

機関番号：32660

領域設定期間：令和元年度～令和5年度

領域番号：6106

研究領域名（和文）ハイパーマテリアル：補空間が創る新物質科学

研究領域名（英文）Hypermaterials: Innovation of materials science in hyper space

領域代表者

田村 隆治 (TAMURA Ryuji)

東京理科大学・先進工学部・教授

研究者番号：50307708

交付決定（予定）額（領域設定期間全体）：（直接経費）791,200,000円

研究の概要

周期結晶では不可能な高対称性を有する準結晶の発見は、我々が住む実空間では記述できない「結晶」の存在を示すと同時に、人類が数百年にわたり慣れ親しんできた結晶の定義を根底からひっくり返した。準結晶は高次元周期結晶の断面構造であり、その構造を理解するには「補空間」とよばれる別の空間が必要となる。本研究領域では、準結晶とその兄弟物質である近似結晶を一括りにし、これらの補空間で統一的に記述される物質群をハイパースペースのマテリアル、すなわち、「ハイパーマテリアル」と命名した。これにより既存の物質概念の一段上の物質概念を提唱するとともに、ハイパーマテリアルを取り込む新たな学理を創出する。具体的には、磁性・半導体・酸化物・ポリマー系ハイパーマテリアル、また、量子臨界・強相関・超伝導ハイパーマテリアルなどの新物質の合成に挑戦し、これまで物質科学に存在しなかった物質群の創製を目指す。また、異常高温比熱をはじめ、高次元や準周期、高対称と関連する物性を、領域を挙げて追求する。さらに、実空間では複雑怪奇なハイパーマテリアルの原子的挙動、磁気・電子・フォノン状態等を補空間で可視化することにより、複雑な秩序に潜む隠れた法則性（hidden order）を補空間において描き出し、様々な異分野の英知を結集して新たな物質科学の創出を目指す。

研究分野：理工系

キーワード：準結晶、近似結晶、補空間、ハイパーマテリアル、データ科学

1. 研究開始当初の背景

1984年のShechtmanらによるAl-Mn系準結晶の発見以降、現在までに100を超える合金系で準結晶が見出されている。特に近年、高分子、コロイド、メソ多孔体シリカなど、合金を超えた多様な物質系で準結晶が発見され、準結晶が物質界の普遍的な秩序形態の一つであることが確立した。準結晶の発見はまず結晶学にパラダイムシフトをもたらし、1992年に国際結晶学連合は、人類が何百年にもわたって慣れ親しんできた「周期性」の概念を結晶の定義から消し去り、準結晶を結晶に取り込むために「ブラッグ回折を示す全ての物質」に結晶の定義を変更したことは周知の事実である。しかし、準結晶の発見が人類に突き付けた根源的な問いはこれで解消されるのではなく、今や、「周期性」に根差した既存の学問体系を超える新たな学術領域を創造するフェーズに入っている。

準結晶は正10回対称性や正20面体対称性など、「周期性」と相容れない幾何学的対称性を有するため、3次元空間では周期を持ち得ない。しかし、高次元の周期結晶として捉えることができ、3次元準結晶は6次元周期結晶の3次元断面構造として記述できる。2007年に高倉（A02班代表）らは、カドミウム-イッテルビウム（Cd_{5.7}Yb）準結晶において、6次元周期結晶のユニットセル構造を解くことで、世界で初めて正20面体準結晶の構造決定に成功した。しかしながら、高次元空間を用いることの本質的なメリットは原子位置に限るものでなく、3次元空間で周期を持たないあらゆる秩序（原子ダイナミクス、磁気秩序、電子状態など）に威力を発揮すべきものであり、この視点が本領域の提案に繋がっている。

2. 研究の目的

2000年における二元系Cd_{5.7}Yb準結晶の発見以降、我が国では、このCd_{5.7}Ybプロトタイプ準結晶に元素置換を施すことで様々な準結晶や近似結晶が次々と生み出されている。この結果、合金では珍しい規則-不規則相転移の発見をはじめ、動的柔軟性、準結晶における非従来型量子臨界現象、準結晶における初の超伝導、近似結晶における初の磁性体や初の半導体など、これまで物質科学に無かった多彩な現象や物質が次々と明らかにされ、その趨勢は留まることを知らな

い。この背景のもと、ハイパーマテリアルにおいて新物質と新現象の発見を牽引してきた我が国が、その勢いを背に、異分野の専門家を広く取り込む“場”を実現することで新たな学融合を創出し、実空間における複雑な原子・電子・スピンの秩序を補空間で可視化し、そこに潜む普遍性を明らかにするという、世界的にも類を見ない研究領域を構築することを目的とした(図1)。



図1. 本領域の研究目的

3. 研究の方法

上記の目的を達成するために、次の四つの研究項目を立てて本領域の研究を推進する。

- ① 研究項目 A01 ハイパーマテリアルの合成
- ② 研究項目 A02 ハイパーマテリアルの構造
- ③ 研究項目 A03 ハイパーマテリアルのインフォマティクスと hidden order の探索
- ④ 研究項目 A04 ハイパーマテリアルの物性と hidden order の探索

A01 班では、金属・半導体・酸化物・ポリマー系などの新たなハイパーマテリアルの合成に挑戦する。A02 班では、X線・中性子等によりハイパーマテリアルの静的・動的構造を詳細に調べる。A03 班では、ハイパーマテリアルのデータベースを構築し、ハイパーマテリアルの安定化に関わる記述子を突き止めるとともに、ハイパーマテリアルの組成及び物性予測を行う。A04 班では、ハイパーマテリアルの物性測定を行い、電子・スピン・フォノン等の状態を詳しく調べる。また、A02 班とも連携して物理量を補空間にマッピングし、隠れた秩序を明らかにする。本領域では、これら四つの研究項目にまたがる共同研究を通して、従来結晶では不可能な新規物性の発掘、新現象の創出に挑むとともに、補空間物質科学の学理構築に取り組む(図2)。

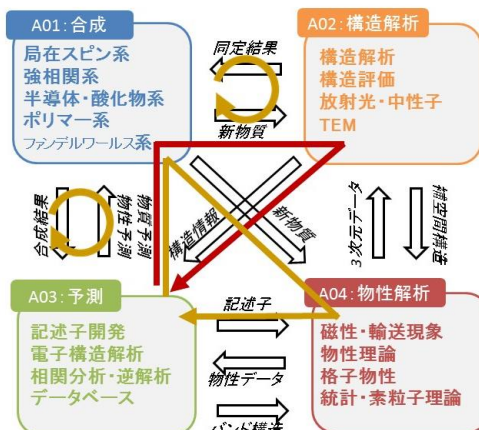


図2. 各研究項目間の連携体制

4. 研究の進展状況及び成果

【A01: ハイパーマテリアルの合成】

局在スピン系については初の強磁性準結晶を発見した(図3)。これは準結晶で初の長距離磁気秩序でもあり、準結晶の物性研究の一里塚ともなっている。また、準結晶において初めて半導体特性の観測にも成功し、半導体準結晶の実現が期待されるほか、新規な高分子・超伝導・ファンデルワールス系ハイパーマテリアルも続々と発見されている。

【A02: ハイパーマテリアルの構造】

正20面体準結晶には三つの型(Mackay型、Bergman型、Tsai型)があるが、2007年に構造決定されたTsai型に続き、Bergman型準結晶の構造決定に世界で初めて成功した(図4)。また、現在唯一構造未決定のMackay型準結晶の構造解明に向けて純良な単準結晶の作製に成功しており、全ての型の準結晶の構造解明が視野に入っている。さらに近年開発されたX線蛍光ホログラフィーの準結晶局所構造解析への適用に向け、シミュレーションによりその有効性を明らかにした。

【A03: ハイパーマテリアルのインフォマティクスと hidden order の探索】

これまで報告された準結晶・近似結晶・周期結晶の化学組成を学習データとし、A01 班との共同研究により、ハイパーマテリアルの

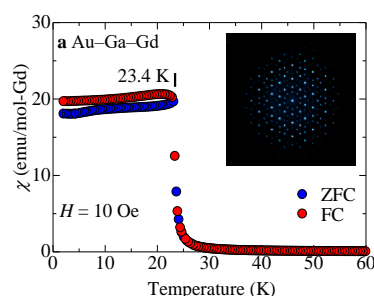


図3. 強磁性準結晶の発見

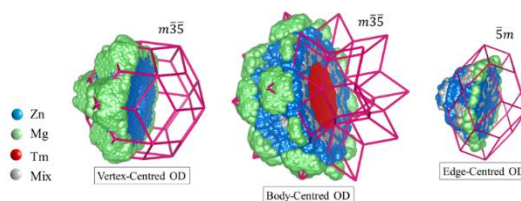


図4. Bergman型正20面体準結晶の補空間構造

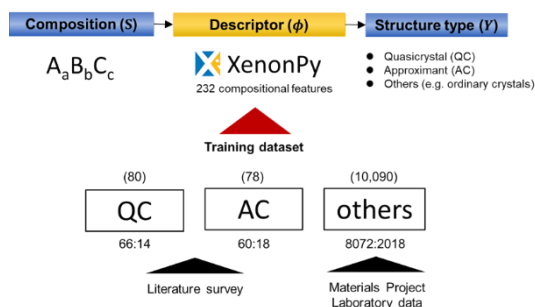


図5. 機械学習による準結晶の組成予測フロー

組成予測モデルを開発した(図5)。ハイパーマテリアルの予測精度はおよそ76%、結晶の予測精度は90%にも達することが判明し、ハイパーマテリアル予測における機械学習の有効性が初めて立証された。また、機械学習により初めて新しいハイパーマテリアルの合成に成功した。

【A04：ハイパーマテリアルの物性と hidden order の探索】

準結晶の1原子当たりの定積比熱が高温域で Dulong-Petit の値 $3k_B$ (k_B : ボルツマン定数)から大きく外れ、 $4.5k_B-5k_B$ の値を示すことを明らかにした。また、系統的な実験によりこの振舞いが補空間の自由度と関係することが強く示唆されている(図6)。さらに、様々な準周期系の磁気秩序について補空間マッピングによる可視化に成功したほか、Au-Al-Yb 準結晶・近似結晶の量子臨界現象が高次元結晶の格子定数により整理できることを発見した。

5. 今後の研究計画

データ科学とハイパーマテリアルの学融合を推し進め、機械学習予測に基づく物質合成を推進するほか、電気抵抗率を機械学習データに取り込み半導体予測に着手する。A01 班では強磁性に続き反強磁性準結晶の創製に挑戦するほか、初の安定な超伝導準結晶、初の半導体準結晶の実現にも挑む。A02 班では唯一構造未決定の Mackay 型正20面体準結晶の構造解析を遂行するほか、動的構造についても、準周期構造を反映したフォノンのギャップ構造の解明、および、コヒーレント X 線回折イメージングを用いた高温その場観察を行い、準周期系特有のダイナミクスを明らかにする。A03 班では組成予測モデルの精度向上を図るとともに、A01 班との連携体制を一層強化し、候補組成の実験検証のペースを加速する。また、X 線回折(XRD)図形から準結晶の有無を予測する機械学習アルゴリズムを開発し、合成実験の効率化を図る。データ駆動型研究の実践を目指し粉末 XRD や物性データの収集にも注力する。A04 班では異常高温比熱に関してシミュレーションを援用して高次元性との関係を追求する。また、超伝導ハイパーマテリアル探索を推し進め、理論的に予言されている準結晶に特徴的な超伝導物性を突き止めることを狙う。磁性に関しては、近似結晶において得られた有効モデルを A01 班が創製する初の磁性準結晶に展開する。

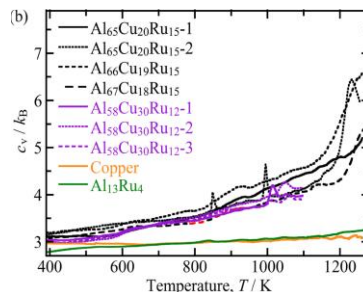


図6. ハイパーマテリアルの比熱

6. 主な発表論文等 (受賞等を含む) 論文 95 件

1. Ferromagnetic 2/1 quasicrystal approximants, K. Inagaki, S. Suzuki, A. Ishikawa, T. Tsugawa, F. Aya, **T. Yamada**, K. Tokiwa, T. Takeuchi, and ***R. Tamura**, *Phys. Rev. B (Rapid Communication)* **101**, 180405 (2020).
2. A van der Waals interface that creates in-plane polarization and a spontaneous photovoltaic effect, T. Akamatsu, **T. Ideue***, L. Zhou, Y. Dong, S. Kitamura, M. Yoshii, D. Yang, M. Onga, Y. Nakagawa, K. Watanabe, T. Taniguchi *et al.*, *Science* **372.6527**, 68-72 (2021).
3. Growth and composition of an ultra-thin Ba-Ti-O quasicrystal film and its crystalline approximant on Pt(111), ***J. Yuhara**, K. Horiba, R. Sugiura, X. Li, and T. Yamada, *Phys. Rev. Mater.* **4**, 103402 (2020).
4. Growth and characterisation of single grain Al-Cu-Ru icosahedral quasicrystals from self-fluxes, K. Toyonaga, R. Shibata, **T. Yamada**, M. de Boissieu, O. Perez, P. Fertey, and ***H. Takakura**, *Phil. Mag.* **100**, 2220-2243, (2020).
5. The atomic structure of the Bergman-type icosahedral quasicrystal based on the Ammann-Kramer-Neritiling, ***I. Buganski**, J. Wolny, and **H. Takakura**, *Acta Cryst. Sec. A* **76**, 180-196 (2020).
6. Machine learning to predict quasicrystals from chemical compositions, C. Liu, E. Fujita, **Y. Katsura**, Y. Inada, A. Ishikawa, **R. Tamura**, ***K. Kimura**, and ***R. Yoshida**, *Adv. Mater.* (2021).
7. Physical properties of weak-coupling quasiperiodic superconductors, ***N. Takemori**, R. Arita, and ***S. Sakai**, *Phys. Rev. B* **102**, 115108 (2020).
8. Bulk electronic structure of high-order quaternary approximants, S. Sarkar, P. Sadhukhan, V. K. Singh, A. Gloskovskii, **K. Deguchi**, **N. Fujita**, ***S. R. Barman**, *Phys. Rev. Research* **3**, 013151 (2021).
9. Superlattice structure in the antiferromagnetically ordered state in the Hubbard model on the Ammann-Beenker tiling, ***A. Koga**, *Phys. Rev. B* **102**, 115125 (2020).
10. Mean-field study of the Bose-Hubbard model in the Penrose lattice, ***R. Ghadimi**, **T. Sugimoto**, and T. Tohyama, *Phys. Rev. B* **101**, 144407 (2020).

受賞：総数 22 件

1. 井手上敏也「令和3年度 科学技術分野の文部科学大臣表彰 若手科学者賞」
2. 出口和彦「日本物理学会 第26回 論文賞」

ホームページ等

領域ホームページ： <https://www.rs.tus.ac.jp/hypermaterials/>

Youtube: <https://www.youtube.com/channel/UC52yjmv0-7JQVMHLBZtWrg/about>