

機関番号：13901
領域設定期間：令和元年度～令和5年度
領域番号：6103
研究領域名（和文）機能コアの材料科学
研究領域名（英文）New Materials Science on Nanoscale Structures and Functions of Crystal Defect Cores
領域代表者
松永 克志（MATSUNAGA Katsuyuki）
名古屋大学・大学院工学研究科・教授
研究者番号：20334310
交付決定（予定）額（領域設定期間全体）：（直接経費）1,098,000,000円

研究の概要

材料内部に存在する点欠陥や粒界、界面、転位などの結晶欠陥は、多くの先進材料の優れた材料特性の発現に重要な役割を果たしている。本領域では、材料中の結晶欠陥を機能発現の源となるコア（＝機能コア）と捉え、理論計算とナノ計測、モデル試料創製の研究者が一体となり系統的な基礎研究を行うことで、電子・原子レベルから機能コアの新しい材料科学の学理を構築する。また機能コアの学理の各種材料応用を図るため、光機能材料、エネルギー変換材料、耐熱・耐環境材料、固体イオニクス材料等の各材料分野で高い研究実績をあげている研究者と密接な共同研究を行い、新材料機能の創出や萌芽的新材料の発掘を目指す。

研究分野：無機材料および物性関連、構造材料および機能材料関連

キーワード：結晶欠陥、電子構造、第一原理計算、ナノ計測、新規合成プロセス

1. 研究開始当初の背景

人類文明の発生以来、環境エネルギー・社会基盤・情報通信などの各分野で新材料が開発され、文明社会の発展を支えてきた。近年、社会の複雑化・多様化が急激に進み、材料の高性能化・高機能化・高信頼性に対する要求がますます高くなっている。材料の基礎から応用までをカバーする材料科学は、その期待に応えるための欠かせない学問分野となっている。しかし現在、材料科学にもとづく新材料開発には停滞感が漂っている。経験やノウハウにもとづき行われてきた、伝統的な経験知にもとづく材料開発に限界が来ているためである。この状況を打破するには、既存の材料・プロセスの延長線上でない、幅広い学問分野を融合した、新しい観点に立った学問体系の構築が切望される。

従来の材料科学研究では、材料内部の「バルク領域」の平均的構造と巨視的特性を主たる対象としていた。平衡状態図や自由エネルギー、結晶構造等の経験的データベースにもとづき、材料開発が行われてきたためである。これに対し、近年、電子顕微鏡技術や計算科学が著しく発展し、材料の構造や安定性を原子レベルから高精度に解析することが可能となってきた。その結果、粒界・転位などの結晶中の「格子不整合領域」（結晶欠陥）が「バルク」と全く異なる原子配列をもち、様々な材料現象や特性と密接に関係していることが明らかにされてきた。しかし、偶発的な成功例は別にして、結晶欠陥を高度に制御して材料特性を飛躍的に向上させた革新的な材料開発につながった、という例はほとんど無い。この原因は、従来研究の多くが個別の結晶欠陥の構造解析を行った研究であり、結晶欠陥の原子レベル構造と局所特性の関係に対する系統的理解が確立されていないためである。

格子不整合領域にもとづく新しい材料科学を構築し、革新的な新材料機能創出につなげていくには、特定の結晶欠陥の原子レベル構造解析に留まるのではなく、結晶欠陥のナノ構造を系統的に制御し、さらに機能の起源まで掘り下げた研究を行う必要がある。結晶欠陥の機能は、そのバルクと異なる原子配列と局所的な化学組成に加え、そこに局在した電子、電子と相互作用する電磁場、フォトン、フォノン等によって形成される量子場を起源とする。機能発現の源となる格子不整合領域に創り出されるこの量子場こそ、本領域の研究対象とする「機能コア」である。

2. 研究の目的

これまでの材料科学や物性科学において、「機能コア」という観点での研究は存在せず、結晶欠陥の幾何学的構造の制御、光や電磁場といった外場の制御により、新奇な材料機能の創出や材料開発を行うアイデアはなかった。材料特性の起源となる機能コアをデザインし、それを実材料にビルトインできれば、既存の材料・プロセスの延長線上にない常識を超えた材料特性の発現が

期待できる。本新学術領域は「機能コアの材料科学」の基礎学理を構築し、それに基づいた新材料機能創出および新材料創製を実現することを目的とする。

3. 研究の方法

機能コアという共通概念のもと、材料科学の新学理構築と新材料機能創出を目指すため、以下のような研究項目を置く。

- ・研究項目 A01 機能コアの理論解析
- ・研究項目 A02 機能コアのナノ計測
- ・研究項目 A03 機能コアに基づく新材料機能創出

粒界や界面、転位などの機能コアの構造—機能相関に関する基礎学理を構築するため、世界最高水準の電子状態計算とモデル実験（研究項目 A01）、ナノ計測（研究項目 A02）を三本柱とし、そこに関わる研究者が一体となって研究推進する。

材料の高機能化を実証する合成プロセスに関わる計画班（研究項目 A03）が、上記で明らかにする高機能コアを実材料にビルトインし、新しい材料機能および新材料の創出を目指す。

4. 研究の進展状況及び成果

各研究項目の研究進展状況及び成果は、以下の通りである。

【研究項目 A01 機能コアの理論解析】

第一原理計算、情報科学にもとづく計算解析に加え、粒界や転位のモデル試料の創製・解析を行い、A02 と連携して計算・実験の両面から機能コアの構造と機能のモデル化を目指す。中間評価までは、「機能コアの材料科学」学理の礎となる、機能コアの素性と材料特性の関係解明を目的としてきた。現段階では、酸化物粒界コアによる熱伝導散乱機構の解明 (*Nature Commun.* 2020): A01(ア)+公募班連携)、化合物半導体結晶中の転位—光相互作用解明と特異発光現象の発見 (*Acta Mater.* 2020, *Nano Letters.* 2021): A01(ア)+A02(ウ)+公募班連携)、機械学習を利用した機能コア構造の高速決定法の開発と公開 (*Phys. Rev. Mater.* 2020: A01(イ)+公募班連携) など、多くの学術的にインパクトのある成果が挙げられている。また、本領域で開発したデータベースやソフトウェアの整備と一般への公開も進めた。

【研究項目 A02 機能コアのナノ計測】

世界最先端の分解能を有する電子顕微鏡および非接触原子間力顕微鏡等を駆使し、材料内部の粒界・界面、表面解析を行う。A01 の理論解析・モデル試料合成と連携しながら、機能コアの原子レベル構造や電子状態を解明することを目的とする。中間評価までは、機能コアである結晶欠陥の構造および物理場計測手法の先鋭化を行うとともに、機能コアの素性と材料特性に関する重要な知見を発掘することを目的としてきた。世界初の酸化物粒界移動機構の原子レベル直接観察 (*Nature Mater.* 2021: A02(ウ)+A01(ア)連携)、酸化物粒界バンドギャップの定量計測 (*Nano Letters.* 2020: A02(ウ)+A01(ア)+A03(キ)連携)、TiO₂ 光触媒表面の線欠陥構造と荷電状態の解明 (A02(エ)+A01(ア)連携) など、機能コアの量子場に関する画期的成果を得ることに成功した。

【研究項目 A03 機能コア制御にもとづく新材料機能創出】

各種プロセスを活用した多様な材料創製への展開を行うだけでなく、機能コアによる機能発現機構に関する知見を A01、A02 にフィードバックして、学理構築をサポートする。中間評価までは、各計画班が得意とする材料を主たる対象とした研究を推進しつつ、A01、A02 と連携しながら機能コアの解析と制御による材料特性の向上や新機能発掘を目指してきた。これまでに、新規 Eu 賦活アルミン酸蛍光体の高压合成 (A03(オ)+A01(ア)連携)、過去最高の室温熱電変換性能指数を示す酸化物の開発 (*J. Mater. Chem. A* 2020: A03(カ)+A02(ウ)連携)、高電磁場合成による酸化物セラミックスの超塑性発現や蛍光特性開発 (*J. Euro. Ceram. Soc.* 2020, *Appl. Phys. Exp.* 2020: A03(キ)+A03(オ)+A02(ウ)連携)、硫化物リチウムイオン伝導体の高性能化 (*Chem. Mater.* 2020, *J. Mater. Chem. A* 2020: A03(ク)+A01(イ)+A02(ウ)+公募班連携)、蛍光有機分子挿入による生体用リン酸カルシウムの高機能化 (*Commun. Chem.* 2021: 公募班-A01(ア)連携)、などに成功している。いずれも、多様な材料分野における「機能コア」概念の重要性を実証する学術的に価値の高い成果である。現在も、計画班・公募班との多数かつ多様な共同研究を精力的に進めている。

5. 今後の研究計画

本領域の達成目標をクリアすべく、以下の4つの方策を軸に領域を推進していく。

【「機能コアの材料科学」の学理構築】

すでにこれまでも、領域内の連携研究により、「セラミックス粒界の物質移動に及ぼす粒界バンドギャップ効果 (A01(ア)-A02(ウ)-A03(キ)連携, *Nano Letters* 2020)」、「外部刺激による粒界移動現象の原子レベル直視観察とそのメカニズム解明 (A01(ア)-A02(ウ)連携, *Nature Mater.* 2021)」、「無機結晶中の転位による新しい発光現象の発見 (A01(ア)-A02(ウ)-公募班連携)」など、従来の粒界幾何学、原子拡散理論、転位論など、単独理論では到底説明のつかない現象・特性を見出すとともに、結晶欠陥内部の量子場まで踏み込んだ理論的な解釈にも成功してきた。これこそが、我々の目指す「機能コアの材料科学」学理となる知見である。研究期間後半では、現在進行中の連携研究をさらに強化・展開することで、新規の機能コアに起因する材料現象・特性を発掘していく。それに基づき、従来の縦割りの材料科学とは異なる「機能コアの材料科学」の学理を構築する。

【機能コアに基づく、各材料分野への展開、新材料機能・創製】

「機能コアの材料科学」学理が分野横断的で普遍的な概念であることを示すには、多様な材料における機能コアの解明と材料機能創出および材料創製の実績を挙げるのが重要である。すでに領域内では、層状ペロブスカイト型酸化物による世界最高の熱電性能指数の達成 (A02(ウ)-A03(カ)連携) や世界最高強度を示す工具用セラミックス複合材料の開発 (A01(ア)-A02(ウ)-A03(キ)連携)、高リチウムイオン伝導化合物の探索と実験実証 (A01(イ)-A03(ク)連携) など、機能材料や構造材料、固体イオニクスなどの材料分野に捉われない成果を挙げてきた。これ以外の材料応用研究も、領域内外で共同研究が進行中である。

【計算、計測、合成プロセスの各要素技術の先鋭化】

本領域研究を世界最先端で展開するには、研究の要素技術である、計算科学、ナノ計測、合成プロセスの先鋭化は必須である。すでに本領域内では研究期間前半に、49 元素にも対応できる高精度機械学習原子間ポテンシャルの開発と公開 (A01(イ))、磁場フリーSTEM 法開発 (A02(ウ))、フラッシュ焼結による蛍光・超塑性ジルコニア開発 (A03(キ)) など、計算・計測・合成手法の確立に成功している。今後は、これら各手法のさらなる高度化と共に、研究進行中の新合成手法の開拓を強化していく。

【若手育成】

材料科学における次世代のリーダー育成のための領域活動として、研究期間前半には、「若手の会」もしくはオンラインによる「若手コラボツアー」を実施してきた。これにより、若手研究者および大学院生間のネットワークの基礎は構築できた。しかしながら、若手研究者・大学院生の活動や交流が十分でない状況であったため、研究期間後半は、これらを継続するとともに、まずは国内の若手相互派遣を皮切りに、若手育成支援活動を進めていく。

6. 主な発表論文等 (受賞等を含む)

【主な原著論文】すべて査読有り。(研究代表者、研究分担者)

- [1] J. Wei, *B. Feng, R. Ishikawa, T. Yokoi, K. Matsunaga, N. Shibata, *Y. Ikuhara: “Direct imaging of atomistic grain boundary migration”, *Nature Mater.* (2021), published online.
- [2] Y. Takashima, *Y. Zhang, J. Wei, B. Feng, Y. Ikuhara, H.J. Cho, *H. Ohta: “Layered cobalt oxide epitaxial films exhibiting thermoelectric $ZT = 0.11$ at room temperature”, *J. Mater. Chem. A* **9**, 274 (2021).
- [3] X. Sun, S. Hori, Y. Li, Y. Yamada, K. Suzuki, M. Hirayama, and *R. Kanno: “Annealing-induced evolution at the LiCoO₂/LiNbO₃ interface and its functions in all-solid-state batteries with a Li₁₀GeP₂S₁₂ electrolyte”, *Chem. Mater.* **9**, 4117 (2021).
- [4] *S. Fujii, T. Yokoi, Craig A. J. Fisher, H. Moriwake, *M. Yoshiya: “Quantitative prediction of grain boundary thermal conductivities from local atomic environments”, *Nature Commun.* **11**, 1854 (2020).
- [5] *K. Suzuki, K. Ohura, A. Seko, Y. Iwamizu, G. Zhao, M. Hirayama, I. Tanaka, and R. Kanno: “Fast material search of lithium ion conducting oxides using a recommender system”, *J. Mater. Chem. A* **8**, 11582 (2020).
- [6] J. Wei, T. Ogawa, B. Feng, T. Yokoi, R. Ishikawa, A. Kuwabara, K. Matsunaga, N. Shibata, *Y. Ikuhara: “Direct measurement of electronic band structures at oxide grain boundaries”, *Nano Lett.* **20**, 2530 (2020).

【学会発表 (基調講演・招待講演を一部抜粋)】

- [1] (基調講演) 松永克志: “機能コアの材料科学 -ナノ材料科学の新展開-”, 日本金属学会 2019 年秋期講演大会(2019.9.11、岡山).
- [2] (基調講演) T. Mizoguchi: “Bridging atomic-resolution experiment and computation using machine learning”, Materials Research Meeting (MRM) (2019.12.11, Yokohama).
- [3] (招待講演) N. Shibata: “Development of magnetic-field-free atomic resolution STEM”, MRS fall meeting (2020.11.27, online).
- [4] (基調講演) 阿部真之: “金属酸化物表面の走査型トンネル顕微鏡/非接触原子間力顕微鏡測定”, 日本金属学会 2020 年秋期講演大会 (2020.9.18, online).
- [5] (招待講演) 遊佐 斎: “新材料機能創出に向けた高温高压プロセス”, 日本セラミックス協会 2019 秋季シンポジウム (2019.9.3, online).
- [6] (招待講演) 太田裕道: “金属酸化物薄膜の熱電能・熱伝導”, 第 68 回 応用物理学会春季学術講演会, シンポジウム「ニューノーマル時代の DX を進める IoT 用創エネルギー材料・デバイス研究の新展開」 (2021.3.16-19, online).
- [7] (招待講演) S. Kitaoka: “Strategies for improving oxygen shielding performance of multilayer EBCs”, the 44th International Conference and Exposition on Advanced Ceramics and Composites (ICACC20) (2020.1.29, Daytona Beach, USA).
- [8] (基調講演) 平山雅章: “リチウム電池における電極・電解質界面の構造解析と制御”, 日本金属学会 2019 年秋期講演大会 (2019.9.12、岡山).

【ホームページ等】

- [1] 「機能コアの材料科学」領域ホームページ <https://www.core.mp.pse.nagoya-u.ac.jp/>
- [2] 「機能コアの材料科学」YouTube チャンネル <https://www.youtube.com/channel/UC0Uz0GvdjCIyafVF5s5C3NA>