催, 2026年2月.

清水亮太, 「化学のスマートラボ化：入門編」, CSJ 化学フェスタ 2025, 東京, 2025年10月.

R. SHIMIZU, “Hydrogen Charge-State Tuning in Metal-Hydride Thin Films and Application of an Autonomous Thin-Film Growth System,” TACT2025 International Thin Films Conference, Taipei (Taiwan), October 2025.

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

データ駆動型材料科学研究会講師 (2026–2027).

文部科学省、学術振興会、大学共同利用機関等の委員等

日本学術振興会 R073 先端計測分析技術の未来創成委員会委員 (2025-).

次世代ナノプローブ技術委員会庶務幹事 (2023-).

理科教育活動

「科学三昧 in あいち 2025」指導助言 (2025).

その他

講演／パネルディスカッション「オートノマスラボトリ G の成果」JASIS (分析機器・科学技術総合展)2025「MEEP 公開シンポジウム」(2025).

B-10) 競争的資金

科研費学術変革領域研究(A),「イオン流の非平衡性と集団運動の理解による材料デザイン変革」(代表者:一杉太郎), 清水亮太(研究分担者)(2024年度-2028年度).

科研費学術変革領域研究(A),「イオン渋滞学に基づく新物質創製と機能開拓」(代表者:小林玄器), 清水亮太(研究分担者)(2024年度-2028年度).

科研費基盤研究(B),「エピタキシャルフッ化物薄膜電池のモデル界面を活用したフッ素の輸送機構解明」, 清水亮太(2022年度-2025年度).

科学技術振興機構革新的GX 技術創出事業(基金)(GteX 受託研究),「ハイスループット成膜装置の立ち上げ」(代表者:齋藤寛之), 清水亮太(研究分担者)(2025年度).

C) 研究活動の課題と展望

2025年4月に着任し、新しくラボを立ち上げている。研究活動a) 水素化物関係においては、小スケールでも物質合成が可能であり物性探索を進めている。水素は電子数が極めて少ないためプローブするのが難しい元素であり、局所構造や結合状態の解明に向けては大規模施設利用における共同研究者との連携を進めている。研究活動b) フッ化物イオン電池においては、大気非曝露が大原則であり、試料の搬送システムやデバイスのパターニングなどを一から再構築している。湊丈俊主任研究員と所内連携を進めており、電池の評価系の構築や、走査型プローブ顕微鏡を駆使した電極反応の in-situ 微視的観察を進める予定である。研究活動c) 実験自動・自律化においては、共同研究先となる他機関の大型設備の開発に参画しており、水素吸蔵材料等のハイスループット探索を進めている。自動化が進むことで、原材料を莫大に消費することにも直面しており、少量の原料による大規模実験が可能な合成・評価系の構築を今後進めなければならない。

取り扱う物質系や評価系は大気環境では安定に存在できないものも多く、真空やグローブボックス環境などによる操作を必要とするものが大半である。このことは、直接的な実験操作ではなく、間接的あるいは遠隔的な実験操作が多いことも意味しており、自動化プロセスを導入する契機であると考えている。実験規模に見合ったコストによるプロセスの自動化と、各操作をシームレスに接続した「ボトルネックのない全自動化」を目指す。

篠北 啓介（准教授）（2025 年 1 月 1 日着任）

坂田 諒一（助教）

呉 柊斗（大学院生）

野田 彩加（事務支援員）

A-1) 専門領域：半導体光物性，原子層科学

A-2) 研究課題：

- a) 原子層ナノ材料の構造制御と精密積層技術の確立
- b) 原子層ナノ構造における光物性制御と光機能の創出

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 原子層ナノ材料の精密作製技術をさらに発展させた。PPC や PVC などのポリマーを用いた積層技術を新たに確立し、試料作製の精度と再現性を大幅に向上させた。また、SHG マッピング測定に偏光測定機能を追加し、試料の対称性評価の高度化を実現した。協奏分子システム研究センターの山本教授グループとの連携により、原子層材料への分子吸着手法を習得し、対称性制御の新たなアプローチを確立した。さらに、メゾスコピック計測研究センターの熊谷崇准教授グループに高品質な試料を提供し、共同研究を推進した。加えて、クリーンルームにおけるナノ構造のシリコン基板上への作製技術を確立し、ナノ構造と原子層材料を組み合わせた研究の基盤を整えた。
- b) シリコンナノ球と原子層材料を組み合わせたハイブリッド構造の SHG 特性を明らかにした。さらに、シリコンナノ球をヘテロ構造に応用し、新たな光学特性の開拓を進めている。また、分子を吸着させた二層遷移金属ダイカルコゲナイド試料の光学測定を行い、分子吸着によって反転対称性が破れ、光学応答が大幅に変化することを見出した。この結果は、分子吸着による対称性制御が非線形光学応答の制御に有効であることを示しており、新たな光機能創出への道を拓くものである。

B-1) 学術論文

S. ASADA, K. SHINOKITA, K. WATANABE, T. TANIGUCHI and K. MATSUDA, “Nonlinear Photovoltaic Effects in Monolayer Semiconductor and Layered Magnetic Material Hetero-Interface with P- and T-Symmetry Broken System,” *Nat. Commun.* **16**(1), 4827 (2025). DOI: 10.1038/s41467-025-58918-9

F. YANG, W. IDEHARA, K. TANAKA, K. SHINOKITA, H. ZHAO and K. MATSUDA, “Autonomous Robotic Mechanical Exfoliation of Two-Dimensional Semiconductors Combined with Bayesian Optimization,” *ACS Nano* **19**(45), 39005–39013 (2025). DOI: 10.1021/acsnano.5c08516

H. WANG, K. SHINOKITA, K. WATANABE, T. TANIGUCHI, S. KONABE and K. MATSUDA, “Direct Identification of Valley Coherence and Its Manipulation in Monolayer Two-Dimensional Semiconductor,” *ACS Nano* **19**(23), 21484–21491 (2025). DOI: 10.1021/acsnano.5c02659

Y. XIANG, K. SHINOKITA, K. WATANABE, T. TANIGUCHI and K. MATSUDA, “Magnetic Brightening and Its Dynamics of Defect-Localized Exciton Emission in Monolayer Two-Dimensional Semiconductor,” *Sci. Adv.* **11**(23), eadr5562 (2025). DOI: 10.1126/sciadv.adr5562

D. MURASE, K. SHINOKITA, Y. WAKAFUJI, M. ONODERA, T. MACHIDA, K. WATANABE, T. TANIGUCHI, J. BI, Z. ZHOU, S. ZHAO and K. MATSUDA, “All Dry Transfer Processes Utilizing Au Exfoliation for Predetermined Shapes of Transition Metal Dichalcogenide,” *Langmuir* **41(16)**, 10099–10107 (2025). DOI: 10.1021/acs.langmuir.4c04629

B-4) 招待講演

篠北啓介, 「ナノ構造制御で拓く原子層半導体の光科学」, 2025年度日本分光学会北海道支部シンポジウム, 北海道大学, 札幌, 2026年3月.

篠北啓介, 「二次元半導体の光機能制御: モアレ励起子からナノフォトニクス増強」, 2025年度「一分子の科学」研究会, 理化学研究所鈴木梅太郎記念ホール, 和光, 2026年2月.

篠北啓介, 「ファンデルワールスエンジニアリングによる二次元半導体の光機能制御」, 日本物理学会第80回年次大会, 東広島, 2025年9月.

B-7) 学会および社会的活動

学会の組織委員等

第38回マイクロプロセス・ナノテクノロジー国際会議(MNC2025)論文委員会委員(2025).

理科教育活動

出前授業「進路講演会」愛知県立岡崎北高等学校(2025). (坂田諒一)

B-10) 競争的資金

科学技術振興機構創発的研究支援事業(基金)(受託研究), 「半導体モアレ超構造を用いた量子電磁力学の創生」, 篠北啓介(2024年度–2025年度).

科研費基盤研究(B), 「モアレ超構造による双極子集団制御と新規量子光学現象の開拓」, 篠北啓介(2025年度–2027年度).

C) 研究活動の課題と展望

- a) これまでに確立した積層技術と分子吸着手法をさらに発展させ, 原子層ヘテロ構造の対称性をより精密に制御する技術の構築を目指す。特に, 分子吸着による反転対称性の制御を体系的に理解し, モアレ周期と対称性を設計した構造の創製に取り組む。また, クリーンルームで確立したナノ構造作製技術を活かし, シリコンナノ構造と原子層材料を組み合わせた新たなハイブリッド構造の作製手法を開拓する。
- b) ナノ構造と遷移金属ダイカルコゲナイドを組み合わせ, 従来にない光学応答の発現を目指す。シリコンナノ構造による光の閉じ込め効果を活用した非線形光学応答の増強に取り組むとともに, 分子吸着による対称性制御を非線形光学測定と組み合わせ, 対称性の破れに起因する新奇な光物性の探索を進める。これらを通じて, 原子層材料を基盤とした新たな光機能の創出につなげる。

分子機能研究部門

西村 勝之（准教授）（2006 年 4 月 1 日着任）

横田 光代（事務支援員）

A-1) 専門領域：固体核磁気共鳴，構造生命科学

A-2) 研究課題：

- a) 新規 ^1H 同種核間磁気双極子相互作用デカップリング法の開発
- b) マジック角試料回転下での新規同種核間磁気双極子相互作用リカップリング法の開発
- c) 独自固体 NMR プローブのための要素技術の開発

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 高分解能 ^1H スペクトルを得るための新規 ^1H 同種核間磁気双極子相互作用デカップリング法の開発を行っている。昨年度までとは異なり，オフレゾナンス照射に基づく既存の ^1H 同種核間磁気双極子相互作用デカップリング法に関して，位相変調を適用したモジュールを組み合わせたスーパーサイクルにより，既存の同手法の問題点であったオフセット依存的不完全性の消去を実現した。
- b) ^{13}C 核のような希薄核に関して，連続的に位相変調させた低出力パルスを高速 MAS 下で回転周期に同期して照射することにより，同種核間磁気双極子相互作用をリカップリングする新規手法の開発を行い，理論的計算まで完了した。
- c) 現在使用している Bruker 社製分光器，および周辺機器と完全互換性を有する独自の固体 NMR プローブの開発を行ってきた。この目的の為，4mm 試料管を対象とした自作のスピンングモジュールを開発してきた。Bruker 社製プローブに設置可能な互換型モジュールの第 5 世代版を開発した。昨年度開発を開始した 2.5mm 試料管用独自スピニングモジュールの最適化と並行して，1.9mm 試料管用独自スピニングモジュールの開発を行った。昨年同様，ベアリング部の最適化のみが残っている状態であり，モジュールとしては完成した。これらモジュールに最適化した独自の 600 MHz 固体 NMR プローブを開発している。

C) 研究活動の課題と展望

独自開発プローブのための要素開発として，最難関のスピンングモジュールの開発を行ってきたが，4mm 試料管用モジュールで市販品を超えた最高回転周波数を独自条件で達成できた。現状の設計で，同一試料管外径で世界最高速を達成している。同研究分野ではより高速回転可能な 1 mm 以下の外径の試料管用モジュール開発が最もホットな領域である。これまでの 4mm 試料管用モジュールの開発で得られた知見を用いて，Bruker 社製試料管と互換性のある 2.5mm，1.9mm の回転モジュールの開発をほぼ完了し，最適化中である。今後 1.9mm，および 1.3mm の試料管，さらに 1.3mm の回転モジュールの開発を予定している。

一方，固体 NMR 測定では，これまで分光器のエア配管の鋭利な刃物による連日の切断などのセキュリティ問題があったため，監視カメラを設置しており，物理的な被害はその後確認されていない。しかし，測定では，パルスプログラムと異なる強度，位相でのパルス照射が観測され，制御ワークステーションの不可思議な挙動が観測されており，制御ワークステーションへのサイバー攻撃が強く示唆される状況にあるため，測定を停止していた。これらの問題に

対処するため、2024年2月に中国へ渡航し、国際共同研究を開始したが、国際共同研究代表者の他機関への転出により中止を余儀なくされた。2025年度に入り国内共同研究先を確保した。

また、私のPC使用時にもネットワーク、およびPCの不可思議なトラブルが多発し、ネットワーク管理室に連絡すると共に所長へも報告してきたが、多くの事象について問題解決には至らず、日々深刻化している。これらもワークステーション同様のサイバー攻撃が強く示唆されるが、所からの十分な対応は得られていない。以上の状況から、研究継続を実現するために本年度はこのサイバー攻撃に用いられている無線電波(同定、解析済み)を遮断するシールドルームを導入した。3日間にわたる作業の最終日に業者と西村双方で性能検証の測定をしたが、室内で3.152 GHzの強い電波が双方の機器で観測された。この為、シールドルーム内への盗聴、盗撮機器の設置、またはシールドルームの一部破壊のどちらかが疑われた。この行為には入室が必要であり、監視カメラの録画映像の改ざんが必要である。同ファイルの専門家による解析により、これまでの犯罪行為の存在も含めて明らかになると期待している。