

【領域番号】 2308	【領域略称名】 シンクロ LPSO
-------------	-------------------

【領域代表者（所属）】 河村能人（熊本大学・先進マグネシウム国際研究センター・教授）

【応募時に研究領域として設定した研究の対象】

「異なる学問分野の研究者が連携して行う共同研究等の推進により当該研究領域の新たな展開を目指すもの」

(1) 領域全体の順調な進展状況

総括班は、本領域研究を戦略的かつ効果的に推進することを目的に、6つの部会と事務局（事務局本部と研究支援活動用の3つのサテライト事務局）を設置して領域運営と研究支援活動を組織的に行ってきた。外部評価委員からは従来にない特徴的な取り組みとして高く評価されている。

【領域企画・運営部会活動】「研究企画委員会」、「研究推進委員会」、「研究評価委員会」ならびに「全体会議」、「総括班会議」、「班会議」、「連携会議」の開催（表1）を通して、研究計画の企画・調整・立案、審議、連絡・周知徹底ならびに評価を行うことによって、領域の企画・運営を効果的かつ円滑に実施できた。

【領域内交流推進部会】「合宿研究会」、「成果報告会」、「班研究会」、「連携研究会」、「領域キックオフシンポジウム」、「公募キックオフシンポジウム」等を開催（表2）することによって、領域内のベクトル合わせと情報の共有化を図ることができ、異分野の研究者が連携して行う共同研究を推進することができた。特に、「サマースクール」や「施設見学会」を開催（表3）することによって、初めて Mg 合金を扱う研究者（領域の約70%に相当）の支援や大型量子線施設を活用した領域内交流の推進を図ることができた。

【研究支援活動部会】①大型量子線施設の活用支援を通じた連携研究の推進、②実験結果の整合性を確保するための品質が安定した共通試料やオーダーメイド試料の提供、③参画研究者のベクトル合わせと最新情報の共有化を図るための研究成果 DB の構築・運用を、組織的かつ戦略的に推進した結果、早い段階で領域研究を軌道に乗せることができた。

【広報・交流推進部会】日本金属学会、日本機械学会、日本物理学会、日本放射光学会等でシンクロ型 LPSO 構造やそれに関連したシンポジウム等を企画・開催することによって、異分野学術交流の推進を図ることができた。さらに、領域ホームページの運営やニュースレターの発行・配布によって、本領域の全国に向けた発信を実施することができた。また、領域主催の国際会議 LPSO2012 を開催するとともに、領域メンバーが実行委員等として多くの国際会議の開催に係わり、本領域の世界に向けた情報発信や国際交流を推進することができた。さらに、熊本大学が H15 年から運営している「高性能 Mg 合金創成加工研究会」（8 回分）を共催することによって、超高強度 Mg 合金の実用化を期待している応用分野の研究者や技術者との交流を推進することができた。これらを通して、本領域の新たな展開を目指した基盤形成を国内外で着実に進めることができた。（参照：「8. 研究成果の公表の状況」の表10～表13、図28と図29）

表1 領域会議・委員会の実施状況

年度	開催日	実施内容	開催場所	備考
H23	H23.9.23	総括班会議、班会議(3班)、連携会議(2連携)、全体会議	スター研修センター小伝馬町・東京	
	H24.3.23	研究評価委員会、研究推進委員会、研究企画委員会、総括班会議、班会議(3班)、連携会議(2連携)、全体会議	キャンパスイノベーションセンター・東京	
H24	H24.5.12	総括班会議、班会議(3班)、連携会議(2連携)、全体会議	エッサム神田ホール・東京	
	H24.10.1	総括班会議、班会議(3班)、連携会議(3班合同)、全体会議	札幌コンベンションセンター・札幌	
H25	H25.3.19	研究評価委員会、研究推進委員会、研究企画委員会、総括班会議、班会議(3班)、連携会議(3班合同)、全体会議	軽井沢プリンスホテル・軽井沢	
	H25.6.15	総括班会議	エッサム神田ホール・東京	
H25	H25.10.1	研究評価委員会、研究推進委員会、研究企画委員会、総括班会議、班会議(3班)、連携会議(3班合同)、全体会議	ラフォーレ琵琶湖・守山	予定
	H26.3	研究評価委員会、研究推進委員会、研究企画委員会、総括班会議、班会議(3班)、連携会議(3班合同)、全体会議	軽井沢プリンスホテル・軽井沢	予定

表2 領域研究会の実施状況

年度	開催日	実施内容	開催場所	備考
H23	H23.9.5	A02班研究会	愛媛大学・松山	
	H23.9.23	領域キックオフシンポジウム	スター研修センター小伝馬町・東京	
	H23.12.27	A03班研究会	キャンパスイノベーションセンター・東京	
	H24.2.23	A01, A02, A03班連携研究会	熊本大学・熊本	
	H24.2.24	A01班研究会	東京大学・東京	
H24	H24.3.6	A03班研究会	大阪大学・大阪	
	H24.3.23	平成23年度成果報告会	キャンパスイノベーションセンター・東京	
	H24.4.10	A01班研究会	東京大学・東京	
	H24.5.12	公募班キックオフシンポジウム	エッサム神田ホール・東京	
	H24.11.5	A01, A02, A03班連携研究会	SPring-8・佐用	
H25	H24.12.27	A02班研究会	名古屋工業大学・名古屋	
	H25.3.4	A03班研究会	大阪大学・大阪	
	H25.3.9-11	A01, A03班連携研究会	北見工業大学・北見	
	H25.3.18-19	平成24年度成果報告会	軽井沢プリンスホテル・軽井沢	
	H25.4.25	A01班研究会	東京大学・東京	
H25	H25.7.26	A03班研究会	エッサム神田ホール・東京	予定
	H25.7	A02班研究会	熊本大学・熊本	予定
	H25.9.29-10/1	平成25年度合宿研究会	ラフォーレ琵琶湖・守山	予定
	H26.3	平成25年度成果報告会	軽井沢プリンスホテル・軽井沢	予定

表3 サマースクール/見学会の実施状況

年度	開催日	実施内容	開催場所	備考
H23	H24.3.15	J-PARC見学会	J-PARC・東海村	
H24	H24.9.25-27	熊大MRCサマースクール	熊本大学・熊本	
	H24.11.5	SPring-8見学会	SPring-8・佐用	
H25	H24.12.4	LPSO型マグネシウム合金・溶解精造および塑性加工施設見学会	熊本大学および不二ライテタル・熊本	
	H25.9.24-25	熊大MRCサマースクール	熊本大学・熊本	予定

表4 若手交流会・特別講演会の実施状況

年度	開催日	実施内容	開催場所	備考
H23	H23.11.24-25	第1回若手交流会・特別講演会	ホテル阪急エキスポパーク・大阪	
H24	H24.9.20-21	第2回若手交流会・特別講演会	愛媛大学・松山	
	H24.12.3	第3回若手交流会・特別講演会	熊本大学・熊本	
H25	H25.9.20	第4回若手交流会・特別講演会	金沢勤労者プラザ・金沢	予定

【若手人材育成部会】 後述するように、「若手研究会」を企画・開催(表 4)することによって、本領域の 55% を占める若手研究者の交流を活発にすることができ、若手研究者を主体にした異分野融合の連携研究の活性化に繋げることができた。また、「若手国内異分野武者修行」や「若手海外武者修行」のプログラムに対して、現実に即した制度改革を行うことによって、本プログラムを軌道に乗せることができた。

【図書出版・知財部会】 成果報告会において、国際特許事務所の弁理士による知財掘り起こしを実施した結果、特許申請の検討が数件行われるなど、知財確保に向けた活動を着実に実施することができた。また Materials Transactions に”Long-Period Stacking Ordered Structure and Its Related Materials (I)”を特集号(13 編収録)として発刊できた。さらに、Materials Science & Engineering: R (Impact Factor: 19.75)として、編集委員の推薦で”Innovation of Magnesium Alloys by Synchronized LPSO Structure”というテーマの特集号の企画が決まった。他の学術雑誌からも Review 特集号の企画が持ち込まれており、現在その対応を協議中である

(2) A01 班「構造科学」の順調な進展状況

本領域内で、A01 班は、最先端の構造解析手法と計算科学を融合させることにより、新奇な構造を有する LPSO 構造に関して、その構造の観点から、力学特性等の物性発現の解明及び物性予測を可能とする「LPSO 構造科学」の構築を目的としている。現在、電子線・陽電子等を用いた原子レベル構造解析(A01-1、実験系)と中性子・放射光を用いた精密構造・組織解析(A01-2、実験系)により LPSO 構造を精密に決定し、構造に由来する諸特性の解明と第一原理計算を用いた構造決定因子の解明(A01-3、計算系)に取り組んでいる。実験系 2 グループ、計算系 1 グループが密接に連携を取りながら、研究を進めており、その結果、現時点で、①LPSO 相における規則-不規則(OD: Order-Disorder)構造と LPSO 構造の解明、② LPSO 構造物質の原子配列の形成エネルギー予測評価法の確立、③大型量子線施設利用に関しては、LPSO 構造物質に適用するためのその場観察実験法の確立等の順調な成果を上げている。

また、本班の特徴として、得られた構造情報、物性値を他班に積極的に提供して領域内研究を活性化している。以下に特筆すべき成果・進展状況を記述する。

1) 化学的秩序と積層秩序の相関の決定

電子顕微鏡観察により、Mg-Zn(Al)-RE 系 LPSO 相の積層方向への化学的秩序と積層秩序は、常に同期したシンクロ型であると共に、構造多形が存在することを明らかにした。

2) OD 構造と LPSO 構造の解明

電子顕微鏡観察により、以下のことを明らかにした。

① Mg-Al-Gd 系 LPSO 相は、従来の報告とは異なり Al と Gd が濃縮する濃縮層は 2 層ではなく 4 層であり、濃縮 4 重層内において $L1_2$ 型構造と同様の原子配列を持つクラスターを形成している。このクラスターは、Mg-Al-Gd ブロック内(面内)で長周期にわたって規則配列し、濃縮 4 原子層を含む 6 原子層が構造ブロックとなっている。一方、この構造ブロックの積層は積層方向に特定の周期性はなく、一次元積層不整を伴う。この構造は、規則-不規則(OD: Order-Disorder)構造として記述できる。焼鈍が不十分の場合は、OD 構造が出現し、十分な焼鈍を行うことにより、構造ブロックの積層に規則性を伴う最安定構造が出現する。

② Mg-Zn-Y 系 LPSO 相においても濃縮相は 4 層であり、同様の TM_6RE_8 クラスターを形成するが、クラスターの面内配列秩序が低い。また一次元積層不整を伴う。この構造が、LPSO 構造であることが結論される。

現在、電子顕微鏡観察により提案された構造モデルに基づいて、量子線精密結晶構造解析による結晶構造パラメータ(格子定数、原子座標、サイト占有率、規則度等)の決定を進めている。

3) 第一原理計算による LPSO 構造物性評価

LPSO 構造発現因子を原子・電子レベルから特定することを目的に、電子顕微鏡により提案された構造モデルを元にして、Mg-Al-Gd 系と Mg-Zn-Y 系 LPSO 構造の結合・変形特性(溶質原子の結合・偏析エネルギー、一般化積層欠陥エネルギー、弾性定数等)を評価した。さらに原子配列モデリング手法の構築を進めた結果、Mg-TM-RE 系構造における多様な原子配列の形成エネルギーを予測評価することが可能となった。この手法を電子顕微鏡による構造モデル構築に適用することによって、電子・原子構造解析における理論的支持を与えた。このようにして評価した原子配列構造や物性値を他班に提供して領域内研究を推進している。

4) 大型量子線施設利用

大型量子線施設利用に関しては、J-PARC、SPring-8 共に LPSO 構造物質の特徴である数 nm におよぶ長周期構造(通常物質の周期構造は、0.1nm オーダー)に適用するためのその場実験手法を確立して、精密結晶構造解析や応力応答評価を進めた。本領域の目的である LPSO 構造そのものの特性解明の一環として、18R 単相 LPSO 合金の結晶構造レベルでの応力応答を調べ、c 軸方向に硬い異方性があることを初めて明らかにすると共に、力学特性基礎データとなる回折弾性定数の評価に成功した。更に、実用上重要な二相合金(LPSO 相+Mg 母相)では、LPSO 相が強度を担うという決定的な証拠を初めて捉えることができた。

今後は、確立した手法を基に、両施設に導入した低温から高温までの温度制御が可能な構造解析用変形ステージを活用しながら A02 班(形成メカニズム)や A03 班(力学特性と新強化原理)との多重外場環境下その場実験をコアとした連携研究を進展・加速させていく。

以上、これまでの構造解析と理論研究によって、LPSO 構造に関する結晶構造や力学基本特性の定量的評価が着実に進捗しており、新規 LPSO 構造物質を含めた精密構造解析・理論計算及び他班との連携研究を通じて、「LPSO 構造科学」が構築されるものと思われる。

(3) A02 班「形成メカニズム解明」の順調な進展状況

A02 班は、LPSO 構造の濃度・構造変調設計原理の確立を目指して、原子間結合エネルギー解析および格子歪エネルギー解析の両面からシンクロ型 LPSO 構造形成メカニズム解明にアプローチするとともに、極限環境物質合成によるシンクロ型 LPSO 構造物質群の拡大にも取り組んでいる。

1) 原子間結合エネルギー解析

原子間結合エネルギー解析では、計算状態図および実験状態図の両面からの安定構造・安定性の評価を行うとともに、その知見をベースに偏析と積層欠陥のシンクロ性、形成機構から相形成を明らかにする量子線による相・組織形成の評価、状態図の自由エネルギーをベースに液相からの相・組織の出現シーケンスのフェーズフィールドシミュレーションを連携させることにより、複数のエネルギー差の小さな構造間での構造選択および構造変調と組成変調がシンクロする過程とエネルギー的条件を明らかにすることを目的としている。現在は Type I の Mg-Zn-Y 系状態図の精密評価より、その形状が従来の報告とは異なることがわかっており、相安定性への温度・組成の効果について計算状態図的検討を進めるとともに、Type II さらに RE フリーや Ti 系への拡張にも取り組み始めている。量子ビームの組織解析法の確立に加えて、当初実験的困難が予想されていた液相の関与するその場測定も技術的目処が立っている。新規手法としての走査トンネル顕微鏡による LPSO 合金 (A03-1 グループ提供) の破断面の超高分解能観察により、Mg の (0001) 面内の合金元素の規則クラスターの配列をとらえることに初めて成功しており、現在 A01-1、A02-1 グループでの構造情報も参考にして、STM 像の詳細な解釈および熱処理や組成によるクラスター配列の変化の観察を進めている。凝固過程のフェーズフィールドモデリングの手法もすでに確立されており、今後状態図と量子ビームによるキネティクス情報のブリッジングによる統合的理解の進展が期待される。

2) 格子歪エネルギー解析

格子歪エネルギー解析では、LPSO 構造が関与する各種構造相変態における変態歪場およびエネルギーの評価と歪緩和解析、濃度・構造変調に起因するエネルギー変化の電子論的評価、2種類の変調がシンクロする相変態のフェーズフィールドモデリングの観点から、LPSO 構造生成への格子歪の影響を実験、理論的に検討している。Mg-Zn-Y 合金の HAADF-STEM および HRTEM 解析からは、前駆段階での hcp 中のゾーン型の元素濃化に伴う構造ユニットの形成とレッジ機構による成長が素過程として示唆され。第一原理計算キネティックモンテカルロシミュレーションからは、積層欠陥に濃化した溶質原子がさらに周囲の溶質原子を引きつけ、次の積層欠陥の導入を助長することが示唆された。LPSO 構造形成時の歪エネルギーのマイクロメカニクス解析では、歪の拡散緩和が十分起こりえないこと、構造ユニット間の弾性相互作用を考慮すると H 構造は R 構造より歪みエネルギーが小さいことが明らかになった。フェーズフィールドモデリングでは、Mg-Zn-Y 合金の相分離初期では、純 Mg コーナーでの準安定スピノーダル分解の発現、積層欠陥領域への溶質元素の偏析に駆動された積層欠陥の拡張を見出している。以上、Mg-Zn-Y 系に集中した多くの側面からの検討により、今まで不明であった LPSO 構造の形成過程について、hcp 中の積層欠陥の形成と hcp 中の相分離が重畳して fcc 構造ユニットの生成につながり、弾性的と思われる相互作用が LPSO 構造の形成過程に深く関与することが明らかになりつつある。

3) 極限環境での物質合成

極限環境での物質合成では、通常環境場、超高压環境場、急冷場での新物質探索の研究を通して、①シンクロ型 LPSO 構造の新物質(新規合金成分と新規積層構造)の発見と同定、②発見されたシンクロ型 LPSO 構造物質の体系的分類、③シンクロ型 LPSO 構造を形成する合金元素の精密なクライテリアの提案、④シンクロ型 LPSO 構造形成のプロセス条件の確立、を目的として研究を行っている。

合金系拡大による新物質探索では、新たに Mg-Ni-Sm 合金での 18R 構造、Mg-Co-Y 系では 15R 構造(従来と異なる新規構造!)を見出し、超急冷場プロセスによる新物質探索では、急速凝固 Mg₉₇Co₁Sm₂系合金においてはこれまでに報告の無い底面内クラスター配置を持つ新規相の発見に至っている。また、超高压高温下でのその場X線回折実験より、Mg-Zn-Y 系 LPSO 相は通常環境下よりも不安定化すること、高温高压下での水素化処理で MgH₂ 他の水素化物の生成などが明らかになっており、物質群の拡大および新機能探索の研究は着実に進んでいる。

以上より、現在までの研究成果より、形成メカニズムについて根本的な考えはまとまりつつあり、その場観察と極限環境の効果的な利用、班内/班外との連携研究および情報共有により、さらに理解が進みシンクロ型 LPSO 構造の設計原理が確立されるものと思われる。

(4) A03 班「力学特性解明と新強化原理の構築」の順調な進展状況

A03 班では、シンクロ型 LPSO 構造で見出された特異な変形機構の解明と、それを基にした新たな強化原理の確立を目指している。特に最大の眼目となる「キンク帯」と呼ばれる塑性変形過程で顕在化する組織について、その構造、形成機構、そして高強度化への寄与を明確化する。これを基盤として LPSO 型合金が有する極めて優れた力学物性の起源を明らかにし、新学術として新たな強化法の学理を構築することを目的とする。この目的に向かって、観察・計測を主体とした実験 Gr、マルチスケールな手法を有する計算力学 Gr、そしてキンク帯の回位モデルに焦点を絞った理論・実験融合 Gr が他班も含め強く連携して研究を進め、順調な成果を挙げている。

1) キンク帯による高強度化の実証

キンク帯による高強度化実証の研究ではまず、キンク導入に伴う強度上昇の実験的証拠を得ることが目的である。これについては Mg 系シンクロ型 LPSO 合金において常温から 300°C にわたる温度域で、キンク帯導入により底面すべりの変形抵抗が4倍上昇することが見出されただけでなく、キンク帯の間隔の $-1/2$ 乗に比例して強度が増加することが明らかとなった。これは常温強度だけでなく高温強度に及ぼすキンク帯強化の寄与を定量的に示す重要な成果であり、強化メカニズムの解明に本質的な貢献を果たすと期待される。また計算 Gr では、結晶塑性 FEM でキンク帯の存在をモデリングし、降伏強度の増加に関して実験結果を定量的に再現することに成功している。

2) 特異な変形機構の解明

特異な変形機構解明に関する研究では、キンク帯の形成過程とその構造の解明が焦点となるが、ここでは特に計算 Gr の研究が順調に推移している。まず結晶塑性 FEM でキンク変形の再現に成功し、その結果、キンク帯のエンブリオとその発達箇所として、構造上の初期結晶方位の揺らぎ等の初期不整や構造全体の弾性ひずみエネルギーが最小化される部位であることなど固体力学上の問題が解明された。さらに分子動力学シミュレーションにより、2H 構造に対し LPSO 構造では双晶変形が抑制されること、その一方で底面に先立ち非底面すべりが生じ、これをトリガとして底面に大量の転位が供給されキンク変形が開始、高密度の底面転位群の配列で鋭いキンク界面の形成が再現された。一方実験系では、シンクロ型 LPSO 構造においてキンク変形が何故促進されるのか、非シンクロ型として濃度変調を有しない Ni 基 LPSO 相や 2H 構造を有する純 Zn 結晶を比較材として研究が行われた。その結果 Mg 系シンクロ型 LPSO では 18R、14H 構造の違いによらず、底面すべり、キンク変形が主変形機構を担うのに対して、非シンクロ型ではすべり面の選択性により高い自由度が見いだされた。これはシンクロ型でのキンク帯形成が他構造に比べ促進される有力な理由となる。さらに Mg 系シンクロ型 LPSO 合金で、レンズ状に高速に成長するキンク帯の動的様相をその場観察で捉えた。また nm オーダーの微細マーカー法によりキンク帯発生に伴う塑性歪み分布を定量的に捉え、それが双晶変形と異なる変形モードであることが実証された。

3) 新強化原理の確立

新強化原理の確立では、キンク帯の構造解明とそのモデル化の推進が基盤となるが、前者については超高圧電子顕微鏡や EBSD 解析によりキンク帯の回転軸や角度、界面のモルフォロジー等、キンク帯のメゾ構造解析が着実に進展している。また高分解能電頭法 HAADF-STEM、STEM-EDX による構造解析も精力的に進められている。特にキンク帯先端の原子構造解析は、その近傍の大きな歪み場の存在が観察の障害となるが、適切な方位選定等により着実な進展が期待される。またキンク帯を如何なる物理的モデルとして捉えるかという議論が計算 Gr を中心に領域全体で活発に展開されている。そこではキンク帯を、飽くまで転位集合体と見做すか、或は、より高次の欠陥としての回位と見做すか2つの立場からアプローチが行われている。後者のアプローチでは、離散転位塑性論の枠組みを拡張した回位モデルによる高次の離散欠陥塑性論の定式化が行われ、キンク変形の回位によるモデル化が進められており、今後、新たな強化原理の確立に繋がりたいと考えている。

以上、これまでのシンクロ型 LPSO 構造の塑性変形機構と強度に関する実験・理論的研究から、キンク帯の強化機構としての重要性が定量的に実証されると共に、その理論化・モデル化が着実に進展している。今後、他班の構造解析 Gr とさらに強く連携すると共に、実験 Gr と理論 Gr の融合を進め、シンクロ型 LPSO 構造の新奇な力学的挙動の理解を進展させ、それを基に新たな普遍的強化原理の確立を図って行く。