

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年 3月31日現在

機関番号：34419

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2010～2012

課題番号：22540375

研究課題名（和文） ソフト準結晶-準結晶の普遍性と新物性の理論的研究

研究課題名（英文） Soft quasicrystals - Theoretical studies on the universality and new physical properties of quasicrystals

研究代表者

堂寺 知成 (DOTERA TOMONARI)

近畿大学・理工学部・教授

研究者番号：30217616

研究成果の概要（和文）：結晶形成には引力は必要なく、剛体球ポテンシャル（斥力）だけで結晶形成するという Alder らの発見は 1957 年の発見当時大きな驚きをもたらした。本研究によって、剛体球の外側にステップ状の斥力を付加した単純なハードコア・ソフトシェル模型で、10 回、12 回、18 回対称のさまざまな準結晶が生成されることがわかった。この結果はスケールや物質の特殊性に依存せず、一般的メカニズムで準結晶が生成されることを示した重要な成果で、準結晶研究および物質科学に大きな進展をもたらした。

研究成果の概要（英文）：Alder's discovery in 1957 that attractive interactions are not necessary for the formation of crystals caused a great sensation at that time. This study showed that several (10-fold, 12-fold and 18-fold) quasicrystals were obtained from the simple hard-core / soft-shell model made of hard-core plus square-shoulder potential. This result implies that the formation of quasicrystals does not depend on scales nor materials, rather they obeys a generic principle, therefore this study made great progress in the study of quasicrystals and material sciences.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	2,000,000	600,000	2,600,000
2011年度	700,000	210,000	910,000
2012年度	700,000	210,000	910,000
年度			
年度			
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性 II

キーワード：(E) 金属

1. 研究開始当初の背景  
古典結晶学で許されない回転対称性を持つ Shechtman, Steinhardt らの「準結晶」の発見は 20 世紀後半の物質科学上の大発見の 1 つに数えられている。すなわち、固体構造は

それまで結晶あるいはアモルファス（ガラス）構造と考えられてきたが、蔡（東北大）による一連の実験的発見によって、準結晶はそのどちらにも属さない第 3 の固体構造であることが確立された。しかし、20 世紀の準結

晶研究は主に合金系で閉じられていた。

ところが、2004年 Xeng らによって超分子デンドリマー液晶準結晶発見に始まり、2007年林田、高野、松下（名大）および研究代表者は高分子準結晶を発見した。われわれの一連の業績は、Polymer Physics Prize を受賞し、Phys. Rev. Focus, 米国化学会誌, Nature, Science でニュースとなるなど大きな反響を呼んだ。これまで実験的に確認できた準結晶タイリングの1辺の長さで言えば、合金系(0.5nm)、カルコゲナイド系(2nm)、超分子系(10nm)、高分子系(50nm)と、物質の階層に関わらず普遍的に準結晶構造があることになる。

このように物質系が広がり、数学、物理、化学、工学など学問領域としても広がり、発見25年を経て準結晶研究が確実に広がっている。その中であって、ソフト準結晶は準結晶の電子論ではない基本的理解の鍵となる物質系であるとともに、光波領域の構造が作れる点でフォトニクスへの応用の観点からも非常に重要な物質系である。

## 2. 研究の目的

研究代表者は1996年以来、高分子がつくるタイリング構造の研究を行ってきた。このコンセプトは先駆的で実験家を巻き込み、アルキメデスタイリング構造として世界に認知された。その延長線上で、平成18-20年の基盤研究(C)の最大の成果は高分子準結晶タイリングの発見であった。引き続くこの3年計画で成果を挙げたいと考えたことは次の点である。

「準結晶とは何か」その普遍性を理論的に考察したい。簡単にいえば、準結晶はそんなに特殊なものではなくて、どこにでもあり得るものであることを示したい。金属系以外にも準結晶があるということは、これまでの準結晶の起源論に再考を促す契機であり、より一般的に理論研究を行うべき時期にきたと思われる。そのために、本計画ではわれわれの発見した高分子準結晶に基礎をおきつつ、プログラムを開発しながら計算能力を高め、幅広くソフト準結晶の統計力学的研究、シミュレーション研究を遂行する。準結晶生成を行い、どこにでもあることを示したい。

この研究課題の目指すものは、主に合金に限られていた準結晶研究の地平を、遙か彼方、数百倍スケールアップしたメソ領域に広げようという革新的な試みである。金属（ハードマター）と高分子（ソフトマター）、物理、化学という異なる研究分野を横断する学際的発想に、この研究計画の特色と獨創性がある。予想される結果と意義は、ハードマターとソフトマターに共通する準結晶の形成原理を解明することである。ソフトマターとハードマター両者の境界が揺らぎ、新しいフェ

ーズに突入した現在において、両者を行き来する柔軟な思考をもった研究が期待されている。若手に分野横断的な研究の手本を示すこともこの研究の大きな目的である。

## 3. 研究の方法

### (1) 研究体制

- ①大学院生：1名または2名程度と下記の計画に協力して理論的研究を行う。
- ②共同研究：名古屋大学の松下研究室と複雑高分子のマイクロ相分離の実験的発見を目的として共同研究を行う。

### (2) 研究計画

- ①平成22年度の重点テーマ：準結晶の普遍性の解明のために計算研究を行う。
- ②平成23年度以降の重点テーマ：準結晶の普遍性の解明のためにコロイドシミュレーションを行う。また、複雑高分子の格子シミュレーション研究を行う。

### (3) 研究方法

研究目的を達成するための主たる研究方法はモンテカルロ法である。申請者が開発した複雑な共連続相をシミュレーションできる世界に秀でた方法を用いる。また、3重周期極小曲面のアルダー転移、コロイド系にもモンテカルロ法を応用する。

## 4. 研究成果

(1) 結晶形成には引力は必要ではなく、剛体球ポテンシャルで可能であるというAlderらの発見は1957年当時大きな驚きをもたらしたが、本研究では剛体球の外側にステップ状の斥力を付加しただけのハードコア-ソフトシェルモデルのモンテカルロシミュレーションを行った。ポテンシャルは極めて単純であるがコアシェル比と粒子密度の調整によって引力なしに、初年度12回対称準結晶、2年度目10回対称準結晶、18回対称準結晶、最終年度は疑24回対称準結晶を発見した。この結果はスケールや物質の特殊性に依存せず、普遍的メカニズムで準結晶ができることを示したと言え、研究課題の目的を達成した重要な成果である。コアシェルナノ微粒子系またはコロイド粒子系で実験的にも実現可能である。

(2) 研究代表者の主導するソフト準結晶研究が世界的にも大きな話題を呼んだ。2011年ノーベル化学賞がイスラエルのシェヒトマン教授に授与されたが、研究代表者が発見した「高分子準結晶」もノーベル賞発表の際に選考委員に言及され、その解説文にも論文が引用された。またノーベル賞の記念論文集に研究代表者は解説を寄稿している。2012年はノーベル賞を記念した国際会議が複数開催されたが、特にMRS秋大会で初めてソフト準結晶だけのセッションが企画され、Nature Chemistry のブログ THE SCEPTICAL CHYMIST

で、研究代表者の講演が取り上げられ (Fall MRS 2012: Quasicrystals go mainstream) 「この研究分野は急速に発展し、見逃す手はない (this subfield is growing rapidly - it is definitely one to watch)」と評価された。(3)副産物として、複雑高分子系などソフトマターに関連した構造である三重周期極小曲面上のAlder転移の計算研究およびその曲面上の規則構造の研究が進展した。急速に発展する分野への研究への足がかりを得た。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 7 件)

1. 「3 重周期極小曲面上の剛体球」, 堂寺知成, 松澤淳一, 特集「現代幾何学と物質科学との新融合領域」日本表面科学会誌 34 第 1 号 pp. 21-26 (2013) 査読有。
2. 「Hard Spheres on the Gyroid Surface」 T. Dotera, M. Kimoto and J. Matsuzawa, Interface Focus, 2, 575-581 (2012) 査読有。特集 Geometry of interfaces: topological complexity in biology and materials, DOI: 10.1098/rsfs.2011.0092。
3. 内表紙「Toward the discovery of new soft quasicrystals: From a numerical study viewpoint」 T. Dotera J. Polym. Sci. Part B: Polym. Phys. 50, 155-167 (2012) 査読有。 DOI:10.1002/polb.22395。
4. 依頼解説「Quest for the Gyroid Labyrinth: Geometry and Topology in Soft Matter」 T. Dotera, JPSJ Online-News and Comments [August 17, 2012] 査読有。 <http://storageex.ipap.jp/~jpsjoffice/jpsj.ipap.jp/news/jpsj-nc-112.html>。
5. ノーベル賞記念論文集 解説論文「Quasicrystals in Soft Matter」 T. Dotera, Israel Journal of Chemistry, 51, 1197-1205 (2011) 査読有。 DOI: 10.1002/ijch.201100146。 同誌の **Most-downloaded articles in 2012 に選ばれた。**
6. 「Kaleidoscopic morphologies from ABC star-shaped terpolymers」 Y. Matsushita, K. Hayashida, T. Dotera & A. Takano, J. Phys. Condens. Matter, 23, 284111 (2011) 査読有。 doi:10.1088/0953-8984/23/28/284111。
7. 「Hyperbolic Tiling on the Gyroid Surface in a Polymeric Alloy」 T. Dotera & J. Matsuzawa, RIMS, Kokyuroku, No. 1725, 80-91 (2011) 査読無。

[学会発表] (計 30 件)

1. 招待講演「拘束空間中の高分子」堂寺知成, 日本物理学会年会 領域 12, 7, 11 シンポジウム (2013 年 3 月 27 日広島大学 (広島県))。
2. 「ハードコア-ソフトショルダー粒子系の 2 次元準結晶形成」堂寺知成, 大城辰也, P. Ziherl 第 17 回準結晶研究会 (2012 年 12 月 20 日 近畿大学 (大阪府))。
3. 「ハードコア-ソフトショルダー粒子系の 2 次元準結晶-多角形解析」小林 昭博, 堂寺知成, 第 17 回準結晶研究会 (2012 年 12 月 20 日近畿大学 (大阪府))。
4. 「Hard Spheres on the Gyroid Surface」 T. Dotera, et al., MRS Fall Meeting 2012 (2012 年 11 月 29 日 Boston (USA))。
5. 「Quasicrystals formed by hard-core/square-shoulder particles」 T. Dotera, T. Oshiro, P. Ziherl, MRS Fall Meeting 2012 (2012 年 11 月 27 日 Boston (USA))。
6. 招待講演「ソフト準結晶 - 準結晶の新展開 - 2011 年ノーベル化学賞『準結晶の発見』」, 堂寺知成 (2012 年 9 月 26 日 高分子分析研究懇談会 (ホテルゆうぼうと品川 (東京都))。
7. 「ハードコア-ソフトショルダー粒子系の 2 次元準結晶形成」堂寺知成, 大城辰也, P. Ziherl, 日本物理学会分科会 (2012 年 9 月 20 日横浜国立大学 (神奈川県))。
8. 「Quasicrystals formed by hard-core/square-shoulder particles」 T. Dotera, T. Oshiro, P. Ziherl, Aperiodic 2012 (2012 年 9 月 4 日 Cairns (Australia))。
9. 「ハードコア-ソフトシェル粒子系の準結晶形成シミュレーション II」堂寺知成, 大城辰也, P. Ziherl, 高分子学会年次大会 (2012 年 5 月 31 日パシフィコ横浜 (神奈川県))。
10. 「QUASICRYSTALS FORMED BY HARD-CORE/SQUARE-SHOULDER PARTICLES」 T. Dotera et al. Quasicrystal International Conference at Taipei Tech (2012 年 5 月 8 日国立台北科技大 (台湾))。
11. 招待講演「準結晶の物理 - 理論的側面から -」堂寺知成 日本物理学会 (2012 年 3 月 26 日関西学院大 (兵庫県)), 領域 6 シンポジウム「魅惑の固体 - 準結晶 -」。
12. 「ジャイロイド曲面上の剛体球の相転移」堂寺知成, 木元将清, 松澤淳一, 日

- 本物理学会年会 (2012 年 3 月 25 日関西学院大学 (兵庫県))。
13. 招待講演「ジャイロイド曲面上の剛体球のアルダー転移」堂寺知成, 筑波大学機能物質創成研究拠点若手啓発講演会「キュービック相の科学: 普遍性と特殊性」(2012 年 3 月 14 日筑波大学(茨城県))。
  14. 「Phase Transition of Hard Spheres on the Gyroid Surface」M. Kimoto, T. Dotera, and J. Matsuzawa, Phase Transition Dynamics in Soft Matter: Bridging Microscale and Mesoscale (2012 年 2 月 20 日京都大学基礎物理学研究所 (京都府))。
  15. 招待講演「Quasicrystalline and Archimedean Phases in Polymeric Alloys」T. Dotera, 月曜コロキウム講演(2011 年 10 月 10 日リブリャナ大学, スロベニア)。
  16. 「Hard Spheres on the Gyroid Surface」T. Dotera, M. Kimoto and J. Matsuzawa, Geometry of Interfaces (2011 年 10 月 5 日 Hotel Zola, Primosten, クロアチア)。
  17. 「Hard Disks on the minimal Gyroid surface」T. Dotera, M. Kimoto and J. Matsuzawa, The eighth Liquid Matter Conference (2011 年 9 月 7 日ウィーン大学, オーストリア)。
  18. 「Geometric problems in soft matter」T. Dotera, Seminar, Department of Physics (2011 年 6 月 3 日世宗大学校, 韓国)。
  19. 招待講演「Dodecatic phase: quasicrystal formation in hardcore-softshell particles」T. Dotera and T. Oshiro, The 6th Asian International Workshop on Quasicrystal (2011 年 5 月 30 日ソウル大学校, 韓国)。
  20. 「Structural Transition of Dodecagonal Quasicrystals: Defect-mediated approach」T. Dotera and Y. Nakanishi, The 6th Asian International Workshop on Quasicrystal (2011 年 5 月 30 日ソウル大学校, 韓国)。
  21. 「ハードコア-ソフトシェル粒子系の準結晶形成シミュレーション」堂寺知成, 大城辰也, 高分子学会年次大会 (2011 年 5 月 27 日大阪国際会議場(大阪府))。
  22. 「ハードコア-ソフトシェル粒子系の準結晶形成」堂寺知成, 大城辰也, P. Zihler, 第 16 回準結晶研究会 (2011 年 12 月 15 日北海道大学工学部(北海道))。
  23. 招待講演「Hard Disks on the Gyroid surface」T. Dotera, The second Korea-Sweden Symposium on minimal surfaces, water-amphiphilic and related mesoporous materials (2011 年 4 月 19 日 KAIST, 韓国)。
  24. 「ハードコア-ソフトシェル粒子系の準結晶形成」大城辰也, 堂寺知成, 第 15 回準結晶研究会 (2010 年 12 月 14 日, ラフォーレ蔵王 (宮城県))。
  25. 「ABC 線状高分子の 5 角形を含む新規ミクロ相分離構造」木元将清, 堂寺知成, 第 15 回準結晶研究会 (2010 年 12 月 14 日, ラフォーレ蔵王 (宮城県))。
  26. 「ABC 線状高分子の新規ミクロ相分離構造のモンテカルロシミュレーション」木元将清, 堂寺知成, 高分子計算機科学研究会・高分子ナノテクノロジー 研究会合同討論会, (2010 年 12 月 10 日, 東京大学山上会館 (東京都))。
  27. 「ABC 星型高分子の G 曲面上の双曲タイリング相」林田研一, 堂寺知成, 松澤淳一, 高野敦志, 松下裕秀, 日本物理学会秋季大会, (2010 年 9 月 24 日, 大阪府立大中百舌鳥 (大阪府))。
  28. 「Hyperbolic Tiling on the Gyroid Surface in ABC Star Polymers」K. Hayashida, T. Dotera, J. Matsuzawa, A. Takano & Y. Matsushita, International Soft Matter Conference 2010 (2010 年 7 月 7 日, Granada, Spain)。
  29. 「Hyperbolic Tiling on the Gyroid Surface in a Polymeric Alloy」T. Dotera and J. Matsuzawa, Mathematics of Quasi-Periodic Order (2010 年 6 月 22 日, RIMS, Kyoto University)。
  30. 招待講演「STRUCTURAL TRANSITION OF DODECAGONAL QUASICRYSTALS AND APPROXIMANTS」T. Dotera, 11th International Conference on Quasicrystals (2010 年 6 月 14 日 Hokkaido University Japan)。
- [図書] (計 1 件)  
「形の物理」堂寺知成, 「現代物理科学の論理と方法」米谷民明著, 放送大学教育振興会, 第 6 章分担執筆 pp.105-126. 2013 年 3 月。
- [産業財産権]  
○出願状況 (計 1 件)  
名称:  
発明者:  
権利者:  
種類:  
番号:  
出願年月日:  
国内外の別:  
○取得状況 (計 1 件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
取得年月日：  
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

<http://softmatter.phys.kindai.ac.jp/>

1. 2011 年度ノーベル化学賞発表時に論文が言及され、ノーベル賞選考委員の書いた詳しい解説に引用（38 番）された。
2. ノーベル賞を記念して出版される Israel Journal of Chemistry にレビューを執筆した。また、同誌の Most-downloaded articles in 2012 に選ばれた。
3. 1997 年に開設された Spring-8 の 12 年半の主な学術成果（全 28 件）をまとめた学術成果集の 1 つとして高分子準結晶が取り上げられた。
4. 化学のブレークスルー（理論化学）に論文が選ばれた。
5. 雑誌の内表紙（Journal of Polymer Science Part B: insede Cover）。
6. 2012 年 MRS 講演（ボストン、USA）が Nature Chemistry のブログ THE SCEPTICAL CHYMIST で取り上げられた。

#### 6. 研究組織

##### (1) 研究代表者

堂寺 知成 (DOTERA TOMONARI)

近畿大学・理工学部・教授

研究者番号：3 0 2 1 7 6 1 6

##### (2) 研究分担者

( )

研究者番号：

##### (3) 連携研究者

( )

研究者番号：