

令和 5 年 6 月 15 日現在

機関番号：32660

研究種目：若手研究

研究期間：2018～2022

課題番号：18K13987

研究課題名(和文) Cd-Mg-Yb 20面体準結晶のF型超構造の実現と構造解明

研究課題名(英文) Formation and structure analysis for F-type superstructure of Cd-Mg-Yb icosahedral quasicrystal

研究代表者

山田 庸公 (Tsunetomo, Yamada)

東京理科大学・理学部第一部応用物理学科・助教

研究者番号：60638584

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：Cd-Mg-Yb正二十面体準結晶の超構造の短距離秩序に関して、以下の点の成果を得た。
1. Cd-Mg-Yb 1/1近似結晶の超構造について構造解析を行った結果、超構造の形成には、イコシドデカヘドロンシェル上の48hサイトにおけるCd/Mg占有率、およびクラスター中心にあるテトラヘドロンの配向が関与していることがわかった。2. Cd-Mg-Yb二十面体準結晶中のイコシドデカヘドロン上のCd/Mg占有の仕方が、Cd-Mg-Yb1/1近似結晶のものと同様であると仮定し、イコシドデカヘドロンシェルをつくる占有領域を分割した。3. 正二十面体準結晶の6次元構造を構築するためのソフトウェアを開発した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

単結晶回折法による準結晶の構造解析手法は確立されたものであり、構造精密化等のためのソフトウェアパッケージが公開されている。ただし、高次元構造を作成するためのソフトウェアが無く、構造モデルの作成・改良には膨大な時間と労力を必要としてきた。本研究により、正二十面体準結晶の6次元構造を構築するためのソフトウェアが開発・公開されたことに学術的意義がある。

研究成果の概要(英文)：The following results were obtained regarding the short-range order of superstructure of the Cd-Mg-Yb icosahedral quasicrystal. 1. As a result of the structure analysis of F-type superstructure of the Cd-Mg-Yb 1/1 approximant, the formation of the F-type superstructure order is resulted from the selective occupation of Cd/Mg at 48 h site on the icosidodecahedron shell and the orientation of innermost tetrahedron shell. 2. A six-dimensional structural model of the primitive Tsai-type icosahedral quasicrystals was modified so as to incorporate the selective Cd/Mg occupation found in the 1/1 approximants. 3. A Python3 package for structure modelling of icosahedral QCs was developed.

研究分野：金属材料

キーワード：準結晶 高次元結晶学

1. 研究開始当初の背景

準結晶の原子的構造は、 n 次元周期構造($n > 3$)の3次元実空間断面として記述できる。この n 次元周期構造は実空間に垂直な $(n-3)$ 次元補空間で定義される仮想的な $(n-3)$ 次元物体(占有領域や超原子などと呼ばれる)が周期配列したものである。準結晶の構造解析では、予め形状と位置を決定した占有領域について、最小二乗法により物理空間へのシフト量や温度因子などを決定する。

2007年にCd-Yb正二十面体準結晶の構造解析が為され、準結晶の詳細な原子構造が初めて解明された。研究代表者等は、Zn-ScやCd-希土類正二十面体準結晶などの二元系準結晶の構造解析に取り組み、それらの原子的構造を明らかにした。また、近年は三元系のCd-Mg-Yb正二十面体準結晶の構造解明に取り組んでいる。放射光を用いてCd-Mg-Yb準結晶について単結晶X線回折強度測定を行ったところ、超格子反射位置に散漫散乱強度を観測した。さらに、Cd-Mg-Yb 1/1近似結晶がF型超格子構造をとることを見出した。これら準結晶と近似結晶の合金組成が極めて近いことから、準結晶中の短距離秩序と近似結晶のF型超構造の形成起源は同じものであると推測される。

2. 研究の目的

本研究では、Cd-Mg-Yb 1/1近似結晶で見出したF型超格子構造を解明し、超構造形成のメカニズムを明らかにする。さらに、Cd-Mg-Yb正二十面体準結晶中にあるクラスタ上のCd/Mg占有の仕方が、Cd-Mg-Yb 1/1近似結晶の超構造と同様であると仮定し、各クラスタシェルをつくる占有領域を構築・分割することで、三元系準結晶の構造解析に適用可能な6次元構造モデルを作成する。

3. 研究の方法

まず、単結晶X線回折法を用いて、Cd-Mg-Yb 1/1近似結晶で見出したF型超格子構造の構造解析を行った。次で、正二十面体準結晶の6次元構造モデルについて、占有領域を構築するためのソフトウェアを開発した。そして、Cd-Mg-Yb 1/1近似結晶で見出したF型超構造中のCd/Mg占有の仕方を参考に、Cd-Mg-Yb正二十面体準結晶中にある各クラスタシェルをつくる占有領域を構築・分割し、新たな6次元構造モデルを作成した。

4. 研究成果

Cd-Mg-Yb 1/1近似結晶の超構造について、単結晶X線回折強度測定により11437個の反射を観測した。この強度データを用いてF型超構造の構造精密化を行った。その結果、超構造の形成には(1)イコシドデカヘドロンシェル上の48hサイトにおけるCd/Mg占有率、および(2)クラスター中心にあるテトラヘドロン配向、2点に関与していることがわかった。図1にF型超構造中の2種類の原子クラスタを示した。

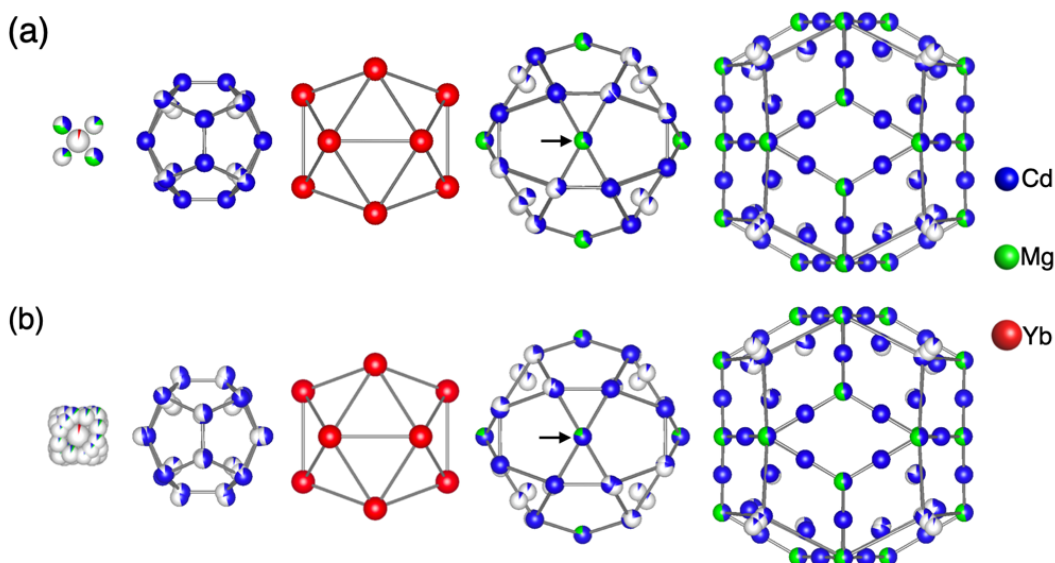


図1 Cd-Mg-Yb 1/1近似結晶のF型超構造における2種類の原子クラスタ。(a) (0, 0, 0)位置、(b) (1/2, 1/2, 1/2)位置にあるクラスタ。図中の矢印は48hサイトを示す。

一方、占有領域を作成するためのプログラムを開発し、Python3 で使用可能なライブラリ (PyQCstrc) として発表した。図 2a は PyQCstrc を用いた高次元構造モデリングの様子を示すスクリーンショットである。そして PyQCstrc を用いることで、Cd-Mg-Yb 二十面体準結晶中のイコシドデカヘドロン上の Cd/Mg 占有の仕方が、Cd-Mg-Yb1/1 近似結晶のものと同様であると仮定し、イコシドデカヘドロンシェルをつくる占有領域を 3 つに分割した。分割した占有領域の非対称領域を図 2b-d に示した。

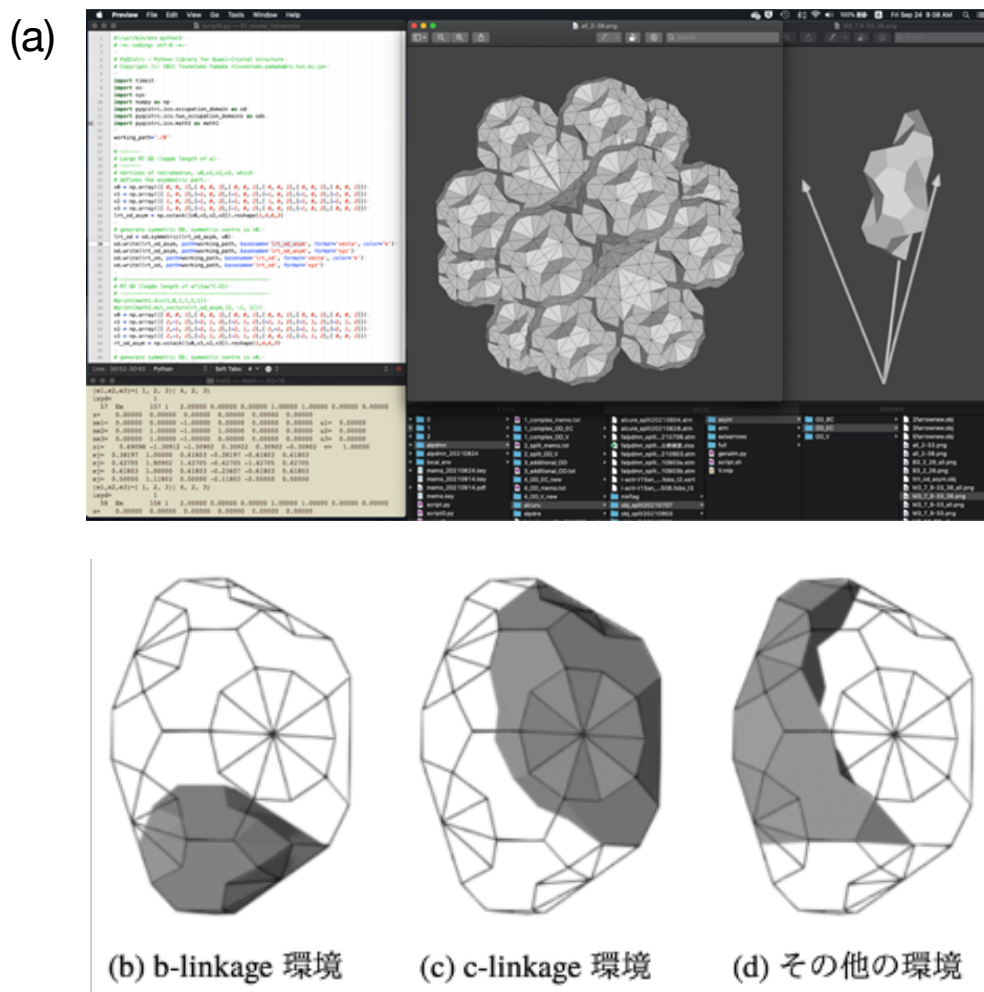


図 2 (a) PyQCstrc を用いた高次元構造モデリングの様子。(b-d) 分割したイコシドデカヘドロンをつくる占有領域。

単結晶回折法による準結晶の構造解析手法はすでに確立されたものであり、構造精密化等のためのソフトウェアパッケージが公開されている。ただし、高次元構造を作成するためのソフトウェアが無く、構造モデルの作成・改良には膨大な時間と労力を必要としてきた。本研究により、正二十面体準結晶の 6 次元構造を構築するためのソフトウェアが開発されたことで、今後の準結晶構造解析が加速するものと期待される。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計11件（うち査読付論文 11件 / うち国際共著 2件 / うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Yamada Tsunetomo	4. 巻 54
2. 論文標題 PyQCstrc.ico: a computing package for structural modelling of icosahedral quasicrystals	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Applied Crystallography	6. 最初と最後の頁 1252 ~ 1255
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1107/S1600576721005951	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Yamada Tsunetomo, Fujita Nobuhisa, Labib Farid	4. 巻 77
2. 論文標題 2/1 and 1/1 cubic approximants in the ternary R-Cd-Mg (R = Y, Er) systems	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Acta Crystallographica Section B Structural Science, Crystal Engineering and Materials	6. 最初と最後の頁 638 ~ 648
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1107/S2052520621006715	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Yamada Tsunetomo	4. 巻 101
2. 論文標題 Superstructure formation in a ternary Yb-Cd-Mg 1/1 quasicrystal approximant	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Philosophical Magazine	6. 最初と最後の頁 257 ~ 275
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1080/14786435.2020.1832706	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 Labib Farid, Okuyama Daisuke, Fujita Nobuhisa, Yamada Tsunetomo, Ohashi Satoshi, Morikawa Daisuke, Tsuda Kenji, Sato Taku J, Tsai An-Pang	4. 巻 32
2. 論文標題 Structural-transition-driven antiferromagnetic to spin-glass transition in Cd-Mg-Tb 1/1 approximants	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Condensed Matter	6. 最初と最後の頁 485801 ~ 485801
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-648X/aba921	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 Labib Farid, Okuyama Daisuke, Fujita Nobuhisa, Yamada Tsunetomo, Ohhashi Satoshi, Sato Taku J, Tsai An-Pang	4. 巻 32
2. 論文標題 Magnetic properties of icosahedral quasicrystals and their cubic approximants in the Cd-Mg-RE (RE = Gd, Tb, Dy, Ho, Er, and Tm) systems	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Condensed Matter	6. 最初と最後の頁 415801 ~ 415801
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-648x/ab9343	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 Yamada Tsunetomo, Nakamura Yoko, Watanuki Tetsu, Machida Akihiko, Mizumaki Masaichiro, Nitta Kiyofumi, Sato Akira, Matsushita Yoshitaka, Tsai An-Pang	4. 巻 58
2. 論文標題 Formation of an Intermediate Valence Icosahedral Quasicrystal in the Au-Sn-Yb System	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Inorganic Chemistry	6. 最初と最後の頁 9181 ~ 9186
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.inorgchem.9b00801	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 Inagaki K., Suzuki S., Ishikawa A., Tsugawa T., Aya F., Yamada T., Tokiwa K., Takeuchi T., Tamura R.	4. 巻 101
2. 論文標題 Ferromagnetic 2/1 quasicrystal approximants	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 180405
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.101.180405	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 Yoshida S., Suzuki S., Yamada T., Fujii T., Ishikawa A., Tamura R.	4. 巻 100
2. 論文標題 Antiferromagnetic order survives in the higher-order quasicrystal approximant	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 180409
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.100.180409	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 T. Yamada, T. Kurihara, Y. Prots, A. Sato, Y. Matsushita, Y. Grin, A.P. Tsai	4. 巻 58
2. 論文標題 Synthesis and Atomic Structure of the Yb-Ga-Au 1/1 Quasicrystal Approximant	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Inorganic Chemistry	6. 最初と最後の頁 6320-6327
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.inorgchem.9b00513	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 I. Buganski, K. Toyonaga, H. Takakura, T. Yamada, M. de Boissieu, O. Perez, P. Fertey, J. Wolny	4. 巻 印刷中
2. 論文標題 The structure solution of the F-type i-ZnMgHf from the X-ray diffraction	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Materials Science and Technology	6. 最初と最後の頁 印刷中
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1080/02670836.2019.1612579	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 A. Ishikawa, T. Fujii, T. Takeuchi, T. Yamada, Y. Matsushita, and R. Tamura	4. 巻 98
2. 論文標題 Antiferromagnetic order is possible in ternary quasicrystal approximants	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 220403(R)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.98.220403	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18件 (うち招待講演 3件 / うち国際学会 6件)

1. 発表者名 Tsunetomo Yamada
2. 発表標題 Atomic structures of Tsai-type icosahedral quasicrystals and approximants
3. 学会等名 IUCr 2021 - XXV General Assembly and Congress of the International Union of Crystallography (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 H. Uryu, T. Yamada, H. Takakura, Y. Inada, K. Kimura, R. Tamura, L. Chang, R. Yoshida
2. 発表標題 Exploration of new quasicrystals and approximants by using machine learning
3. 学会等名 IUCr 2021 - XXV General Assembly and Congress of the International Union of Crystallography (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Tsunetomo Yamada, Nobuhisa Fujita, Farid Labib
2. 発表標題 2/1 and 1/1 cubic approximants in ternary R-Cd- Mg (R= Y, Er) systems
3. 学会等名 International Research Network - Open space between aperiodic order and physics & chemistry of materials (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Tsunetomo Yamada
2. 発表標題 PyQCstrc: A Python library for structural modeling of quasicrystals
3. 学会等名 Materials Research Meeting 2021 (MRM2021) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 山田庸公、高倉洋礼、山本昭二
2. 発表標題 F型AI基正20面体準結晶の6次元構造モデル
3. 学会等名 第26回準結晶研究会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 瓜生 寛堂, 山田 庸公, 宮尾 直哉, 石川 明日香, 田村 隆治, 岩崎 祐昂, 北原 功一, 木村 薫, 劉 暢, 吉田 亮
2. 発表標題 粉末X線回折図形から準結晶相同定を行うための機械学習モデル
3. 学会等名 第26回準結晶研究会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 熊澤郁弥, 山田庸公, 高倉洋礼
2. 発表標題 Zn-Mg-Sc 2/1近似結晶の構造解析
3. 学会等名 日本物理学会 第77回年次大会 (2022年)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 瓜生寛堂, 山田庸公, 宮尾直哉, 石川明日香, 田村隆治, 岩崎祐昂, 北原功一, 木村薫, 劉暢, 吉田亮
2. 発表標題 粉末X線回折図形から準結晶相同定を行うための機械学習モデル
3. 学会等名 日本物理学会 第77回年次大会 (2022年)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 山田庸公
2. 発表標題 Tsai 型正二十面体準結晶の原子的構造の解明
3. 学会等名 日本物理学会2020年秋季大会 (招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 平野由真, 林裕人, 石政勉, 蔡安邦, 山田庸公, 井村敬一郎, 出口和彦, 佐藤憲昭
2. 発表標題 Zn系準結晶及びCd-Mg-Yb準結晶の電気抵抗率の温度依存性の研究
3. 学会等名 日本物理学会・2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 T. Yamada, Y. Nakamura, T. Watanuki, A. Machida, M. Mizumaki, K. Nitta, A. Sato, Y. Matsushita, A.P. Tsai
2. 発表標題 Formation of Intermediate Valence Icosahedral Quasicrystal in Au-Sn-Yb system
3. 学会等名 14th International Conference on Quasicrystals, ICQ14 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 T. Yamada
2. 発表標題 Atomic structures of Tsai-type icosahedral quasicrystals
3. 学会等名 75th Annual Meeting of the Physical Society of Japan (2020)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 豊永詞, 山田庸公, Marc de Boissieu, Oliver Perez, Pierre Fertey, 高倉洋礼
2. 発表標題 F型Al-Cu-Ru正20面体準結晶の構造精密化
3. 学会等名 日本物理学会・第74回年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 林裕人, 石政勉, 蔡安邦, 山田庸公, 井村敬一郎, 出口和彦, 佐藤憲昭
2. 発表標題 Zn-T-Sc (T=Ag, Mg) 及びCd-Mg-Yb準結晶の極低温電気抵抗測定
3. 学会等名 日本物理学会、2018年秋季大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Kaoru Shibata, Tsunetomo Yamada, Marc de Boissieu
2. 発表標題 QENS study of tetrahedron dynamics in the Zn6Sc 1/1 approximant to the quasicrystal
3. 学会等名 QENS 2018
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Tsunetomo Yamada, Hiroyuki Takakura, Marc de Boissieu, An-Pang Tsai
2. 発表標題 Atomic structures of the Yb-Cd-Mg icosahedral quasicrystals and 1/1 approximants
3. 学会等名 Aperiodic-2018 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Ireneusz Buganski, Kotoba Toyonaga, Hiroyuki Takakura, Tsunetomo Yamada, Marc de Boissieu, Olivier Perez, Pierre Fertey, Janusz Wolny
2. 発表標題 The structure formation of the F-type ZnMgHf icosahedral quasicrystal
3. 学会等名 Aperiodic-2018
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Kotoba Toyonaga, Tsunetomo Yamada, Marc de Boissieu, Olivier Perez, Pierre Fertey, Hiroyuki Takakura
2. 発表標題 Growth and characterization of Al-Cu-Ru icosahedral quasicrystals from self-fluxes
3. 学会等名 Aperiodic-2018
4. 発表年 2018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
---------------------------	-----------------------	----

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
---------	---------