

令和元年6月11日現在

機関番号：32660

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16H04018

研究課題名(和文) スピン正20面体結晶の構造と磁性に関する研究

研究課題名(英文) Study on the structure and magnetism of crystals composed of spin icosahedra

研究代表者

田村 隆治 (Tamura, Ryuji)

東京理科大学・基礎工学部材料工学科・教授

研究者番号：50307708

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 14,000,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、結晶中の強磁性スピン正20面体の属性を解明すること、及び、その制御法を確立することを目的として研究を行ったものである。主な研究成果は3つあり、一つ目として、Au-Al-(Gd, Tb)系スピン正20面体結晶の単結晶構造解析を行い、その構造決定に成功した。二つ目として、Au-Al-Tb系スピン正20面体結晶の粉末中性子回折実験を行い、その磁気構造の決定に成功した。三つ目として、数多くの合金系でスピン正20面体結晶を作製し、その基底磁気状態が平均価電子数のみで良く整理されることを見出し、また、スピングラス、強磁性、反強磁性相の存在域を解明するとともに、その磁性制御法を確立した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究により、固体中の正20面体が精緻な磁性物理学の対象となった。とりわけ、5つしかないプラトンの正凸多面体のうちの2つの多面体(正12面体、正20面体)を構造単位に有する珍しい結晶群の磁性の理解への第一歩と見なすことができる。また、本研究は、“クラスター磁石”という学問領域が物理学・材料科学において創出されるための第一歩とも見なすことができる。

研究成果の概要(英文)：This study was conducted to elucidate the properties of ferromagnetic spin icosahedron in crystals and also to establish the method to control the magnetism of spin icosahedron crystals. There are three main research results, and firstly, single crystal structure analyses of the Au-Al-(Gd,Tb) spin icosahedron crystals were conducted, and their structures were determined. Second, powder neutron diffraction experiments of the Au-Al-Tb spin icosahedron crystal were conducted, and their magnetic structures were determined. Thirdly, spin icosahedron crystals were prepared in many alloy systems, and it is found that the magnetic ground state can be well tuned only by the number of average valence electrons, and the existence range of spin glasses, ferromagnetism, antiferromagnetic phases, was elucidated. To summarize, the method of controlling the magnetism of spin icosahedron crystals has been well established by this study.

研究分野：金属物性

キーワード：正20面体クラスター 近似結晶 準結晶 磁性

1. 研究開始当初の背景

本申請者らは2010年、図1に示すスピン正20面体からなる化合物において世界で初めて長距離磁気秩序(反強磁性相)を見出し、結晶中のスピン正20面体が科学史上はじめて、精緻な磁性研究の対象となるに至った。さらに、2013年と2014年には、強磁性やキャント磁性を初め様々な磁気秩序を発見し、正20面体上の局在スピンの多様な磁気秩序を取り得ることを明らかにした。2015年には、価電子濃度を変えることで強磁性-反強磁性間のスイッチングができることを見出し、スピン正20面体の磁性が制御できる感触も得られつつある。これらのスピン正20面体に関する研究はいずれも、世界に先駆けてなされたものであり、ここに結晶中のスピン正20面体の磁性をミクロに制御する土台が科学史上初めて整った。

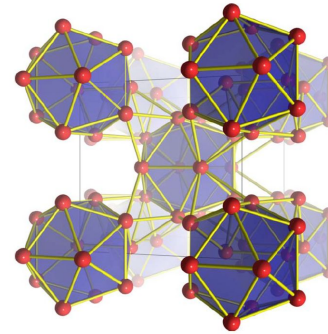


図1 本研究で対象とするスピン正20面体結晶

2. 研究の目的

スピン正20面体は、その特徴的な幾何学的性質に由来するフラストレート系として、巨大磁気熱量効果を始め特異な物性の発現が期待されている。本申請者らはスピン正20面体からなる結晶において初めて強磁性(傾角強磁性)を発見している。そのような背景のもと、本研究では、世界に先駆けて、結晶中の強磁性スピン正20面体の属性を解明すること、及び、その制御法を確立することを目的として研究を行った。具体的には、1.スピン正20面体結晶の構造決定、2.スピン正20面体のスピン配列の決定、3.スピン正20面体の磁性制御法の確立、を行うことを目的として研究を行った。

3. 研究の方法

スピン正20面体結晶の候補となる合金系としてAu-(Al,Ga,In,Si,Ge,Sn)-R(希土類)を選定し、以下の手順で試料作製を行った。まず、所定の仕込み組成で高純度原料を秤量した後、アルゴン雰囲気下でアーク溶解を行うことで母合金を得た。その後各試料について構造均質化のための熱処理を施し単相化を図った。得られた試料の相評価には粉末X線回折およびSEM-EDS分析を行った。単相が得られた試料については、SQUIDにより2~300Kの温度範囲で磁化測定を行った。

4. 研究成果

(1)スピン正20面体結晶の作製と単結晶構造解析

粉末X線解析測定及びSEM-EDS分析による相評価の結果、Au-(Al,Ga)-(La,Ce,Nd,Gd,Dy, Ho,Er,Tm,Yb,Lu)の数多くの合金系においてスピン正20面体結晶が得られることが判明した。これらの試料はいずれも広い単相領域を有し、また、Au濃度の変化に応じ格子定数の変化が見られることから、価電子濃度とスピン間距離を連続的に変えることのできる一連の試料の作製に成功したといえる。次いで、Au-Al-GdおよびAu-Al-Tb多結晶粉末から0.1mm程度の単結晶粒をピックアップし、4軸X線回折計とCCDカメラを用いて回折像を修得し、構造解析を行い、原子座標、占有率、原子変異パラメータを高精度で決定した。その結果を図2に示す。いずれの希土類元素も正20面体の頂点を占有率100%で占有していること、またその他のサイトは非磁性元素で占められていること、特にクラスター中心には磁性元素が無いことが判明した。

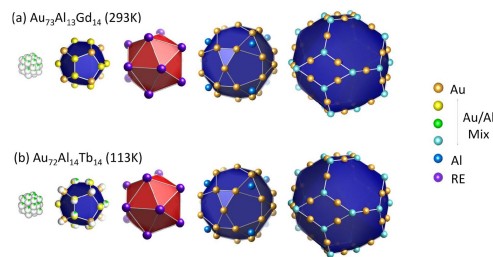


図2 Au-Al-Gd および Au-Al-Tb 結晶のクラスター構造

(2)スピン正20面体結晶の磁気構造の決定

中性子回折実験は、東北大学の佐藤卓教授との共同研究として、オーストラリアのANSTOにおいてAu-Al-Tb系スピン正20面体結晶の粉末中性子回折実験を行い、磁気ブラッグ回折の取得を行った。(1)の研究で得られた結晶構造を初期構造モデルとして磁気構造解析を行い、Au-Al-Tbスピン正20面体結晶の磁気構造の決定に成功した。

(3)スピン正20面体結晶の磁性制御法の確立

(1)の研究で得られた数多くの合金系でSQUIDによりその磁気基底状態を詳細に調べた。その結果、図3に示すように基底状態が平均価電子数のみで良く整理されることを見出した。具体的には、スピングラス、強磁性、反強磁性相といった磁気基底状態が平均価電子数に従って移り変わることを、またその存在域を決定した。以上より、スピン正20面体結晶の磁性が制御で

きることを確立した。

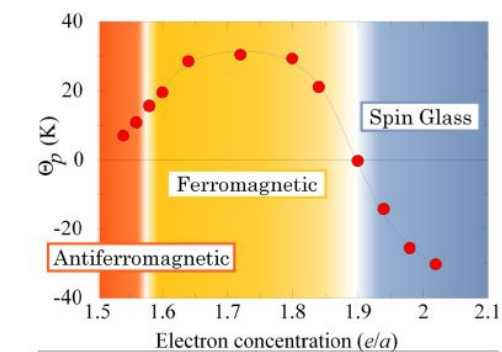


図3 Au-Al-Gd スピン正 20 面体結晶の磁気基底状態の平均価電子数依存性

5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 3 件)

- [1]Phenomenological Magnetic Model in Tsai-Type Approximants, Journal of the Physical Society of Japan, 85 (2016) 53701
Takanori Sugimoto, Takami Tohyama, Takanobu Hiroto, and Ryuji Tamura
- [2]Probing of the pseudogap via thermoelectric properties in the Au-Al-Gd quasicrystal approximant, Physical Review B, 95 (2017) 104201
Asuka Ishikawa, Yoshiki Takagiwa Kaoru Kimura and Ryuji Tamura
- [3]Antiferromagnetic order is possible in ternary quasicrystal approximants, Physical Review B (Rapid Communications),98 (2018) 220403-1-6

〔学会発表〕(計 36 件)

- [1]Magnetic properties of Au-based Tsai-type approximants, Ryuji Tamura, 20th International Conference on Solid Compounds of Transition Elements (国際学会), Zaragoza (SPAIN), 2016年04月11日~2016年04月15日
- [2]Synthesis and magnetic properties of Au-Al-Gd approximants, Asuka Ishikawa, Takanobu Hiroto, Kazuyasu Tokiwa, Takanori Fujii, Tsunehiro Takeuchi, Ryuji Tamura, 20th International Conference on Solid Compounds of Transition Elements (国際学会), Zaragoza (SPAIN), 2016年04月11日~2016年04月15日
- [3]Au-Al-Gd系 1/1 近似結晶の磁性, 石川明日香, 常盤和靖, 藤井武則, 田村隆治, 日本物理学会 2016年秋季大会, 金沢大学 角間キャンパス(石川県・金沢市), 2016年09月13日~2016年09月16日
- [4]Au-Al-Yb系 1/1 近似結晶の作製と磁性, 伊藤夏, 石川明日香, 廣戸孝信, 常盤和靖, 室裕司, 前島尚行, 町田晃彦, 綿貫徹, 田村隆治, 日本物理学会 2016年秋季大会, 金沢大学 角間キャンパス(石川県・金沢市), 2016年09月13日~2016年09月16日
- [5]Au-Ga-Gd系近似結晶の電気伝導, 服部将之, 石川明日香, 常盤和靖, 田村隆治, 日本物理学会 2016年秋季大会, 金沢大学 角間キャンパス(石川県・金沢市), 2016年09月13日~2016年09月16日
- [6]Tsai型近似結晶の有効磁気模型における結晶場効果, 杉本武則, 遠山貴己, 廣戸孝信, 服部将之, 田村隆治, 日本物理学会 2016年秋季大会
- [7]Au-Si-Tb Tsai型近似結晶の中性子非弾性散乱実験, 廣戸孝信, 佐藤卓, 羽合孝文, 横尾哲也, 伊藤晋, 田村隆治, 日本物理学会 2016年秋季大会
- [8]Magnetic properties of rare-earth containing Tsai-type approximants, A. Ishikawa, T. Hiroto, K. Tokiwa, T. Fujii, T. Takeuchi, and R. Tamura, 13th INTERNATIONAL CONFERENCE ON QUASICRYSTALS (国際学会) Kathmandu(Nepal), 2016年9月18日~2016年9月23日
- [9]Synthesis and magnetic properties of the Au-Al-Yb approximant, N. Ito, A. Ishikawa, T. Hiroto, K. Tokiwa, T. Watanuki and R. Tamura, 13th INTERNATIONAL CONFERENCE ON QUASICRYSTALS (国際学会), Kathmandu(Nepal) 2016年9月18日~2016年9月23日
- [10]Synthesis and electronic properties of the Au-Su-Yb approximant, R. Sasaki, T. Hiroto, T. Fujii and R. Tamura, 13th INTERNATIONAL CONFERENCE ON QUASICRYSTALS (国際学会) Kathmandu(Nepal), 2016年9月18日~2016年9月23日
- [11]Synthesis of Au-Ga-Yb quasicrystal, Y. Tanaka, T. Seki, N. Shibata, T. Fujii, R. Tamura 13th INTERNATIONAL CONFERENCE ON QUASICRYSTALS (国際学会) Kathmandu(Nepal), 2016年9月18日~2016年9月23日
- [12]Magnetism in compounds made of rare-earth icosahedra, Ryuji. Tamura, Asuka. Ishikawa, India - Japan Symposium on Science and Technology for Sustainability (招待講演)(国際学会) インド大使館(東京都千代田区) 2016年12月15日

- [13]Magnetic properties of rare-earth containing Tsai-type approximants, A. Ishikawa, T. Hiroto, K. Tokiwa, T. Fujii, T. Takeuchi, and R. Tamura, India - Japan Symposium on Science and Technology for Sustainability(国際学会)インド大使館(東京都千代田区) 2016年12月15日
- [14]Synthesis and magnetic properties of the Au-Al-Yb approximant, N.Ito, A. Ishikawa, T. Hiroto, K. Tokiwa, T. Watanuki and R. Tamura, India - Japan Symposium on Science and Technology for Sustainability(国際学会) 2016年12月15日
- [15]Au-Al-RE系 1/1 近似結晶の磁性, 石川明日香, 常盤和靖, 藤井武則, 竹内恒博, 田村隆治, 第21回準結晶研究会 北海道大学(北海道札幌市) 2017年3月2日~2017年3月4日
- [16]Au-Al-Yb系 1/1 近似結晶の作製と磁性, 伊藤夏, 石川明日香, 廣戸孝信, 常盤和靖, 室裕司, 前島尚行, 町田晃彦, 綿貫徹, 田村隆治, 第21回準結晶研究会 北海道大学(北海道札幌市) 2017年3月2日~2017年3月4日
- [17]Au-Sn-Yb系 2/1 近似結晶の作製と磁性, 佐々木怜, 常盤和靖, 田村隆治, 第21回準結晶研究会 北海道大学(北海道札幌市) 2017年3月2日~2017年3月4日
- [18]Au-SM-Gd(SM=Al, Ga)系 1/1 近似結晶の電気伝導, 服部将之, 石川明日香, 常盤和靖, 室裕司, 竹内恒博, 田村隆治, 第21回準結晶研究会 北海道大学(北海道札幌市) 2017年3月2日~2017年3月4日
- [19]Au-Al-Ce系 近似結晶の作製, 櫻井晶, 石川明日香, 田村隆治, 第21回準結晶研究会 北海道大学(北海道札幌市) 2017年3月2日~2017年3月4日
- [20]Magnetic properties of Au-based Tsai-type approximants, Ryuji Tamura, 30th European Crystallographic Meeting(招待講演)(国際学会)Basel, Switzerland 2016年8月28日~2016年9月1日
- [21]Magnetic properties of compounds made of rare-earth icosahedra, Ryuji Tamura EMN meeting(招待講演)(国際学会)Melbourne, Australia 2016年8月10日~2016年8月14日
- [22]Magnetism of Tsai-type approximants, Ryuji Tamura, Open space between aperiodic order and strong electronic correlations(招待講演)(国際学会) 2017年
- [23]Magnetic properties of compounds made of rare-earth icosahedra, Ryuji Tamura, Asuka Ishikawa, International Conference on Frontiers in Materials Processing Applications, Research ^ Technology(国際学会) 2017年
- [24]正20面体クラスター固体の磁気転移, 田村隆治, 日本物理学会 第73回年次大会(招待講演) 2017年
- [25]新規 Ag系準結晶の作製, 小室和樹, 田村隆治, 日本物理学会 2018年秋季大会
- [26]Ag-SM-RE系準結晶の作製と磁性, 長沼慶祐, 田村隆治, 日本物理学会 2018年秋季大会
- [27]Au系 Tsai型 1/1 近似結晶の単結晶作製と磁性, 稲垣和樹, 石川明日香, 常盤和靖, 廣戸孝信, 藤井武則, 田村隆治, 日本物理学会 2018年秋季大会
- [28]Au-Al-Tb系 近似結晶の作製と磁性 II, 櫻井晶, 石川明日香, 常盤和靖, 藤井武則, 田村隆治, 日本物理学会 2018年秋季大会
- [29]Au-SM-RE系 1/1 近似結晶の物性, 服部将之, 石川明日香, 常盤和靖, 室裕司, 藤井武則, 田村隆治, 日本物理学会 2018年秋季大会
- [30]Au-SM-Eu系 近似結晶の作製と磁性, 吉田昌平, 田村隆治, 日本物理学会 2018年秋季大会
- [31]Au-Al-Tb 近似結晶の磁気構造, 佐藤卓, 石川明日香, 櫻井晶, Maxim Avdeev, 田村隆治, 日本物理学会 2018年秋季大会
- [32]Ag-Ga-R系準結晶及び近似結晶の作製と磁性, 小室和樹, 鈴木慎太郎, 田村隆治, 日本物理学会 第74回年次大会 2019年
- [33]Au-Al-Tb系 近似結晶の磁性, 櫻井晶, 鈴木慎太郎, 藤井武則, 常盤和靖, 田村隆治, 日本物理学会 第74回年次大会 2019年
- [34]Au-Ga-Ce系 1/1 近似結晶の作製と電気抵抗, 元売明瑞紗, 鈴木慎太郎, 服部将之, 田村隆治, 日本物理学会 第74回年次大会 2019年
- [35]Au-(Ga,Ge)-Ce系 1/1 近似結晶の磁性, 鈴木慎太郎, 元売明瑞紗, 尾中禎子, 田村隆治, 日本物理学会 第74回年次大会 2019年
- [36]正二十面体準結晶のフェイゾン比熱, 張旋, 伊田佳祐, 田村隆治, 上村祥史, 徳本有紀, 枝川圭一, 日本物理学会 第74回年次大会 2019年

6. 研究組織

(1)研究分担者

研究分担者氏名:

ローマ字氏名:

所属研究機関名:

部局名：

職名：

研究者番号（8桁）：

(2)研究協力者

研究協力者氏名：シーザー ペイ ゴメス

ローマ字氏名：Cesar Pay Gomez

研究協力者氏名：佐藤 卓

ローマ字氏名：Taku J Sato

研究協力者氏名：ヒュイボ カオ

ローマ字氏名：HuiBo Cao

研究協力者氏名：廣戸 孝信

ローマ字氏名：Takanobu Hiroto

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。