

第一原理計算の注意点

–アルミニウム粒界のエネルギー収束性を例に–

Energy convergency of the first principles calculations on Al boundary

西谷滋人 (Shigeto R. Nishitani)¹, 大澤一人 (Kazuhito Ohsawa)², and 山本洋佑 (Yosuke Yamamoto)³

¹ 関西学院大学理工学部情報科学科 (三田市). Department of Informatics, Kwansei Gakuin University(Sanda-shi, Hyogo).

² 九州大学応用力学研究所 (春日市). Research Institute for Applied Mechanics, Kyushu University(Kasuga-shi, Fukuoka).

³ Sky Grid 合同会社 (大阪市) . Sky Grid LLC.(Osaka-shi, Osaka).

1 はじめに

「初めまして、お世話になっています。」2018年の夏休み前からいろいろなところで、こんな挨拶を西谷は受けます。特に材料系の学会で。これは、2011年から私の homepage で公開しています『はじめての VASP 原理から使用法、適用例まで』[1] が Google の検索でごく最近上位に入ってきて、第一原理計算の VASP を始める初学者が参照してくれているためようです。ただ、研究室での使用を前提としているので、図が空白のままだったりします。編集委員からこの連載のお話をいただいたときに、ちょうどその文書の抜けた箇所が気になっていたもので、そのあたりを詳しく解説する内容にしました。

最近、Mg の LPSO の生成機構や Al と Cu の小傾角粒界エネルギーを計算しています。そこで間違った値で議論してしまった失敗を通じて第一原理計算の注意点をお伝えします。スパコンを利用した VASP の巨大計算で得られた結果をふんだんに盛り込んで解説します。最重要点は「系の原子サイズが変わるときは注意せよ」です。

2 バンド計算の基礎

近年、VASP をはじめとする現実系のエネルギーと力を高精度、高速に求めるバンド構造計算パッケージが手軽に利用できることで、固体を対象とする実験研究者もツールとして多用されていることと思う。逆に、計算パッケージで得られるトータルエネルギーの信頼性を、気にしている研究者も多いだろう。

私が失敗したのもこの辺りである。なので、第一原理計算でどうやってエネルギーを計算しているかというバンド計算の基礎事項のおさらいから始める。既知の事項は読み飛ばしていただきたい。

2.1 原子系と太陽系のメタファ

最近のネットの解説（私も含めて）は中途半端で理解できない記述が多いが，教科書は非常に良いものが出てきていて，初学者や学び直す人には電子構造計算を理解するに十分な知識を与えてくれる．古い波動の教科書では扱われていないシュレディンガー方程式の導出や，意味，分散関係の基本などの「波動」からの基礎知識に関しては，Fleisch-Kinnaman[2] がわかりやすい．もっとバンド計算の具体的な原理に近いところでは，Grosso-Parravicini[3] が出色である．この辺りをさわりながら，第一原理計算が何をしているかを簡単にまとめる．心がけたのは，「物理の基礎のない学生さんが学会発表で攻められてもなんとか応答できる程度に得心してもらう」である．

電子系の計算なので，シュレディンガー方程式を解いているのは周知であろう．原子系の構造は，太陽系の構造からのメタファで描かれた．もし，エネルギーを縦軸にとればこの様子を横から見ると図1のように捉えることができる．

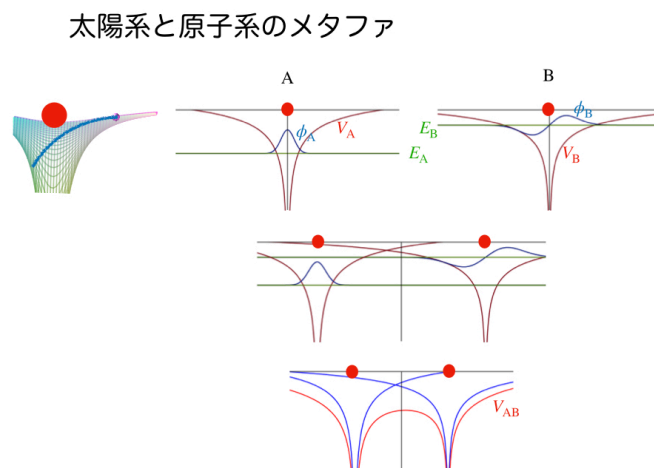


図1 上段は太陽系と原子系のメタファ．さらに A,B 原子系が近づき，AB 分子を構成する模式図．

惑星は，太陽からの重力ポテンシャルの中を軌道 (orbit) に沿って回っている．一方，電子は核イオンの作る静電ポテンシャル (V) の中に，波動関数 (ϕ) で，軌道みたいなもの (orbital) のあたりを漂っている．ここでは，A, B 原子の周りで考えて，A が s 的な，そして B が p 的な軌道を取っていたらという模式図である．

太陽系では，水星や金星の軌道はエネルギー準位のどこでもいい準位を取ることができるし，そのポテンシャルの上に完全に乗っている．ところが原子系では，エネルギーはとびとびの準位 (E_i) しか取れず，しかも波動関数の 2 乗で表される存在確率はポテンシャルの外へ染み出している．さらに，太陽系の重力ポテンシャルの絵では，運動エネルギーがかけない．急な坂を転がる時は加速して運動エネルギーが上がり，坂を登ってなだらかなところではゆっくり進む．トータルのエネルギーは変わらないし，その速度と距離の関係がケプラーの第二法則となる．原子系では，ポテンシャルに運動エネルギーも加わって一定の準位で表示される．

2.2 実空間での分子結合の描像

これら A,B 原子が近づいてくると、どうなるかを想像して欲しい。まず、核イオンの作るポテンシャルは足し算 $V_{\text{ions}} = V_A + V_B$ で近似できる。また、分子軌道 ϕ_{AB} も単純な原子軌道の線型結合 (linear combination of atomic orbital: LCAO),

$$\phi_{AB} = c_A \phi_A + c_B \phi_B \quad (1)$$

で近似できるといいが、厳密には違う。次のような AB 分子のシュレディンガー方程式,

$$H_{AB} \phi_{AB} = E \phi_{AB} \quad (2)$$

$$H_{AB} = \left(-\frac{\hbar^2}{m} \frac{\partial^2}{\partial x^2} + V_{AB} \right)$$

のハミルトニアン H の中にあるポテンシャル項 V_{AB} には単純な核ポテンシャル (ion potential) 以外に電子同士の静電的な反発の効果を表す交換相関ポテンシャル (exchange correlation potential) が含まれているからである。

原理的にこのポテンシャルはセルフコンシステント (自己整合的) になるように決める必要がある。なぜなら、(2) 式の左辺に入力として入れるポテンシャルは波動関数 ϕ_{in} を使って求められ、(2) 式の解として出てきた波動関数 ϕ_{out} が、やはりポテンシャル項に影響を与えるからである。そのループを単純化して描くと図 2 となる。

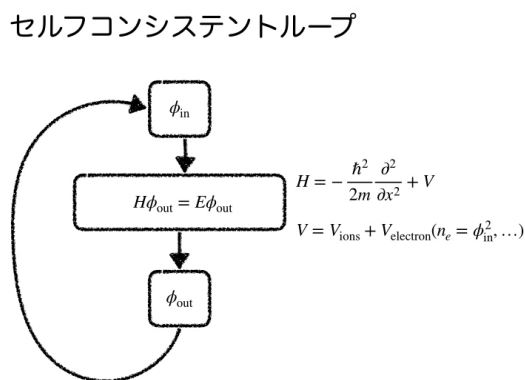


図 2 波動関数を self consistent(自己無撞着:じこむどうちゃく) に求める loop の模式図.

GGA とか LDA というのはこの交換相関ポテンシャル項にどんな近似関数を使うかで、局所的な密度だけに依存する関数だと LDA(local density approximation) で、微分した傾きまで入れると GGA(generalized gradient approximation). 一方、イオン項にあたる核ポテンシャルは、全部そのまま考えて内殻まで計算すると FP(full potential) で、内殻との直交性を考えてポテンシャルを近似すると PP(pseudo potential) で、内殻のシフトを有効的に近似して計算速度と精度を調整したのが PAW(projector augmented wave) だと単純には理解できる。

2.3 固体はバンドと DOS で

実空間での描像は、分子を考えるときにはいいが、固体を考えるには、周期的境界条件 (periodic boundary condition) で大きさ無限を仮装 (仮想) する。そんな描像を頭の中で思い描くには、図 3 に示したようなバンド図と状態密度を読み取る必要がある。これは、周期的な状態を表すのに便利な波的な関数を使っているからである。この表記の面白いのは、広がった (delocalized or extended) 自由電子 (free electron) 的な sp 電子と、局在 (localized or bound) した d 電子とが区別して表示されている。慣れてくると、このような図を見ただけで、Cu の電子状態が sp と d の相互作用 (混成) で作られていることを読み取ることができるが、そのため基礎知識をこの後しばらく解説する。

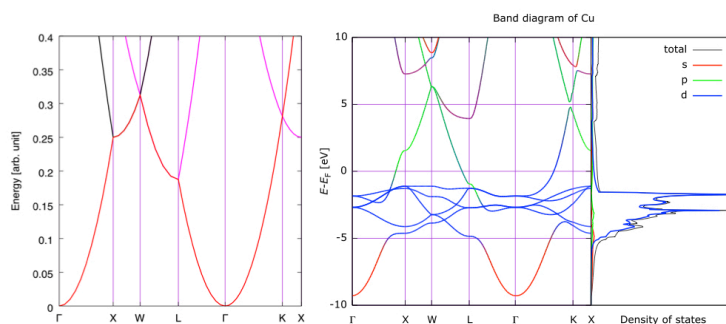


図 3 Cu のバンド図と電子状態密度 (Density of states: DOS).

局在した電子と、拡張した自由電子との違いは、次のような模式図 4 が描ける。先ほどの 2 原子分子を固体に拡張したと思って欲しい。自由電子はポテンシャルが弱いか全くない状態を考え、電子の海が広がっていると考えられる。一方、局在した電子はポテンシャルが深く、そこに閉じ込められた原子軌道 (atomic orbital) に似た状態で、お互いがわずかに相互作用していると考ええる。

2.4 自由電子

まずは自由電子 (free electron) と呼ばれる、広がった (extended) 電子状態の分散関係 (dispersion relation) を示す。前掲の Fleisch-Kinnaman の第 6 章で記述されている通り

$$\omega(k) = \frac{\hbar}{2m} k^2$$

となる。ここで、振動数 ω は逆格子ベクトルの長さ k の 2 乗に比例する。また、 m は電子の質量、 \hbar はプランク定数 h を 2π で割った定数である。この関係は、振動数 $\nu = \omega/2\pi$ の粒子のエネルギー E

$$E = h\nu$$

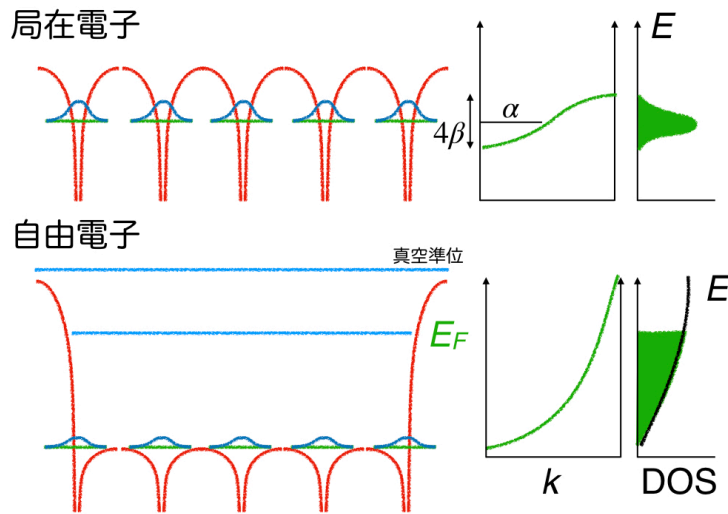


図4 局在電子と自由電子の実空間像，バンド図，DOS.

と，波の波長 $\lambda = 2\pi/k$ と粒子の運動量 p を結びつけるド・ブロイ (de Broglie) の関係

$$\lambda = \frac{h}{p} = \frac{2\pi}{k}$$

とを組み合わせると，

$$E = h\nu = \frac{h}{2\pi} 2\pi\nu = \hbar\omega = \frac{p^2}{2m} = \frac{\hbar^2 k^2}{2m}$$

から予測される。

これを1次元で plot すると図5の上段左図のような分散関係となる。その還元ブリルアン・ゾーン (Irreducible Brillouin zone: IBZ) を取り出すと上段右図となる。3次元では，下段右図のようなfcc格子の逆格子のIBZが描かれ，その分散関係は下段左図のようになる。それぞれの場所と方向に伝統的な名称がついている。線の色は， $(k - k_0)^2$ の分散曲線を，自己サイトを赤 $k_0 = (000)$ ，隣接サイトを $k_0 = (100), (111)$ をそれぞれ黒，マゼンタで区別している。

一見複雑に思えるかもしれないが，単に1次元の図を3次元に拡張したにすぎない。自由電子では，例えばAlの場合だと1原子あたり3個の電子がこの拡張した軌道を下から順に占める。詰まったところで，フェルミ準位 E_F が決まる。

2.5 局在電子の分散関係

次に局在した (localized) 電子の分散関係を強束縛近似 (tight binding approximation) から求める。この辺りの導出はGrosso and Parraviciniに詳しく記されている[3]。原子がたくさん集まってきて固体となるわけだが，ポテンシャルが深くて，電子がその奥に押し込まれていると隣の電子と弱くしか相互作用できない。

電子の波動関数 $\Phi(k, x)$ として，局在した関数 $\phi_a(x - t_n)$ の線形結合

$$\Phi(k, x) = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_n \exp(ikt_n) \phi_a(x - t_n)$$

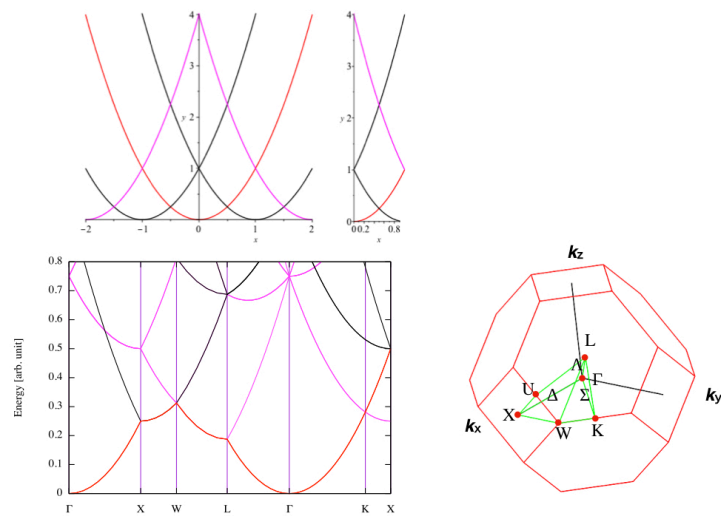


図5 自由電子のバンド図. 上段は一次元, 下段は fcc のバンド図とブリリュアンゾーン.

を取る. これは, ブロッチ和とかブロッチ波と呼ばれる. ここで, $t_n = na$ は等間隔 a で並んだ n 番目の位置を表しているとする. この波動関数は周期的ポテンシャルの中での関数の性質を表すブロッチの定理を満たす. 局在した関数としては, 原子系の d 電子の波動関数を取ると考えて欲しい. こうして得られるバンドのエネルギー分散は

$$E(k) = \langle \Phi(k, x) | H | \Phi(k, x) \rangle$$

で与えられる. この表記は, ハミルトニアンを波動関数で挟んで, 空間的に積分することの略記法である. 初めは驚くと思うが, そのうちに記号の意図がわかって, 違和感がなくなるので, 馴染んで欲しい.

原子軌道の自己相互作用と, 隣との相互作用だけがある強束縛近似を仮定して, それぞれの相互作用を

$$\begin{aligned} \langle \phi_a(x - t_n) | H | \phi_a(x - t_n) \rangle &= \alpha \\ \langle \phi_a(x - t_n) | H | \phi_a(x - t_{n\pm 1}) \rangle &= \beta \end{aligned}$$

と取ると, 上の式は

$$E(k) = \alpha + 2\beta \cos ka$$

と変形される. この関数は図4の右上図になる. セルフエネルギー α の周りの 4β に集中している.

こうして局在した電子がある振動準位 α を中心にしたエネルギー値に広がって存在し, 分散関係を作っていることが理解できると思う. 局在していた波動関数が空間的に広がると, 隣の電子との相互作用が大きくなりハミルトニアンを挟んだ積分値が大きくなって, β の値が大きくなり, それに伴って波数空間での分散も広がる.

これら自由電子的な波と, 局在した波が Cu のバンド図では重なって出ていることに気づいていただきたい. fcc の逆格子に自由電子的な分散曲線を取ると, 図3の右図で示したようになり, Cu の sp バンドを延長した線と重なっているのが読み取れると思う.

2.6 テトラヘドロン法

系の全エネルギー E_{total} は, 状態密度 $n(E)$ を使って, バンドの底 $E_{b(\text{bottom})}$ あるいはマイナス無限大から E_{F} までのエネルギー積分

$$E_{\text{total}} = \int_{-\infty}^{E_{\text{F}}} En(E)dE$$

で求められる. これをどれだけ正確に求めるかがこの後の主題となる. そこで大事になるのが, バンド図から状態密度 (DOS) を求めるテトラヘドロン法である.

ここで取り上げている Cu や Al は fcc なので, 逆格子は図 5 の右図のようになる. ここから対称性の高い領域を切り出してその体積を細かく切り刻んで行く. それぞれの格子点で縦方向にエネルギーをとって, 波数で積分をして行くのがテトラヘドロン法である. 図 6 のようにテトラヘドロン (tetrahedron, 四面体) を組み合わせて領域を効率よく切り刻んで行く. k -点の取り方には, 原点となる Γ (Gamma) 点を取るときと, Monkhorst-Pack のオリジナル論文の通りに外すのがある [4]. 自動生成される k -点や積分の重みが変わってくる.

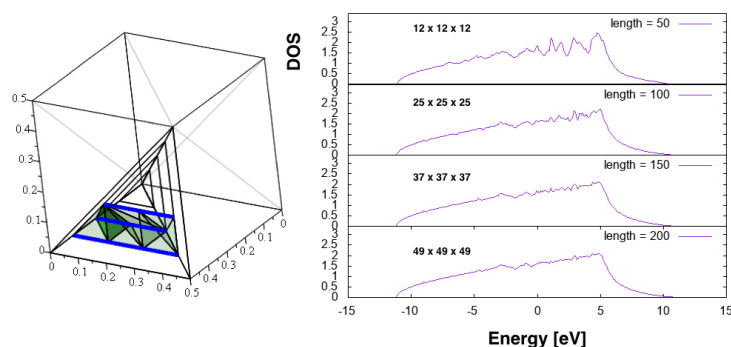


図 6 テトラヘドロンの模式図と k -点による Al の DOS の変化.

計算対象が金属で精度の高い結果を得るには, 滑らかに広がったバンドをうまく積分する必要がある. Fermi, Gaussian とかはそれらを単純にぼかしていて, Methfessel-Paxton が高速化の工夫を提案してくれた [5]. 右図には k -点数をかえてテトラヘドロンの Γ 点計算で求めた DOS の様子を示している. VASP では k -点を設定する KPOINTS ファイルで auto と指定すると length(=50,100,150,200 など) で適当に k -点を生成してくれる. fcc の $1 \times 1 \times 1$ のユニットセル 4 原子のモデルで自動生成すると k -点は k_x, k_y, k_z 方向に均等に図中に示した数 (n_{k_x, k_y, k_z}) に分割した mesh を生成する. Al の自由電子的なスムーズな曲線が length=100 以上でようやく得られていることがわかる.

精密に曲線を再現するには, 原則的には k -点数を増やせば良いのだが, 増やしすぎると, それぞれの点で固有値を計算するため, 計算時間が (n_k^3 で) 極端に増える. さらに VASP のメモリーエラーのため, 初期

設定値を変えて再コンパイルする必要があるかもしれない。この辺りの情報はネットにたくさんあるので参照していただきたい。

3 注意点と処方箋

3.1 欠陥エネルギー計算法

欠陥エネルギー ΔE は完全結晶との差で計算される。欠陥を含んだモデルのエネルギーを E_d とすると、

$$\Delta E = E_d(n) - n \times E_0$$

である。ここで E_0 は凝集エネルギー、すなわち完全結晶での 1 原子あたりのエネルギー、 n は欠陥モデルにふくまれる原子数である。点欠陥の形成エネルギーなどはこれでいいのだが、面欠陥や線欠陥では各々単位面積・単位長さあたりに換算する。この記事では、面欠陥の代表である粒界エネルギーを例に詳しく説明していく。

この場合は図 7 のようなスラブ (厚板, slab) モデルを使って粒界とみなす。周期的境界条件を満たすため、図中左上に示した四角の領域を構成単位として、 x, y, z 方向に板が無限に並んでいると考える。粒界は真ん中と端の 2 面入っている。三角形の印は粒界のユニット構造を示す単位 [6] で、これがいくつも存在することが確認できるであろう。fcc 構造では、 $\langle 100 \rangle$ 方向から見て上下 2 層を繰り返すので、それを白抜きと黒丸で表

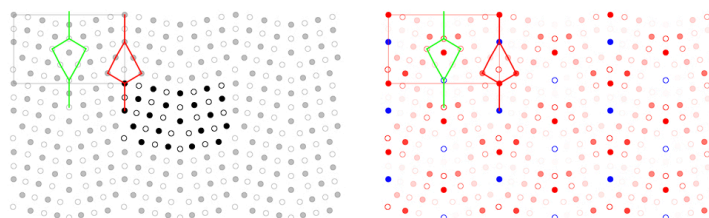


図 7 fcc の $\langle 100 \rangle$ 対称傾角粒界 $\Sigma 13(510) \langle 100 \rangle$ のモデル。

示している。モデルは外部の形状を調整して、内部の原子位置を緩和させて最安定エネルギーを求めている。右図は EAM 解析と呼んでいる解析法で示したはずみの様子である。これは、第一原理計算の緩和計算で得られた原子位置に対して、完全結晶にフィッティングした EAM(Embedded atom method) ポテンシャルを適用し、局所構造を解析する手法である。赤い領域が膨張環境を、青い領域は収縮環境を意図している。また、その度合いは色の濃さで表現している。粒界に青と赤が交互に並び、粒界の間の領域で比較的颜色が薄くなっている、つまり完全結晶に近い環境であることが読み取れる。

問題は E_0 をどうやって出すかである。失敗したのはここである。欠陥モデルは小さいと粒界面同士の相互作用が出てくるので、できるだけ大きなサイズのスラブで計算したい。そうすると reference となる E_0 のエネルギーがどうなるか、どんなスラブ形状、サイズでも同じなんだろうか、小さな誤差でも原子数 n で数百かけて系統的にずれないか、というのがわからなくなってくる

3.2 E_0 の計算

E_0 つまり完全結晶のエネルギー値が、 k -点の数を変えることによってどのように変わるかを見ていこう。 E_0 の k -点数による収束の様子は図 8 の通りである。それぞれの数字は fcc 構造のユニットセルをいくつ重ねているかを表現している。cubic 1×1×1 はユニットセルである。かつこの中の数字は原子数である。VASP が用意している k -点の自動生成では length でその密度を調整する。 k -空間のユニットセルは実空間の逆数である。スラブモデルは形状がいびつなので、 k -点の数もいびつである。100 以上ではそれぞれのモデルで値が収束しているが、その収束値はずれている。

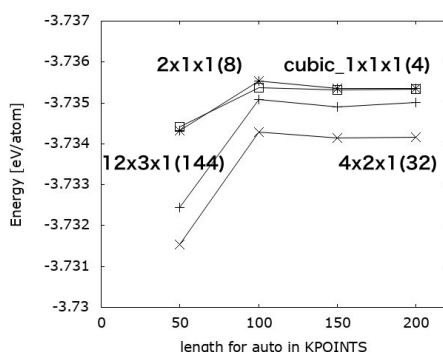


図 8 Al の種々の完全結晶モデルでのエネルギーの収束性.

粒界エネルギーで model 形状を変えることで、 E_0 の影響がどのように出るかをみてみよう。スラブのサイズが変わるために、 k -点の数は変化する。これ以降の計算で使った値は、先ほどの完全結晶での収束の様子から、length=100 での k -点での値である。

図 9 に原子サイズによる粒界エネルギーの依存性を示した。 E_0 のとり方の違いにより振る舞いがずれていることが読み取れよう。粒界の傾角は先ほど示した $\Sigma 13(510)\langle 100 \rangle$ (傾角 22.62°) である。原子数 40 がそのモデルで求めた粒界エネルギーである。粒界の間の完全結晶部を増やすことで原子数が増える。奇数のモデルも作れるが、エネルギー値が大きく振動するので省いている。 E_0 の値を 1×1×1 の cubic にとると 510mJ/m^2 程度の値に収束している。一方で、4×2×1 の slab の値を使うと 490mJ/m^2 ぐらいだがまだ下がりそうな気配である。比較的 k -点の数が近い 12×3×1 の slab 模型は cubic と近い値に収束している。その場合は、原子数 40 のモデルが異常値であることを示唆している。

どちらが正しいのだろう。失礼、精確なのだろう。それによって解釈が変わってくる。正解は、後者のよう

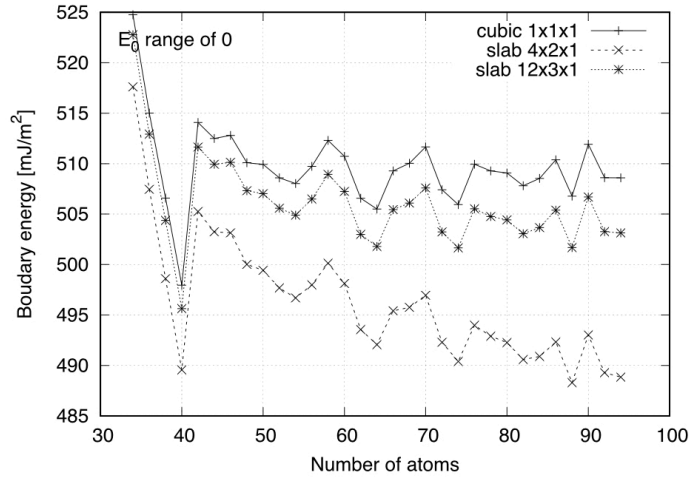


図9 Alの粒界エネルギーのばらつきの様子。

である。これを確信させてくれるのが Boettger の手法 [7] である。

3.3 処方箋

20mJ/m² 程度の誤差でよければ上の結果でいいが、もう少し精度よく値を確定させるにはどうするか、あるいはもっと大きなサイズで計算したらどうなるかが問題である。Boettger の手法をわかりやすく解説した Doll and Harrison の処方箋にしたがって計算してみよう [8]。これは表面エネルギーを正確に見積もるために考案・利用されてきたものである。欠陥エネルギーを求めるときに、

$$\Delta E = E_d(n) - nE_0 = E_d(n) - \{E_d(n) - E_d(m)\} \frac{n}{n-m} \quad (3)$$

を使えという。これはどうやって導出されたのか、初見ではわからないだろう。しかし、コンセプトを理解するとそれほど複雑ではない。記号の意味は後述する。どういう原理か粒界の計算で見ていこう。

図 10 の上下に書いた模式図を見ていただきたい。スラブモデルを、赤で示した粒界領域と白で示した完全結晶領域から構成されると考える。系の原子サイズを増やすのは、完全結晶領域を増やすことに相当して、その領域から E_0 を見積もることが可能である。そうすると slab モデル特有のいびつな k -点の依存性とかも、うまく取り込んで計算できそうである。原子サイズの差を大きくして行っただとして、

$$E_0 = \frac{\frac{E_d(40) - E_d(38)}{40 - 38} + \frac{E_d(38) - E_d(36)}{38 - 36}}{2} = \frac{E_d(40) - E_d(36)}{4}$$

差し引きで途中の項は消えてしまう。 $n=94$ 原子のモデルと $m=74$ 原子のモデルを比べると

$$\Delta E = E_d(94) - 94E_0 = E_d(94) - \{E_d(94) - E_d(74)\} \frac{94}{94 - 74}$$

という式が得られる。式 (3) を $n = 94, m = 74$ としたのと一致する。

本当にそれで良いのだろうかと言ひむかもしれない。実際に、いくつかのサイズ差 ($n - m = 2, 4, 10, 20$) で計算した結果を図 11 に示している。2-4 原子程度の差だと振れ幅が大きいですが、10 原子や 20 原子の差を使う

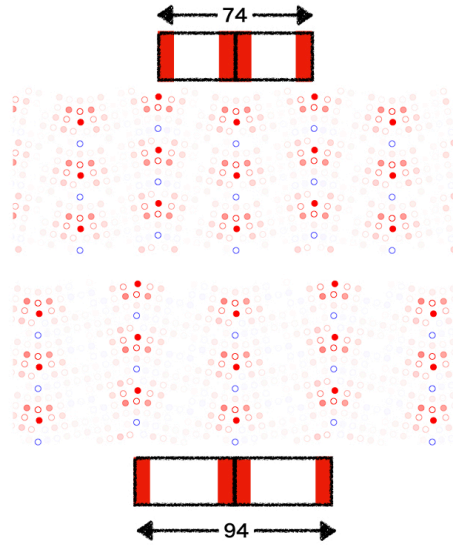


図 10 Boettger の手法の模式図と実際のモデルのひずみ表示.

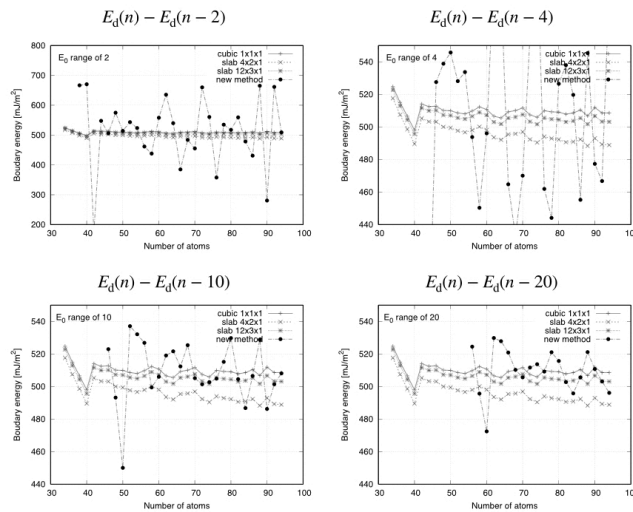


図 11 参照モデルの差による粒界エネルギーの収束性の変化. 左上の $n - m = 2$ 以外は y 軸のスケールを揃えている.

といい感じに収束してくれる. もちろん, cubic などの固定した値に比べると揺らいでいるが, 大雑把な収束先が見て取れる. その収束先は 510 mJ/m^2 程度で, E_0 は cubic の値で良さそうである.

この粒界の緩和後の原子配置を EAM 解析で図 10 に示している. EAM 解析は図 7 のあたりで述べたとおり, 膨張と収縮の度合いを示している. 上が 74 原子, 下が 94 原子のモデルである. 見やすくするために周期的に拡張している. このモデルでは, 粒界最近隣の 1 層の原子数は 10 だが, 白抜き丸, 黒丸で記した上下層の相対周期までを粒界領域で一致させるためには, 2 層 20 個の原子を削る必要がある. 粒界の間の色が薄くなっている領域, つまり完全結晶に近い環境になっている領域, が徐々に広がって, 欠陥エネルギーが粒界領域のみから発現しそうなのがわかる. また, 図 7 の右図に示した通り, $n = 40$ のモデルでは粒界の間の完全

結晶部に特殊なパターンができて、粒界エネルギーが下がっていることが読み取れる。これはモデルサイズが小さい時に現れる異常な値と理解できよう。

4 まとめ

第一原理計算を始めて 20 年近いんですが、いまだに今回述べたようなところで少なからず失敗しています。こんな手間なことを、全てのモデルに対して行う必要はありませんが、何か新しい対象を扱うときには、どこかの段階で収束性を確かめることをお勧めします。そうすればどの程度の誤差での議論かというのが認識できるからです。危険な議論をしないように、そのあたり気に留めておいていただくと幸いです。

この計算コードやデータは github で公開する予定です。最近色々なところで起こっている不正を避ける取り組みの一つとして同僚の福森氏が行なっている「データも解析も晒そう」プロジェクトの一環です [9]。みなさんの資産に加えていただければ幸いです。

5 謝辞

本研究の一部は量子科学技術研究開発機構六ヶ所核融合研究所内の国際核融合エネルギー研究センターの計算機シミュレーションセンター (IFERC-CSC) にあるスーパーコンピュータシステム JFRS-1 を利用して実施しました。感謝の意を表します。また、ご紹介いただいた核融合科学研究所の伊藤篤史氏にも御礼申し上げます。

参考文献

- [1] 西谷研究室, “はじめての vasp 原理から使用法, 適用例まで.” <https://ist.ksc.kwansei.ac.jp/~nishitani/RecentPublications> (2019/3/14 accessed).
- [2] ダニエル・フライシュ and ローラ・キナマン, 波動—力学・電磁気学・量子力学. 岩波書店, 2016.
- [3] G. グロツソ and G. パラピチニ, 固体物理学 (物理学叢書). 吉岡書店, 2004.
- [4] H. J. Monkhorst and J. D. Pack, “Special points for brillouin-zone integrations,” *Phys. Rev. B*, pp. 5188–92, 1976.
- [5] M. Methfessel and A. T. Paxton, “High-precision sampling for brillouin-zone integration in metals,” *Phys. Rev. B*, vol. 40, pp. 3616–21, 1989.
- [6] M. A. Tschopp and D. L. McDowell, “Asymmetric tilt grain boundary structure and energy in copper and aluminium,” *Phil. Mag.*, vol. 87, pp. 3871–92, 2007.
- [7] J. C. Boettger, “Nonconvergence of surface energies obtained from thin-film calculations,” *Physical Review B*, vol. 49, pp. 16798–800, 1994.
- [8] K. Doll and N. Harrison, “Chlorine adsorption on the cu (111) surface,” *Chemical Physics Letters*, vol. 317, pp. 282–9, 2000.
- [9] S. Fukumori, S. Aoyagi, and T. Kitamura, “Histreet journal 「シチズンサイエンスのシンポジウムと現性問題のワークショップ」,” *ヒューマンインタフェース学会誌*, vol. 20, no. 4, pp. 39–40, 2018.