

科学研究費助成事業「新学術領域研究（研究領域提案型）」 研究概要
〔令和6年度事後評価用〕

令和6年6月30日現在

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

交付決定額（領域設定期間全体）：（直接経費）790,600,000円

研究成果の概要

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説明の付かない物質が存在することを端的に示すとともに、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覆した。準結晶は高次元周期結晶の断面構造として記述され、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**」と定義した。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の創出を図った。具体的には、これまでのハイパーマテリアルに無い、磁性・半導体・酸化物・ポリマー・ファンデルワールス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、従来の物質科学に存在しない物質群の創製を推進した。また、異常高温比熱、異常高温熱伝導、フォノンにおける特異連続性、準周期界面における特異な光起電力効果など、高次元性や準周期性、高対称性と関連する物性を追求した。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理解することで、複雑な秩序に潜む隠れた法則性 (**hidden order**) を見出し、公募班も含む領域内の異分野融合研究を通じて、新たな物質科学「**ハイパーマテリアルの科学**」の基盤を創出した。

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

1. 研究開始当初の背景

1984 年の Shechtman 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」に結晶の定義を拡張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決されるものでなく、今や、「周期性」に根差した既存の学問体系が揺らいでいる。「周期性」を超えた新たな学理の必要性に迫られている。

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 A02 高倉らは、Tsai 型とよばれるカドミウム-イッテルビウム ($\text{Cd}_{5.7}\text{Yb}$) 準結晶において、6 次元周期結晶の単位胞構造を決定し、世界で初めて正 20 面体準結晶の構造解明に成功した。しかしながら、高次元空間を用いる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）に威力を発揮し得るものであり、この視点が本領域の提案に生かされている。また対象とする物質群についても、これまでは依然として合金系が主体であり、また合金系においても、磁気秩序や超伝導の報告は準安定 Al-Mg-Zn 系準結晶における超伝導の一例を除き、皆無であった。

2. 研究の目的

2000 年における二元系 $\text{Cd}_{5.7}\text{Yb}$ 準結晶の発見以降、我が国では、この $\text{Cd}_{5.7}\text{Yb}$ プロトタイプ準結晶に元素置換を施すことにより様々な準結晶や近似結晶が次々と生み出されてきた。この結果、補空間のフェイゾン自由度に由来する規則－不規則相転移や動的柔軟性の発見、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、これまで物質科学の表舞台に出ることの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。この状況を踏まえて、ハイパーマテリアルの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、これまでに無かった新たな物質の創製にあたるとともに、実空間の複雑な原子・電子・スピンの秩序や振舞いを補空間で理解し、そこに潜む規則性・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着想した(図 1)。この研究領域の構築にあたり、特に二つの異分野学融合を通じて新たな学理の創出を行うことを目的とした。一つは、準結晶分野とデータ科学分野の学融合で、世界で初めて準結晶に関する包括的なデータベース(HYPOD)を構築し、データ科学により準結晶組成の予測モデルを開発するものである。また、この予測モデルにより新規準結晶の合成に挑戦するとともに、いまだ深い謎に包まれている準結晶安定化因子の解明を目指す。もう一つは、準結晶分野と強相関分野の学融合で、強相関系研究者と連携して量子臨界・磁性・超伝導ハイパーマテリアルの創製を行い、準周期性・高次元性・高対称性に関連した現象や物性を突き止めることを目指す。あわせて、理論研究により、補空間を用いた現象・物性の解明を行うことで新たな学理の構築を目指す。



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研究を推進した。

- (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

研究項目 A01 では、局在スピン系・強相関系・半導体系・酸化物系・ポリマー系・ファンデルワールス系の新規ハイパーマテリアルを創製し、様々な物質・材料系にハイパーマテリアル群を拡大する。なお、実績の少ない非金属系は、特に公募班の協力を得て新物質創製を図ることとした。合成した新物質を研究項目 A02 の構造解析、A04 の物性測定・解析に展開してその構造と物性を詳しく調べ、補空間を用いて隠れた規則性や法則性を突き止める本領域の目標達成の一端を担った。加えて、本領域が掲げるデータ科学との学融合を実現すべく、研究項目 A03 が機械学習により予測した組成にもとづき、新規ハイパーマテリアルの探索を行った。

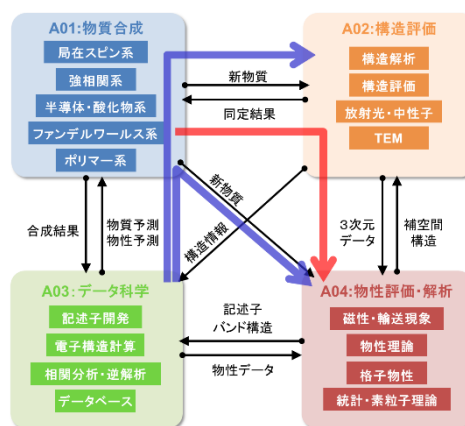


図 2. 各研究項目間の連携体制

研究項目 A02 では、高次元性と高対称性で特徴づけられるハイパーマテリアルの構造的側面に焦点をあて、その原子スケールからマクロスケールまでの静的・動的構造を組織的に調べることで、補空間構造の決定およびフェイゾン・フォノンの特徴の解明に挑んだ。また、個々の物質群を越えて、ハイパーマテリアルが普遍的に示す安定化機構や、特異な物性機能を理解するための補空間物質科学の構築に必要な構造情報を提供した。既知および新規の準結晶・近似結晶の X 線・放射光・中性子回折による構造評価を進め、構造決定を行うとともに、ハイパーマテリアル形成温度領域における構造相転移およびダイナミクスを調べることで形成メカニズムに関する知見を得た。また、構造可視化のためのソフトウェアを含む学術基盤の構築を行った。

研究項目 A03 は、準周期物質群の MI (ハイパーマテリアルズインフォマティクス) の学術基盤を構築すべく、データ科学や第一原理計算などを方法論の駆動力とし、領域内に知識循環をも

たらず役割を担った。特に、世界初のハイパーマテリアルの包括的なデータベースを作成し、それをもとにハイパーマテリアル組成を予測する機械学習モデルを構築し、その予測精度の包括的検証を行った。また、多相の粉末X線回折パターンからハイパーマテリアルを同定する機械学習モデルの構築を行い、新規ハイパーマテリアル探索の大幅な加速化を図った。

研究項目 A04 では、実験グループが、A01 班で合成された新規物質群の物性測定を行い、高次元性（補空間自由度）や準周期性と関連する物性を探索した。一方理論グループは、実空間では複雑なハイパーマテリアルの原子のダイナミクス・磁気秩序・電子状態等を補空間で記述し、そこに潜む規則性や法則性を見い出すことに注力した。さらに実験・理論の双方で得られた結果を融合して補空間における新物質科学の基盤確立をめざした。

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、ハイパーマテリアルならではの新規物性の発掘、新現象の創出に挑むとともに、補空間にもとづく新たな物質科学の学理および補空間物質科学の学術基盤の構築に取り組んだ（図2）。

4. 研究の成果

【A01：ハイパーマテリアルの合成】

局在スピン系：A01 田村と A04 公募班那波らの共同研究により、強磁性および反強磁性準結晶の合成に世界で初めて成功した（図3）。いずれも 40 年に渡る準結晶研究における初の長距離磁気秩序である。**強相関係系：**A01 田村・A01 室・A04 出口・A01 公募班鈴木らの共同研究により、Au 系において、準結晶超伝導体をも含む珍しい数の超伝導体の創製に成功した。**半導体系：**Al 系の高次近似結晶や準結晶において半導体特性の観測に成功し、真性半導体準結晶の実現に向けての基盤が築かれた。**酸化物系：**A01 公募班柚原と A01 山田らの共同研究により、Ce 系や Yb 系の新たな酸化物ハイパーマテリアルの合成に成功した。また、A01 公募班山浦らは A01 田村との共同研究により、準結晶に密接に類似したクラスター構造を有する新規亜酸化物を合成することに成功した。**ポリマー系：**A01 公募班山本が、独自に合成した高分子を組み合わせることで 12 回対称準結晶の合成に成功するとともに、ポリマー準結晶の形成が特定の高分子によらないという普遍性を明らかにした。**ファンデルワールス系：**A01 公募班井手上が、対称性の異なる二次元結晶を組み合わせた準周期界面を作製し、特異な光起電力効果および円偏光起電力効果を発見した。また、A04 枝川と A01 田村らの共同研究により、安定準結晶で初めての超伝導準結晶が発見された。**機械学習駆動新物質創製：**A03 吉田らの組成予測にもとづいて、A01 木村及び A01 田村らにより数々の新規ハイパーマテリアルの発見がなされた。これは、40 年の準結晶研究において、機械学習が発見した初めてのハイパーマテリアルである。

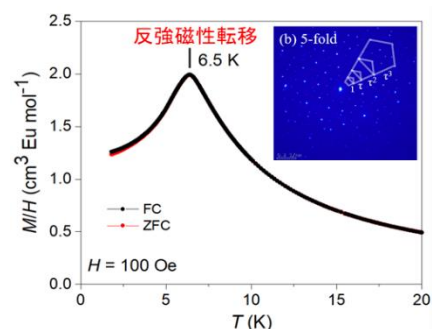


図3. 反強磁性準結晶の発見

【A02：ハイパーマテリアルの構造】

静的構造：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、A02 高倉らが Zn-Mg-Tm 系において、Bergman 型正 20 面体準結晶の構造決定に世界で初めて成功し、その補空間構造を解明した（図4）。また、唯一構造未決定であった Mackay 型準結晶である Al-Cu-Ru 系正 20 面体準結晶においても、世界で初めてその構造決定に成功した。さらに、A02 高倉と A01 田村らとの共同研究により、多数の新規 Tsai 型近似結晶の構造決定に成功し、A02 高倉と A01 木村・岩崎らとの共同研究により、A03 吉田らの機械学習が発見した Al-Si-Ru 系準結晶の近似結晶・関連結晶構造を明らかにした。また、A02 藤田が、Al 系高次近似結晶の構造がカノニカル・セルタイリングにより統一的に理解できることを発見した。

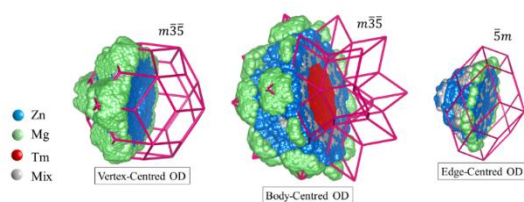


図4. Bergman 型正 20 面体準結晶の補空間構造

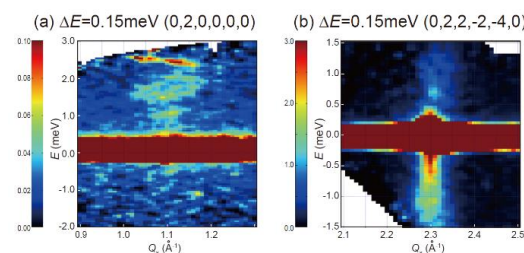


図5. エネルギーに対して非対称な Al-Pd-Mn 正 20 面体準結晶のフォノンスペクトル

動的構造：A02 松浦と A04 枝川の共同研究により、Al-Pd-Mn 系正 20 面体準結晶の高分解能中性子散乱実験が行われ、黄金比 $\tau = (1+\sqrt{5})/2$ でスケールされる階層的エネルギー擬ギャップ構造と非相反フォノン伝播の存在が発見された（図5）。A02 綿貫と A02 藤田の共同研究により、Al-Cu-Ru 系正 20 面体準結晶・近似結晶のコヒーレントX線回折により、準結晶と近似結晶のダ

イナミクスの違いが初めて明らかにされた。

構造可視化：A02 門馬と A02 高倉の共同研究により、高次元の対称性情報を保ち、磁気構造をも含むハイパーマテリアルの構造可視化を可能にするソフトウェアが開発され、一般公開された。加えて、近年開発された X 線蛍光ホログラフィーの準結晶における有効性をシミュレーションにより明らかにし、同手法を用いた準結晶局所構造解析の基盤が確立した。

【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】

新物質の発見プロセスを加速するために、機械学習の解析技術を導入した。準結晶研究で MI を実践する上での最大の壁は、体系的なデータベースの欠如であった。そこで、ハイパーマテリアルの組成・物性・相図を網羅的に集積したオープンデータベース HYPOD を開発した。そして、新規準結晶を予測する機械学習の方法論（準結晶・近似結晶の状態図予測、XRD に基づく相同定、結晶構造予測、記述子など）を整備し、それらの全てをオープンソフトウェアとしてコミュニティと共有した。いずれの成果も準結晶研究における初の成果として、高い注目を集めた。また、これらの手法を用いて A01 班との共同研究により多くの新規準結晶を発見することに成功した（図 6）。また、第一原理計算に基づく表面解析、触媒研究（A04 班との共同研究）、バンド計算、高次元電子構造計算のアルゴリズム開発、分子動力学計算によるハイパーマテリアルの異常高温比熱の起源解明（A04 班との共同研究）など、計算科学的手法に基づく斬新で多彩な研究を展開した。このように A03 班は領域内外の研究者らと協働して準結晶研究の新機軸を生み出した。

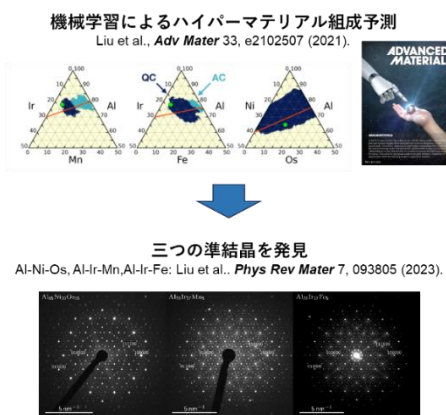


図 6. 機械学習による準結晶の予測と発見

【A04：ハイパーマテリアルの物性と hidden order の探索】

A04 班の枝川と高際らの共同研究により、準結晶の定積比熱が高温域で Dulong-Petit 値の 1.5 倍程度に達することを証明し、この大きな余剰比熱が高次元性(補空間自由度)に起因することを明らかにした。これは、高次元性に直接起因する準結晶の物性の顕著な例である。また枝川らは、A03 班桂が作成した大規模物性データベース(Starrydata)を用いて、ハイパーマテリアルの高温域における熱伝導度の正の温度係数の大きさがすべての固体物質のうちで上位 0.2%に入ることを示し、異常高温熱伝導がハイパーマテリアルの最も特徴的な物性であることを明らかにした。さらに、この特長を生かせば、従来性能をはるかに超える熱整流材料が実現可能であることを明らかにした。A04 班出口、A01 班田村らは共同して、Au 系近似結晶・準結晶において、多数の超伝導体を発見した。加えて、A04 班枝川は、Ta-Te 系準結晶において転移温度約 1K の超伝導を発見した。これは安定準結晶における初めての超伝導であり、準周期超伝導の理解に大きく資することが期待される（図 7）。さらに、A04 班の出口と井村らは、準結晶・近似結晶の磁性が、共通の高次元結晶の格子定数により整理できることを発見し、両者の物性が、高次元結晶に基づいて理解できる根拠を与えた。A4 班古賀は、様々な準周期タイルを用いて、準周期系特有の磁気秩序を補空間で明快に可視化することに成功し、二次元準周期構造の磁気秩序について、補空間解析によりフラクタル構造を反映した超格子構造が現れることを見出した（図 8）。一方、超伝導状態については、準周期系特有の不均一な秩序変数状態がトンネル顕微鏡で観察可能であることが予言された。

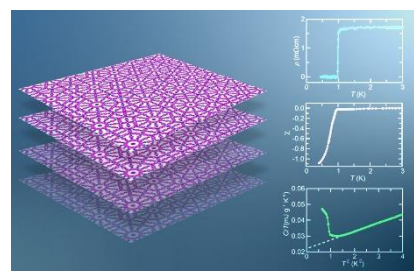


図 7. ファンデルワールス層状準結晶における超伝導の発見

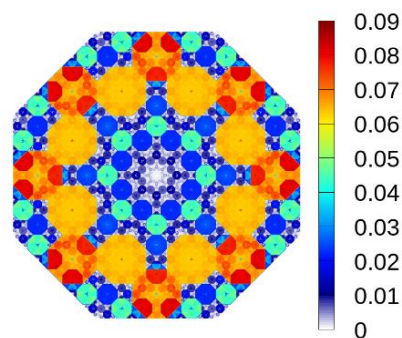


図 8. Ammann-Beenker タイル上の反強磁性秩序の補空間

5. 主な発表論文等（受賞等を含む）論文 321 件

- “Deep learning enables rapid identification of a new quasicrystal from multiphase powder diffraction patterns”. H. Uryu, ***T. Yamada**, K. Kitahara, A. Singh, **Y. Iwasaki**, **K. Kimura**, K. Hiroki, N. Miyao, A. Ishikawa, **R. Tamura**, S. Ohhashi, C. Liu, **R. Yoshida**. *Advanced Science* 11, 2304546 (2024).
- “Superconductivity in a van der Waals layered quasicrystal”, *Y. Tokumoto, K. Hamano, S. Nakagawa, Y. Kamimura, **S. Suzuki**, **R. Tamura** and ***K. Edagawa**, *Nature Communications*

15, 1529 (2024).

3. “High-temperature atomic diffusion and specific heat in quasicrystals” *Y. Nagai, *Y. Iwasaki, K. Kitahara, Y. Takagiwa, K. Kimura, M. Shiga, *Physical Review Letters* **132**, 196301 (2024).
4. “Ferromagnetically ordered states in the Hubbard model on the H_{00} hexagonal golden-mean tiling”, *T. Matsubara, A. Koga and S. Coates, *Physical Review B* **109**, 104414-1-11 (2024).
5. “Supercurrent distribution in real-space and anomalous paramagnetic response in a superconducting quasicrystal” *T. Fukushima, *N. Takemori, S. Sakai, M. Ichioka, A. Jagannathan. *Physical Review Research* **5**, 043164-1-13 (2023).
6. “Berry Curvature Dipole Generation and Helicity-to-spin Conversion at Symmetry-mismatched Hetero-interfaces” S. Duan, F. Qin, P. Chen, X. Yang, C. Qiu, J. Huang, G. Liu, Z. Li, X. Bi, F. Meng X. Xi, J. Yao, T. Ideue, B. Lian, Y. Iwasa, and H. Yuan, *Nature Nanotechnology* **18**, 867-874 (2023)
7. “High Phase-Purity and Composition-Tunable Ferromagnetic Icosahedral Quasicrystal”, Ryo Takeuchi, F. Labib, T. Tsugawa, Y. Akai, A. Ishikawa, S. Suzuki, T. Fujii, and *R. Tamura, *Physical Review Letters* **130**, 176701-1-5 (2023). *Editors’ suggestion*
8. “Quasicrystals predicted and discovered by machine learning” C. Liu, K. Kitahara, A. Ishikawa, T. Hiroto, A. Singh, E. Fujita, Y. Katsura, Y. Inada, *R. Tamura, *K. Kimura, *R. Yoshida. *Physical Review Materials* **7**, 093805-1-9 (2023).
9. “Magnetic dynamics of ferromagnetic long range order in icosahedral quasicrystal”, *S. Watanabe, *Scientific Reports* **12**, 10792-1-9 (2022).
10. “Machine learning to predict quasicrystals from chemical compositions” C. Liu, E. Fujita, Y. Katsura, Y. Inada, A. Ishikawa, R. Tamura, *K. Kimura, *R. Yoshida, *Advanced Materials* **33**, 2102507-1-12 (2021).
11. “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, J. Laurienzo, J. Huang, Z. Ye, T. Morimoto, H. Yuan, Y. Iwasa, *Science* **372**, 68-72 (2021).
12. “Experimental Observation of Long-Range Magnetic Order in Icosahedral Quasicrystals”, *R. Tamura, A. Ishikawa, S. Suzuki, T. Kotajima, Y. Tanaka, T. Seki, N. Shibata, T. Yamada, T. Fujii, C.W. Wang, M. Avdeev, K. Nawa, D. Okuyama, and *T. J Sato. *Journal of the American Chemical Society* **143**, 19938-19944 (2021)
13. “The Local Structure of the Fibonacci Chain and the Penrose Tiling from X-Ray Fluorescence Holography”, *J. R. Stellhorn, H. Takakura, S. Hosokawa, K. Hayashi, *Materials Transactions* **62**, 342-349 (2021).
14. “Comparative study of high-temperature specific heat for Al-Pd-Mn icosahedral quasicrystals and crystal approximants”, K. Fukushima, H. Suyama, Y. Tokumoto, Y. Kamimura, Y. Takagiwa, and *K. Edagawa, *Journal of Physics Communications* **5**, 085002-1-9 (2021).
15. “Concomitant singularities of Yb-valence and magnetism at a critical lattice parameter of icosahedral quasicrystals and approximants”, *K. Imura, H. Yamaoka, S. Yokota, K. Sakamoto, Y. Yamamoto, T. Kawai, K. Namba, S. Hirokawa, K. Deguchi, N. Hiraoka, H. Ishii, J. Mizuki, T. Ishimasa and N. K. Sato, *Scientific Reports* **10**, 17116-1-10 (2020).
16. “The atomic structure of the Bergman-type icosahedral quasicrystal based on the Ammann-Kramer-Neritiling”, *I. Buganski, J. Wolny, and H. Takakura, *Acta Crystallographica Section A* **76**, 180-196 (2020).

受賞：総数 60 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. 田村隆治「令和 6 年度 科学技術分野の文部科学大臣賞 科学技術賞(研究部門)」
3. 竹森那由多「第 4 回(2023 年) 米沢富美子記念賞」
4. 岩崎祐昂「第 39 回(2022 年) 井上研究奨励賞」
5. 山田庸公「第 1 回(2024 年) Ted Janssen and An-Pang Tsai Prize」

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