

令和 5 年 6 月 28 日現在

機関番号：82121

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2019～2022

課題番号：19K03728

研究課題名（和文）中性子とX線回折法による水素結合型有機誘電物質の圧力誘起強誘電性の解明

研究課題名（英文）Structural study of pressure-induced phase of hydrogen-bonded supramolecular ferroelectrics

研究代表者

中尾 朗子（Nakao, Akiko）

一般財団法人総合科学研究機構（総合科学研究センター（総合科学研究室）及び中性子科学センター（研究開発・中性子科学センター・副主任研究員）

研究者番号：90392050

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：水素結合型誘起強誘電体の誘電応答の起源を理解するために、プロトンダイナミクスの観測を目的とした中性子および放射光X線回折法を用いた構造研究を行った。特に圧力効果と誘電応答の関連性を調べるため低温・圧力試料環境下における単結晶中性子回折法の構築を行い、水素位置と水素結合周りの構造変化を観測した。圧力誘起強誘電性相では、期待されたプロトン移動による強誘電性を示唆していることが明らかとなった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究により、高圧下の有機分子性結晶の構造解析を実現し、酸と塩基から成る水素結合型強誘電体の分極起源の理解を深めた。これまで困難であった有機分子性物質の低温・高圧下での回折実験手法の確立は、外部環境の変化に敏感で多彩な物性を示す有機分子性結晶の構造研究への発展に繋がった。また、電子デバイス素子などの有機エレクトロニクスにおける重要な学術要素のひとつとして貢献した。

研究成果の概要（英文）：Structural studies were performed using neutron diffraction and synchrotron radiation X-ray diffraction to clarify the origin of the dielectric response of hydrogen-bonded ferroelectrics. A single-crystal neutron diffraction method under low temperature and high pressure was established, and hydrogen atom parameters were determined by structural analysis. Structural changes within the hydrogen-bonded chain in the pressure-induced ferroelectric phase suggested polarization due to proton transfer.

研究分野：研究代表者の専門分野

キーワード：中性子回折 単結晶構造解析 有機強誘電体 プロトン移動 圧力誘起

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

分子性の有機結晶は、分子配列、分子軌道および分子構造の自由度を持ち、分子自身のもつ双極子だけではなく、分子の組み合わせや配列を利用して強誘電性を発現させる特異性をもち合わせている。これまで分子配列を利用した強誘電性を示す物質として、中性-イオン性転移を示す TTF-CA などの電荷移動錯体[1]が知られているが、酸と塩基から成る水素結合型強誘電体もまた、分子の組み合わせによる配列の自由度が鍵となる価数転移系のひとつであり、これまでの研究からプロトンダイナミクスが誘電応答に重要な役割を果たすことが知られている。このような誘電体の物性開拓は、新規物性の探索の観点からの学術的な重要性に止まらず、機能性材料開拓としての電子デバイス素子などとして有機エレクトロニクスの分野における応用的側面からの期待も高い。また、このような分子性の有機結晶は、設計可能な分子配列に加え、柔らかい格子をもつため、外部環境の変化に非常に敏感であり、分子の自由度が複雑に絡み合うことで強誘電性のみならず多彩な物性を示すことも特徴である。機能性分子開発を念頭に置いた新規物質・物性開拓にとって、外場によって結晶構造に与えられた摂動をパラメータとして整理しその電子状態を理解することは、分子の自由度を制御する上で重要な研究課題となっている。特に圧力は、実空間に直接的に影響を及ぼす外場として、原子間距離、すなわち電子間相互作用に大きく働く効果が期待され、自由度の役割を理解する上で有効な手段である[2]。

2. 研究の目的

本研究では、酸と塩基が交互に結合した特徴的な一次元の水素結合鎖をもつ多成分型の誘電体結晶を研究対象とし、温度および圧力効果に伴う構造変化をオーダーパラメータとして整理し、物性発現の関連性を解明することを目的としている。分極の起源を理解する上では、水素結合部位を含めた微細な構造変調を明らかにすることが必要不可欠であり、分子自身に極性(イオン性)がなくとも分子間の配列の変化や配列の変化によるごくわずかな水素変位によって極性が発現するという特徴をもつため、単結晶中性子回折法と放射光 X 線回折法を併用し、それぞれの利点を生かした回折実験を行う。特に低温・高圧下で強誘電性を示す圧力誘起強誘電体 dppz-H₂fa(置換ハロゲン:フルオロアニル酸)[3]においては、圧力セルの改良を行い中性子回折実験手法の構築することで、水素原子位置を含むモデルフリーのフルの単結晶構造解析を実現する。精度の高いパラメータから水素位置や分子配列の構造を明らかにし、分子の相互作用や電子状態の議論に繋げる。水素や酸・塩基の原子間距離をオーダーパラメータとして整理することで、水素結合型強誘電体の理解を深める。

3. 研究の方法

分子間の構造の歪みや分子内の結合状態を明らかにするには、単結晶を用いた水素の散乱能が高い中性子回折とカイラル結晶における異常分散の観測が可能な X 線回折法の相補的利用が有効な手段となる。本研究では、低温・圧力下での単結晶中性子および X 線構造解析を実施した。中性子回折実験は、反射数が多いことから高効率なデータ収集を可能にするために、J-PARC・MLF・BL-18 で TOF-Laue 法と 2 次元検出器を組み合わせて行った。本研究で用いた検出器と圧力セルのレイアウトを図 1 に示す。二次元検出器を用いた中性子実験では、一般に使用される BeCu 製ピストンシリンダー型セルからの回折像が積分反射強度の S/N 比に大きな影響を及ぼすことから、本研究では、バックグラウンドの一様性が高い材質のピストンシリンダー型セルを用いることで問題の解決を試みた。本研究では、以下を計画した。

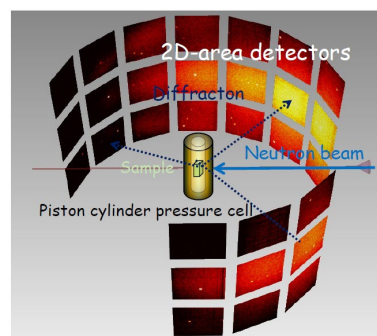


図 1 単結晶中性子回折装置 SENJU での高圧実験のレイアウト図

- 1) 中性子散乱を用いた高圧セルの評価と高圧・低温試料環境下 ($P < 2$ GPa, $4 < T < 300$ K) での構造解析の構築。
- 2) dppz-H₂fa の高圧・低温下での中性子・放射光 X 線単結晶構造解析。
- 3) 類似物質におけるオーダーパラメータの理解。

4. 研究成果

2,3-di(2-pyridinyl)pyrazine (dppz) とアニル酸 (H₂xa) からなる圧力誘起強誘電体 dppz-H₂fa は、dppz と H₂fa が交互に並び、dppz の窒素原子と H₂fa の水酸基間の O-H...N からなる一次元の水素結合鎖を形成している。室温・常温下では常誘電性を示し、低温・高圧下で強誘電性を示す(図 2)。この圧力誘起強誘電性には、プロトン移動が関与していることが強く示唆されているが[3]、プロトン移動や格子歪がどのように分子相互作用に変化をもたらすのかそのメカニズム

ムはまだ明らかとなっていない。極性が発現するための相互作用を理解するには、分子間・分子内の詳細な構造解析が必要となる。一般に分子性結晶は対称性が低く格子定数が大きいため測定領域の制約やセル材質からの散乱によって信頼性の高いかつ十分な数の反射強度データを得ることが難しく、圧力下でのX線測定では水素が寄与するシグナルを検出することが困難である。そこで、透過性の高い中性子線を用い、周期構造を持たない熱伝導性の高い金属ガラス製の圧力セル[4]を使用することで、 $P < 2$ GPa, 4 K $< T < 300$ K の試料環境を実現した。これにより、 1.27 GPa, 35 K での単結晶中性子回折実験によって水素原子が寄与する回折線を観測することに成功した(図3)。得られた中性子回折データから精密な水素の構造パラメータを抽出するために、圧力セルや媒体からの散乱によるバックグラウンド除去および反射強度補正を実施しデータ評価と測定条件の最適化を行った。データ収集では、逆空間の三次元領域の回折強度分布データが必要とされるが、図1のレイアウト図が示すように結晶の一軸回転では上下方向の測定領域の立体角が狭く、十分な反射点が得られない。そのため個々のブラッグ反射の積分強度のS/Nを上げるために等価反射を重複測定することにより、積分強度データの向上を図った。さらには、結晶の吸収補正を行うことで、圧力誘起強誘電相の結晶構造の精密化において、対称心の消滅に伴う対称性の低下によって倍増した独立原子パラメータの競合が抑えられ、合理的な値を得ることができた。最終的には、差フーリエ合成による水素位置と水素結合周りの構造変化が観測され、プロトン移動による分子極性を示唆する結果が得られた。

また、本研究の中で、フェナジン(Phz)とアニル酸(H₂xa)からなる水素結合型強誘電体 Phz-H₂xa の強誘電相の構造を明らかにした。Phz-H₂xa は、水素結合型強誘電体で最初に見つかった物質であり、置換ハロゲンの種類や、温度・圧力の外場パラメータによって種類の異なる強誘電相が出現する[5]。この物質もまた、誘電応答には一次元の水素結合鎖内の水素結合あるいはプロトンダイナミクスが重要な役割を果たす系である。これまでの研究から、Phz-H₂ca(置換ハロゲン：クロラニル酸)の場合は、中間強誘電相では空間群 $P2_1/n$ から $P2_1$ へと対称心を失うことで結晶学的に非等価になった水素結合内の水素原子のわずかな変位が分極を生じ[6]、さらに最低温強誘電相では、プロトン移動によるイオン性分子から成る水素結合鎖と中性分子から成る水素結合鎖が交互に積層した二倍の長周期構造を持つことで分極を生じることが明らかとなっている[7]。一方、Phz-H₂ba(置換ハロゲン：ブロマニル酸)の場合は、中間強誘電相までは Phz-H₂ca と同様の水素原子の非等価性が分極の起源となっているが、不整合相を経た最低温強誘電相で三倍周期の反射がX線回折実験によって観測された[5]。最低温相の結晶構造は、周期構造と対称性から12水素原子が結晶学的に非等価になることが予期される。X線回折実験から全ての水素原子位置を決定することは困難であるため、中性子回折実験を実施した。結晶構造解析の結果、結晶学的に独立した6つの水素結合鎖の中2つの水素結合鎖において、H₂ba からひとつのプロトンが Phz へ移動した Hba⁻ と HPhz⁺ のイオン性分子状態であることが分かった(図4)。イオン性分子から成る水素結合鎖と中性分子から成る水素結合鎖が *b* 軸方向に1:2で積層し、イオン性水素結合鎖のプロトンは、それぞれ[111]と[-11-1]の方向に移動している。これらのプロトン移動は、*ac* 面内では分極を打ち消し合い *b* 軸方向のみ自発分極を生じることが示唆されている。

本研究の成果は、今後の新物質・物性開拓のための設計指針に反映するものと期待される。

<引用文献>

- [1] S. Horiuchi, R. Kumaia, Y. Okimoto, Y. Tokura, Chem. Phys., 325, 78 (2006).
- [2] J. Yamaura, A. Nakao and R. Kato, J. Phys. Soc. Jpn. 73, 976 (2004).
- [3] S. Horiuchi, R. Kumai and Y. Tokura, J. Am. Chem. Soc. 135, 4492, (2013).
- [4] K. Komatsu, K. Munakata, et al., High Pressure Research, 35, 254, (2015).
- [5] S. Horiuchi, R. Kumaia, Y. Tokura, J. Mater. Chem., 19, 4421, (2009).
- [6] R. Kumai, S. Horiuchi, J. Fujioka, Y. Tokura, J. Am. Chem. Soc. 134, 1036, (2012).
- [7] “中性子単結晶構造解析による水素結合型有機強誘電体の分極の解明”, 中尾朗子, 熊井玲児, 中性子産業利用推進協議会季報-四季, 35 巻, 7, 2017 年.

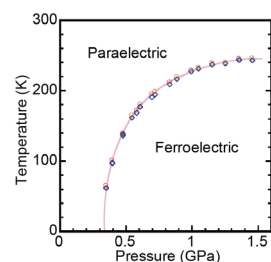


図2 dppz-H₂fa の誘電性の温度-圧力相図[3]

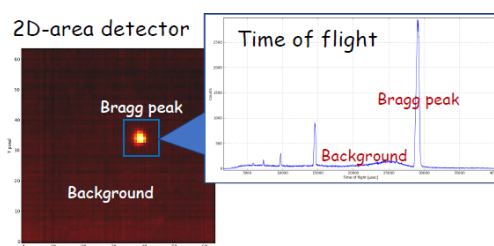


図3 低温・圧力下での単結晶中性子回折画像

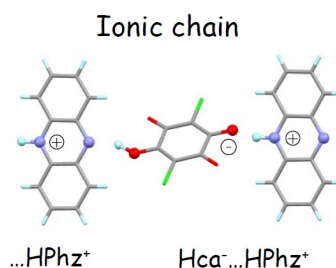


図4 Phz-H₂xa のイオン性水素結合鎖

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計28件（うち査読付論文 27件／うち国際共著 4件／うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Takeshi Matsumura, Mitsuru Tsukagoshi, Yoshihisa Ueda, Nonoka Higa, Akiko Nakao, Koji Kaneko, Masashi Kakihana, Masato Hedo, Takao Nakama, Yoshichika Onuki	4. 巻 91
2. 論文標題 Cycloidal Magnetic Ordering in Noncentrosymmetric EuIrGe ₃	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 73703
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/jpsj.91.073703	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 M. Fujihala, Y. Sakuma, S. Mitsuda, A. Nakao, K. Munakata, R. A. Mole, S. Yano, D. H. Yu, K. Takehana, Y. Imanaka, M. Akaki, S. Okubo, H. Ohta	4. 巻 105
2. 論文標題 Relief of spin frustration through magnetic anisotropy in the quasi-one-dimensional S=1/2 antiferromagnet Na ₂ CuS _{0.4} Cl ₂	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 144410
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/physrevb.105.1444	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Koji Kaneko, Takuro Kawasaki, Ai Nakamura, Koji Munakata, Akiko Nakao, Takayasu Hanashima, Ryoji Kiyonagi, Takashi Ohhara, Masato Hedo, Takao Nakama, Yoshichika Onuk	4. 巻 90
2. 論文標題 Charge-Density-Wave Order and Multiple Magnetic Transitions in Divalent Europium Compound EuAl ₄	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 J. Phys. Soc. Jpn.	6. 最初と最後の頁 64704
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.90.064704	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kenichi Maruyama, Seiya Tanaka, Shun Natori, Ikuya Bizen, Keisuke Amemiya, Ryoji Kiyonagi, Akiko Nakao, Kentaro Moriyama, Yoshihisa Ishikawa, Yasushi Amako, Taku Iiyama, Ryusuke Futamura, Shigenori Utsumi	4. 巻 892
2. 論文標題 Magnetic phase diagram of helimagnetic Ba(Fe _{1-x} Sc _x) ₁₂ O ₁₉ (0 < x < 0.2) hexagonal ferrite	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Alloys and Compounds	6. 最初と最後の頁 162125
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jallcom.2021.162125	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Daichi Ueta, Masahiro Yoshida, Tomohiro Kobuke, Yoichi Ikeda, Akiko Nakao, Taketo Moyoshi, Koji Munakata, Yaohua Liu, Takatsugu Masuda, and Hideki Yoshizawa	4. 巻 90
2. 論文標題 Oval-cycloidal Magnetic Structure with Phase-shift in the Non-centrosymmetric Tetragonal Compound CePdSi ₃	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 J. Phys. Soc. Jpn	6. 最初と最後の頁 114702
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.90.114702	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Takeshi Yajima, Yoyo Hinuma, Satoshi Hori, Rui Iwasaki, Ryoji Kanno, Takashi Ohhara, Akiko Nakao, Koji Munakata, Zenji Hiroi	4. 巻 A9
2. 論文標題 Correlated Li-ion migration in the superionic conductor Li ₁₀ GeP ₂ S ₁₂	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 J. Mater. Chem.	6. 最初と最後の頁 11278-11284
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D1TA00552A	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Tsuayoshi Omi, Yoshito Watanabe, Nobuyuki Abe, Hajime Sagayama, Akiko Nakao, Koji Munakata, Yusuke Tokunaga, and Taka-hisa Arima	4. 巻 103
2. 論文標題 Antiferromagnetic-to-ferrimagnetic phase transition with large electric-polarization change in a frustrated polar magnet CaBaCo ₄ O ₇	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Phys. Rev. B	6. 最初と最後の頁 184412
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.103.184412	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Hyunchul Kwon, Ewa Pietrasiak, Takashi Ohhara, Akiko Nakao, Boknam Chae, Chan-Cuk Hwang, Daesung Jung, In-Chul Hwang, Young Ho Ko, Kimoon Kim, Eunsung Lee	4. 巻 60
2. 論文標題 Programmable Synthesis of Silver Wheels	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Inorg. Chem.	6. 最初と最後の頁 6403-6409
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.inorgchem.1c00106	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Shigeyuki Ishida, Daniel Kagerbauer, Sigrid Holleis, Kazuki Iida, Koji Munakata, Akiko Nakao, Akira Iyo, Hiraku Ogino, Kenji Kawashima, Michael Eisterer, and Hiroshi Eisaki	4. 巻 118
2. 論文標題 Superconductivity-driven ferromagnetism and spin manipulation using vortices in the magnetic superconductor EuRbFe4As4	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Proc. Nat. Acad. Sci. U.S.A.	6. 最初と最後の頁 e2101101118
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1073/pnas.2101101118	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 K. Matsubayashi, H. Okamura, T. Mizokawa, N. Katayama, A. Nakano, H. Sawa, T. Kaneko, T. Toriyama, T. Konishi, Y. Ohta, H. Arima, R. Yamanaka, A. Hisada, T. Okada, Y. Ikemoto, T. Moriwaki, K. Munakata, A. Nakao, M. Nohara, Y. Lu, H. Takagi, Y. Uwatoko	4. 巻 90
2. 論文標題 Hybridization-gap Formation and Superconductivity in the Pressure-induced Semimetallic Phase of the Excitonic Insulator Ta ₂ NiSe ₅	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 J. Phys. Soc. Jpn.	6. 最初と最後の頁 74706
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.90.074706	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 K. Iida, H. K. Yoshida, A. Nakao, H. O. Jeschke, Y. Iqbal, K. Nakajima, S. Ohira-Kawamura, K. Munakata, Y. Inamura, N. Murai, M. Ishikado, R. Kumai, T. Okada, M. Oda, K. Kakurai, and M. Matsuda	4. 巻 101
2. 論文標題 q=0 long-range magnetic order in centennialite CaCu ₃ (OD)6Cl ₂ ·0.6D ₂ O: A spin-1/2 perfect kagome antiferromagnet with J ₁ -J ₂ -J _d ;	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Phys. Rev. B	6. 最初と最後の頁 220408
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.101.220408	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Tatsuki Sato, Yusuke Araki, Atsushi Miyake, Akiko Nakao, Nobuyuki Abe, Masashi Tokunaga, Shojiro Kimura, Yusuke Tokunaga, and Taka-hisa Arima	4. 巻 101
2. 論文標題 Magnetic phase diagram enriched by chemical substitution in a noncentrosymmetric helimagnet	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Phys. Rev. B	6. 最初と最後の頁 54414
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.101.054414	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 H. Masuda, H. Sakai, H. Takahashi, Y. Yamasaki, A. Nakao, T. Moyoshi, H. Nakao, Y. Murakami, T. Arima, S. Ishiwata	4. 巻 101
2. 論文標題 Field-induced spin reorientation in the antiferromagnetic Dirac material EuMnBi2 revealed by neutron and resonant x-ray diffraction	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Phys. Rev. B	6. 最初と最後の頁 174411
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.101.174411	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 N. Abe, S. Shiozawa, K. Matsuura, H. Sagayama, A. Nakao, T. Ohhara, Y. Tokunaga, and T. Arima	4. 巻 101
2. 論文標題 Magnetically induced electric polarization in Ba3Fe205Cl2 with tunable direction in three dimensions	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Phys. Rev. B	6. 最初と最後の頁 180407
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.101.180407	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Shinichiro Asai, Takuma Oyama, Kazuhiro Nawa, Akiko Nakao, Koji Munakata, Keitaro Kuwahara, Masato Hagihara, Shinichi Itoh, Zenji Hiroi, and Takatsugu Masuda	4. 巻 101
2. 論文標題 Helical and collinear spin density wave order in the S=1/2 one-dimensional frustrated chain compound NaCuMoO4(OH) investigated by neutron scattering	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Phys. Rev. B	6. 最初と最後の頁 144437
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.101.144437	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Shigenori Utsumi, Seiya Tanaka, Kenichi Maruyama, Nao Hatakeyama, Kenichi Itoh, Jun Koike, Akihiro Horikawa, Hiroki Iriyama, Hajime Kanamaru, Yasushi Amako, Taku Iiyama, Ryusuke Futamura, Ryoji Kiyonagi, Akiko Nakao, Kentaro Moriyama, Yoshihisa Ishikawa, and Nobuyuki Momozawa	4. 巻 5(38)
2. 論文標題 Flux Growth and Magnetic Properties of Helimagnetic Hexagonal Ferrite Ba(Fe _{1-x} Sc _x) ₁₂ O ₁₉ Single Crystals	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 ACS Omega	6. 最初と最後の頁 24890-24897
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsomega.0c03671	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Naoki Nakamura, Ryuji Higashinaka, Kengo Fushiya, Ryo Tsubota, Takashi U. Ito, Wataru Higemoto, Akiko Nakao, Ryoji Kiyonagi, Takashi Ohhara, Koji Kaneko, Tatsuma D. Matsuda, and Yuji Aoki	4. 巻 29
2. 論文標題 μ SR and Neutron Scattering Studied on Possible Partially-Disordered Magnetic State Coexisting with Heavy Quasiparticles in SmPt ₂ Si ₂	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 JPS Conf. Proc.	6. 最初と最後の頁 12009
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSCP.29.012009	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kenshirou Iba, Takeshi Matsumura, Akiko Nakao, Yoshihisa Ishikawa, Kazuki Ohishi, Ryoji Kiyonagi, Yusuke Kousaka, and Shigeo Ohara	4. 巻 30
2. 論文標題 Magnetic Structure of a Chiral Magnet DyNi ₃ Al ₉	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 JPS Conf. Proc.	6. 最初と最後の頁 11164
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSCP.30.011164	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Seiya Nakazato, Kazuaki Iwasa, Daisuke Hashimoto, Mami Shiozawa, Keitaro Kuwahara, Hironori Nakao, Hajime Sagayama, Motoyuki Ishikado, Takashi Ohhara, Akiko Nakao, Koji Munakata, and Ryoji Kiyonagi	4. 巻 30
2. 論文標題 Successive Phase Transitions in R ₃ Ir ₄ Sn ₁₃ (R: La and Ce) Investigated Using Neutron and X-ray Diffraction	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 JPS Conf. Proc.	6. 最初と最後の頁 11128
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSCP.30.011128	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Shugo Ikeda, Koji Kaneko, Yuki Tanaka, Takuro Kawasaki, Takayasu Hanashima, Koji Munakata, Akiko Nakao, Ryoji Kiyonagi, Takashi Ohhara, Kenji Mochizuki, Akihiro Kondo, Koichi Kindo, Yoshiya Homma, Matthias D. Frontzek, Hisao Kobayashi	4. 巻 89
2. 論文標題 Multi-Step Magnetic Transitions in EuNiIn ₄	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 J. Phys. Soc. Jpn.	6. 最初と最後の頁 14707
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.89.014707	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kenichi Maruyama, Seiya Tanaka, Ryoji Kiyonagi, Akiko Nakao, Kentaro Moriyama, Yoshihisa Ishikawa, and Shigenori Utsumi	4. 巻 33
2. 論文標題 Helimagnetism of Ba(Fe _{1-x} Sc _x) ₁₂ O ₁₉ Studied by Magnetization Measurement and Neutron Diffraction	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 JPS Conf. Proc.	6. 最初と最後の頁 11061
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSCP.33.011061	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Akiko Nakao, Taketo Moyoshi, Kentaro Moriyama, Takeshi Matsumura, Kenshirou Iba, Shigeo Ohara, Yoshihisa Ishikawa, Koji Munakata, Takashi Ohara, and Ryoji Kiyonagi	4. 巻 33
2. 論文標題 Determination of Crystallographic Planes for a Polyhedral Single Crystal	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 JPS Conf. Proc.	6. 最初と最後の頁 11067
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSCP.33.011067	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Nakane Tomohiro, Yoneyama Shota, Kodama Takeshi, Kikuchi Koichi, Nakao Akiko, Ohara Takashi, Higashinaka Ryuji, Matsuda Tatsuma D., Aoki Yuji, Fujita Wataru	4. 巻 48
2. 論文標題 Magnetic, thermal, and neutron diffraction studies of a coordination polymer: bis(glycolato)cobalt(ii)	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Dalton Transactions	6. 最初と最後の頁 333 ~ 338
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c8dt04358b	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Koji Kaneko, Matthias D. Frontzek, Masaaki Matsuda, Akiko Nakao, Koji Munakata, Takashi Ohara, Masashi Kakihana, Yoshinori Haga, Masato Hedo, Takao Nakama, and Yoshichika Onuki	4. 巻 88
2. 論文標題 Unique helical magnetic order and field-induced phase in trillium lattice antiferromagnet EuPtSi	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 J. Phys. Soc. Jpn.	6. 最初と最後の頁 13702
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.88.013702	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 H. Tamatsukuri, S. Mitsuda, T. Shimizu, M. Fujihala, H. Yokota, K. Takehana, Y. Imanaka, A. Nakao, and K. Munakata	4. 巻 100
2. 論文標題 Nonlinear piezomagnetolectric effect in CuFeO ₂	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Phys. Rev. B	6. 最初と最後の頁 201105(R)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.100.201105	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 K. Iida, Y. Nagai, S. Ishida, M. Ishikado, N. Murai, A. D. Christianson, H. Yoshida, Y. Inamura, H. Nakamura, A. Nakao, K. Munakata, D. Kagerbauer, M. Eisterer, K. Kawashima, Y. Yoshida, H. Eisaki, and A. Iyo	4. 巻 100
2. 論文標題 Coexisting spin resonance and long-range magnetic order of Eu in EuRbFe ₄ As ₄	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Phys. Rev. B	6. 最初と最後の頁 14506
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.100.014506	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Yasuhiro Shimizu, Akihiro Otsuka, Mitsuhiro Maesato, Masahisa Tsuchiizu, Akiko Nakao, Hideki Yamochi, Takaaki Hiramatsu, Yukihiro Yoshida, and Gunzi Saito	4. 巻 99
2. 論文標題 Molecular diamond lattice antiferromagnet as a Dirac semimetal candidate	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Phys. Rev. B	6. 最初と最後の頁 174417
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.99.174417	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Masato Matsuura, Takahiko Sasaki, Satoshi Iguchi, Elena Gati, Jens Muller, Oliver Stockert, Andrea Piovano, Martin Bohm, Jitae T. Park, Sananda Biswas, Stephen M. Winter, Roser Valenti, Akiko Nakao, and Michael Lang	4. 巻 123
2. 論文標題 Lattice Dynamics Coupled to Charge and Spin Degrees of Freedom in the Molecular Dimer-Mott Insulator $-(\text{BEDT-TTF})_2\text{Cu}[(\text{N}(\text{CN})_2)]\text{Cl}$	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Phys Rev Lett.	6. 最初と最後の頁 27601
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevLett.123.027601	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計2件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 A. Nakao, T. Moyoshi, K. Moriyama, T. Matsumura, K. Iba, S. Ohara, Y. Ishikawa, K. Munakata, T. Ohhara, R. Kiyana
2. 発表標題 Identification of crystallographic planes of a polyhedral crystal at SENJU
3. 学会等名 25th Congress of the International Union of Crystallography (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 A. Nakao, T. Moyoshi, K. Moriyama, T. Matsumura, K. Iba, S. Ohara, Y. Ishikawa, K. Munakata, T. Ohhara and R. Kiyana
2. 発表標題 Development of absorption correction based on measured crystal faces at SENJU
3. 学会等名 The 3rd J-PARC symposium (国際学会)
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	宗像 孝司 (Munakata Koji) (00363408)	一般財団法人総合科学研究機構（総合科学研究センター（総合科学研究室）及び中性子科学センター（研究開発・中性子科学センター・副主任技師） (82121)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------