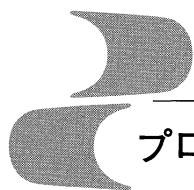




HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	統計にみる金属間化合物材料研究の変遷と今後の新展開
Author(s)	三島, 良直; 乾, 晴行; 竹山, 雅夫 他
Citation	まてりあ, 46(4), 278-283 https://doi.org/10.2320/materia.46.278
Issue Date	2007-04-01
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/75153
Type	journal article
File Information	materia 46(4) 278.pdf





統計にみる金属間化合物材料研究の変遷と今後の新展開

三島良直¹⁾, 乾 晴行²⁾, 竹山雅夫³⁾, 高梨弘毅⁴⁾, 中谷亮一⁵⁾, 三浦誠司⁶⁾,
吉見享祐⁷⁾, 細田秀樹⁸⁾, 中野貴由⁹⁾, 木村好里¹⁰⁾, 安田弘行¹¹⁾, 波多 聡¹²⁾

1) 東京工業大学教授; 大学院総合理工学研究科材料物理科学専攻(〒226-8502 横浜市緑区長津田町4259-G3-23) 2) 京都大学教授; 大学院工学研究科材料工学専攻 3) 東京工業大学助教授; 大学院理工学研究科材料工学専攻 4) 東北大学教授; 金属材料研究所物質創製研究部 5) 大阪大学教授; 大学院工学研究科附属原子分子イオン制御理工学センター 6) 北海道大学助教授; 大学院工学研究科材料科学専攻 7) 東北大学助教授; 大学院環境科学研究科環境科学専攻 8) 東京工業大学助教授; 精密工学研究所先端材料部門 9) 大阪大学助教授; 大学院工学研究科マテリアル生産科学専攻 10) 東京工業大学助教授; 大学院総合理工学研究科材料物理科学専攻 11) 大阪大学助教授; 超高压電子顕微鏡センター 12) 九州大学助手; 大学院総合理工学研究科融合創造理工学部門

Past and Future of Research Activity for Intermetallic Compounds—Overview Based on Compiled Statistics—; Yoshinao Mishima¹⁾, Haruyuki Inui²⁾, Masao Takeyama³⁾, Kouki Takanashi⁴⁾, Ryoichi Nakatani⁵⁾, Seiji Miura⁶⁾, Kyousuke Yoshimi⁷⁾, Hideki Hosoda⁸⁾, Takayoshi Nakano⁹⁾, Yoshisato Kimura¹⁰⁾, Hiroyuki Yasuda¹¹⁾, Satoshi Hata¹²⁾

Keywords: intermetallics compounds, structural material, Ni-Al, Ti-Al, Fe-Al, ordered alloy, lattice defect, control of lattice defect quality, Annual Meeting of the Japan Institute of Metals, Materials Research Society (MRS), statistical method

2007年1月10日受理

1. はじめに

金属間化合物材料研究は今や第3世代ともいえるべき新たな段階へと突入しようとしている。第1世代は、1980年代のNi-Al系化合物材料研究の時代であり、金属間化合物の構造用材料としての可能性・有用性を明確にした⁽¹⁾。この流れは1980年代後半からのTi-Al系を中心とした第2世代へと引き継がれ、化合物のみからなる実用材料の開発へとつながった⁽²⁾。そして第3世代では、複雑構造系を含むその他の金属間化合物や化合物を含む新たな複相合金、さらには機能性金属間化合物へと研究対象が拡大し、近い将来で実用化の可能性が高い化合物種も見出され始めている⁽³⁾。同時に、格子欠陥の質的制御を中心とするナノオーダーでの構造・欠陥制御、さらには、「金属間化合物学」ともいえるべき学理の構築に向かった方向性も見え始めている。こうした金属間化合物研究の変遷や新しい展開は、国内では、日本金属学会の金属間化合物材料セッションを中心とした講演発表(2回/年)、さらに国際的には、MRS (Materials Research Society)で1984年にスタートした「High-Temperature Ordered Intermetallics Alloys」シリーズでの講演大会(1回/2年)に明瞭に現れている。本稿では金属間化合物研究のこれまでの

流れとこれからの新たな研究展開について、1984年から2006年までの統計データに基づき解説する。

2. 日本における金属間化合物研究

東北大 青木, 和泉らによるNi₃AlへのB添加による粒界脆性の抑制は、化合物単独での耐熱構造材料としての研究を加速させるとともに、超合金中での50%以上の体積率を占める化合物相の有効性を確実なものとした⁽¹⁾。さらに金属間化合物特有の異種原子の規則配置やそれに基づく異常強化現象の発現、そしてe/aの操作による相安定性の制御の可能性は材料研究者にとって極めて魅力的であり、たちまち全国へ、そして日本が発信する形で世界へと広がっていった。これらは現在までに数々の新知見の発見、実用化のためのブレークスルーとともに、将来に向かっての新たな展開をも生み出している。こうした流れは、春・秋開催の日本金属学会の講演発表に明確に現れている。本稿では、1984年春季大会から2006年秋季大会までの全46講演大会、全50812件の講演を統計的に調査した結果を紹介する。調査内容は、(1)金属間化合物に関する講演数(金属間化合物材料セッション、それ以外のセッション)、(2)構造材料・機能材料といった用途、組成(Ni基, Fe基, Ti基等)、(3)化合物組成(TiAl, Ni₃Al,

MoSi₂ 等), (4)結晶構造(L1₂, L1₀, D0₁₉ 等), (5)研究内容(力学特性, 組織制御等), (6)結晶状態(単結晶, 方向制御結晶, 多結晶), (7)相状態(化合物単相, 化合物複相, 合金相(不規則相)を含むコンポジット), (8)実験手法(組織観察, 力学特性評価, TEM 観察, 熱電特性測定等), (9)注目温度(室温より低温, 室温付近, 高温(~1000℃), 超高温(1000℃~)), (10)研究者所属大学, (11)企業研究者の発表(もしくは, 企業研究者が共同研究で含まれるもの)等によって行われた. 調査は原則として, 金属学会講演概要集の内容に基づき実施された.

(1) 講演数で見る金属間化合物研究の変遷

図1に, 日本金属学会春期・秋期講演大会での全講演件数の推移と金属間化合物関連講演件数の推移を示す. 全講演件数は, 春期より秋期で多く, 1988年秋期大会で初めて1000件の大台に乗るとともに, 1992年秋期大会から現在まで, 1996年春期大会(997件)を除いて, 4桁の講演件数を維持している. そして, 2003年秋期大会では, 1500件をも突破している. こうした中で, 全講演数に占める金属間化合物関連研究講演の割合は, 1984年の2.1%から急上昇し, 1991年~1996年の間で7~11%, 1996年~2001年で4~6%と一旦落ち込むものの, 2002年には再び上昇し, 2006年に至るまで7~8%台を維持している. 2002年からの講演件数の再上昇は, 秋期大会ごとに2002年から開催される公募シンポジウム「金属間化合物材料の新たな可能性」のスタート時期と一致し, 第3世代金属間化合物研究に向けた新時代の到来によるものである. 現在2006年秋期大会にて, 同シリーズの公募シンポジウムは5回を数える.

図2には, 金属間化合物関連講演件数そのものの推移を講演セッション別(金属間化合物材料セッションとそれ以外のセッション)に分類し示している. 化合物関連件数は, 1984年春期大会での14件から加率的に増加し, 1992年には100件

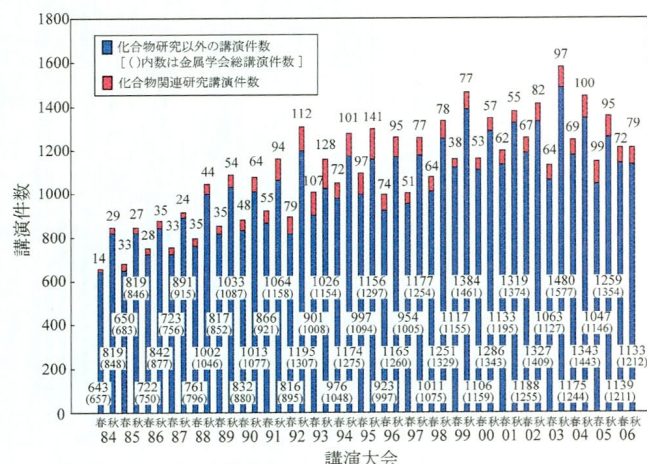


図1 日本金属学会春期・秋期講演大会(1984年~2006年)での全講演件数の推移と金属間化合物関連講演件数(金属間化合物材料セッション以外での講演を含む)の推移.

を突破し, 1995年秋期大会(ハワイで開催: 外国人参加者あり)の141件を最高に, 2006年に至るまで, 50~100件の間で推移している. 1999年付近で講演件数は一旦停滞, 極小値を示したものの, 再び増加傾向に転じ, 現状, 1994年~1996年の過去最多の講演件数とはほぼ水準まで回復している. 他のセッションでの化合物講演件数の増加も認められるが, 今なお, 金属間化合物材料セッションで講演発表の大半がなされており, 学会全体に占める金属間化合物関連の講演件数, ならびに研究者人口の占める割合は, 最大規模である.

(2) 金属間化合物研究の注目用途, 種類, 手法の変遷

図3には, 対象化合物の用途別研究割合の推移を示す. 1984年頃のわずかな期間, 構造・機能両用途にて新規化合物の探索研究が進められたものの, 金属間化合物の規則異種原子配置ゆえの特異な力学現象や転位運動に注目が集まり,

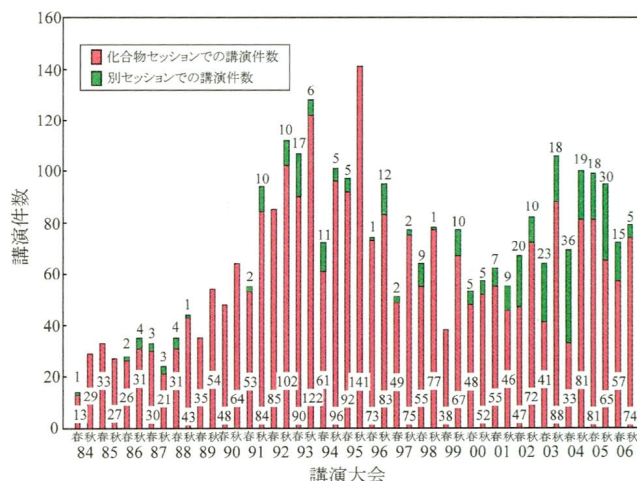


図2 日本金属学会講演大会(1984年~2006年)での金属間化合物関連講演件数の推移. 金属間化合物材料セッションとそれ以外のセッションに分類.

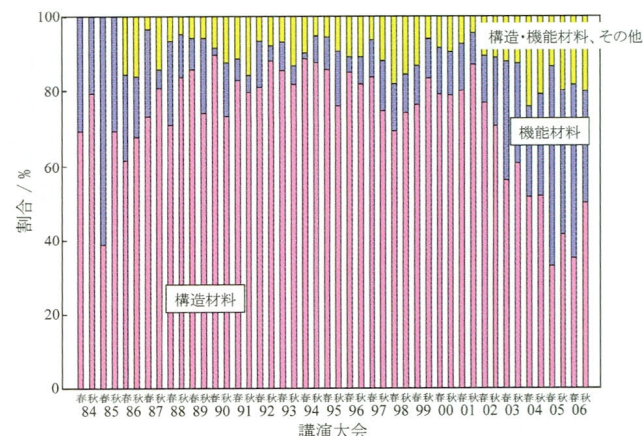


図3 日本金属学会講演大会(1984年~2006年)で講演された金属間化合物の用途別分類の推移. 構造材料用途, 機能材料用途, その他(両方に属するもしくは属さない用途)での割合の変化.

2001年頃までの長期にわたり、構造材料用途主体の研究が進められた。その対象組成は、図4に示すように、当初のNi基、Fe基から、途中、Al基、Co基、Nb基化合物を経て、1980年代の後半からは、Ti基が圧倒的な割合を占めるようになっていく。これは、図5に示す化合物組成別統計から明らかなように、層状組織を特徴とし、室温での延性、さらには良好な高温比強度、耐酸化性を持ち合わせるTiAl-Ti₃Al(複層TiAl化合物)の登場による。ただし、2000年前後から国内でのTi基化合物の講演件数は極端に減少し、その他欄に分類される化合物の割合が増加している。こうした傾向は、化合物の研究スタート時と類似の現象であり、新しい化合物の探索時期に差しかかっていることを示唆している。その候補材としては、シリサイド、Fe-Al系、ボライ

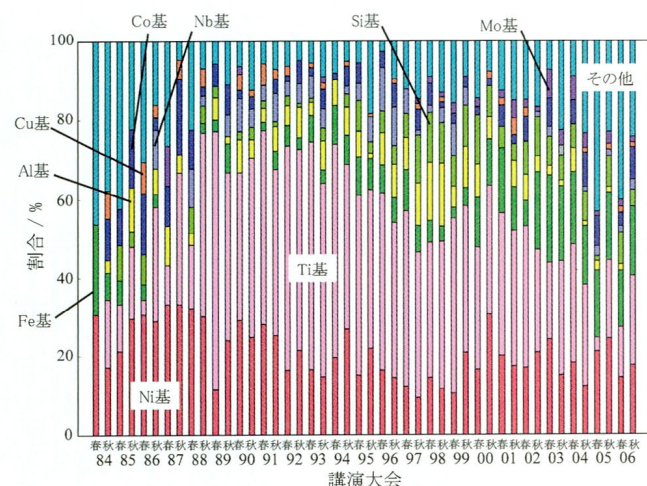


図4 日本金属学会講演大会(1984年～2006年)での金属間化合物の対象組成の推移。原子濃度で最も多くを占める元素で分類した。TiAl基化合物については、Al-rich TiAlを含め全てTi基として分類。ただし、D0₂₂型Al₃Ti、ならびにL1₂型Al₃Ti基3元系化合物はAl基として分類。

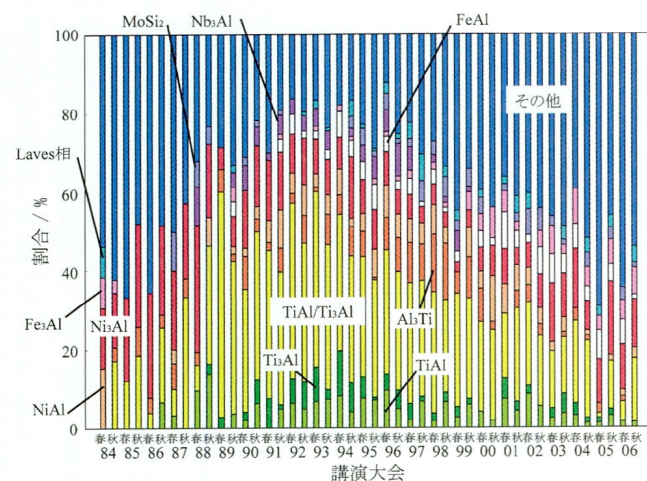


図5 日本金属学会講演大会(1984年～2006年)で講演された金属間化合物組成の推移。

ド、カーバイド、ラーベス相、その他複雑構造系金属間化合物や化合物を含む新たな複相合金が挙げられる。同時に、機能性金属間化合物(図3参照)に関する講演割合が急上昇していることも特徴的である。

図6には、研究内容別の統計データを示す。構造用金属間化合物としての開発の経緯から、力学特性に関する研究が圧倒的な多数を占めるが、同時に組織制御、組織観察、格子欠陥制御といったミクロ・マクロスケールからの特性改善に関する研究が目立つ。特に1995年以降は、組織制御や組織観察に関する研究の割合が増加している。これは、新化合物相探索のための研究数の増加によるものと考えられる。化合物研究に関していえば、透過型電子顕微鏡観察による格子欠陥レベル、さらに陽電子消滅法などを用いた点欠陥レベルでの研究も全体講演数の増加とともに増加し、マクロな塑性挙動とミクロな格子欠陥の寄与とをつなぐマルチスケール的な研究

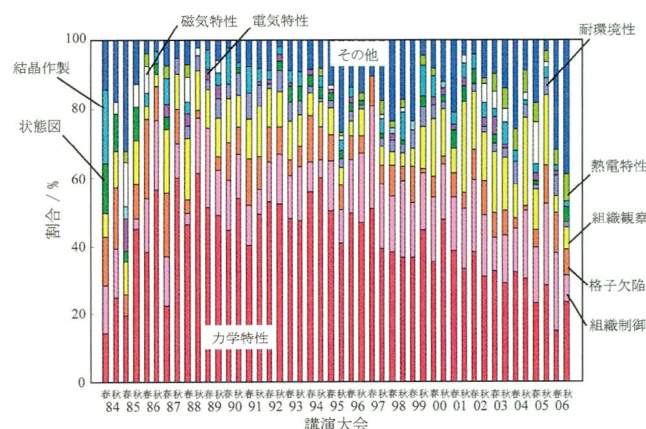


図6 日本金属学会講演大会(1984年～2006年)での金属間化合物の研究内容別の分類の推移。概要から最も注目したと考えられるものに分類。

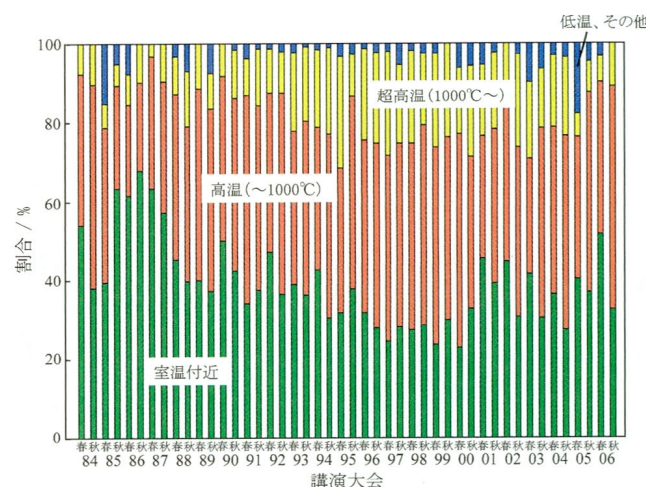


図7 日本金属学会講演大会(1984年～2006年)での金属間化合物講演における注目温度(実施した研究温度)の推移。低温(室温より低温)、室温付近、高温(～1000℃)、超高温(1000℃～)、低温・その他(不明もしくは前述に属さないもの)に分類。

が常に行われている。さらに注目温度としては、図7に示すように、比較的实验の容易な室温での研究に加えて、高温耐熱材料としての特徴から、高温度域(～1000℃)、さらには、1990年代以降は1000℃を超える超高温度域を対象とした研究講演件数の増加が認められる。化合物研究分野の特徴としては、図8に示すように、単結晶や集合組織制御を行った方向制御材を用いた基礎研究が常に一定の割合で実施されている。絶え間ない新化合物系の探索と実用化研究とが同時平行的に行われ、且つ、単結晶等を用いた基礎研究が実施されたことが、現在の金属間化合物学ともいえる学理構築へとつながっている。

(3) 研究機関、企業参入割合の変遷

図9には、化合物セッションにおける講演者の所属大学の割合(筆頭講演者の所属)を示す。化合物の新知見の発見経緯

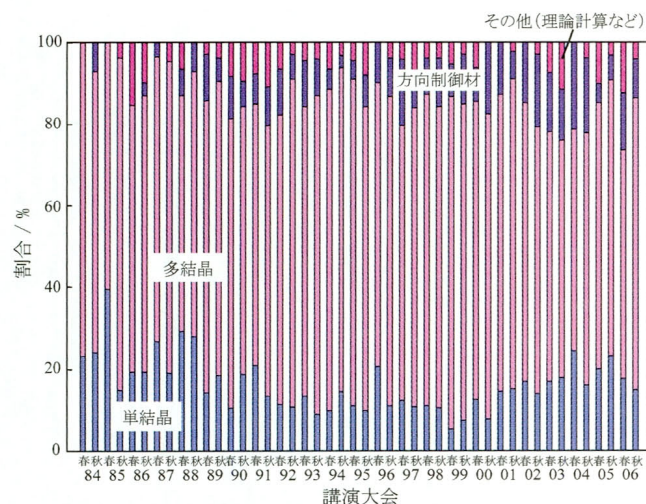


図8 日本金属学会講演大会(1984年～2006年)での金属間化合物結晶状態の推移。単結晶、多結晶、方向制御材(TiAl-PST 結晶を含む)、その他の分類。

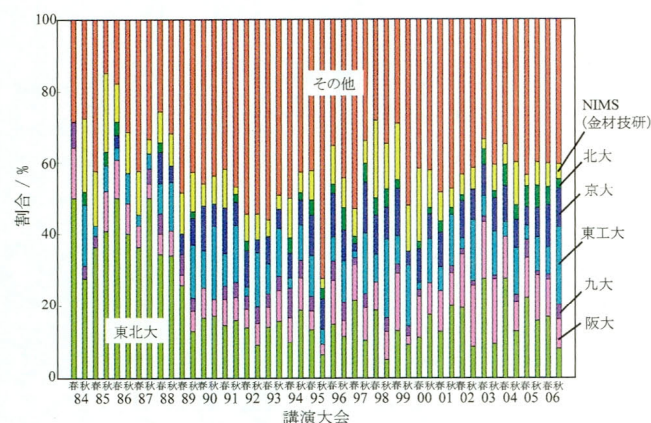


図9 日本金属学会講演大会(1984年～2006年)での金属化合物材料セッションにおける講演者の所属大学の割合の推移。筆頭講演者の所属で分類。企業研究者の講演はその他に分類。

から研究初期には東北大を中心に多くの研究・講演がなされていたが、すぐさま全国の主要大学へとその研究網が広がっていく様子がわかる。さらに、図10には、共著者に企業研究者・技術者を含む講演の割合の推移を示す。研究当初は、企業の参入割合が極めて低いのに比べ、1990年前後からその割合が20%前後にまで急上昇した後、1994年頃から現在に至るまで、ほぼ10%程度の割合を維持している。これは、いくつかの化合物種の実用化にむけた研究段階と深く関連するが、現状、新しい化合物の探索研究に対しての企業の参入割合は必ずしも高いとはいえない。これは、景気の動向とも深く関連するものと考えられるが、TiAl/Ti₃Alのような超新星的な新化合物の出現に対する待ちの体制に在る段階であるといえる。

3. 世界における金属間化合物研究

MRS(Materials Research Society)において、1984年にスタートした「High-Temperature Ordered Intermetallics Alloys」シリーズ、さらにはそれを引き継ぐ形で2002年にスタートした金属間化合物材料関連シリーズの全12大会、1763件の講演に対し、講演題名、著者名、著者所属をもとに、統計的調査を行なった。調査内容は、前述の国内学会と類似の調査項目に加え、講演発表者の国別割合を調べた。

(1) 講演数で見る金属間化合物研究の変遷

図11に示すように、当初口頭のみ講演(口演)により構成されたシンポジウムも、講演件数の増加により1988年よりポスターセッションを併設し、その後も口演、ポスターセッションの両方法により100件を超える講演が常に実施されている。図12に示すように、当初アメリカの研究者を主体とするシンポジウムであったが、急速な国際化にともない、ヨー

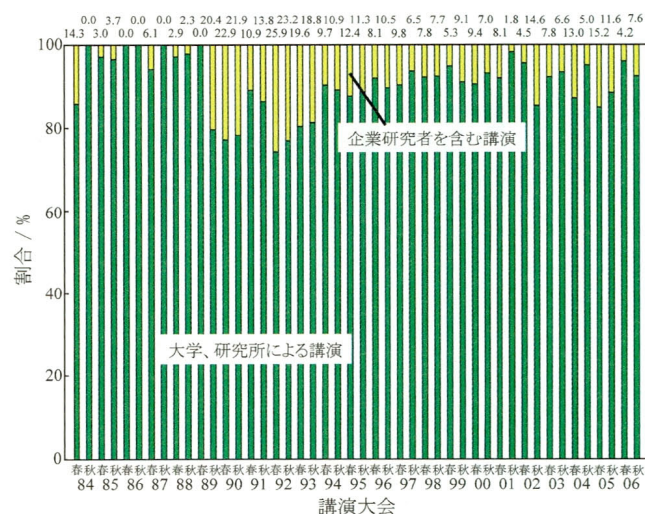


図10 日本金属学会講演大会(1984年～2006年)での金属化合物材料セッションにおける講演共著者に企業研究者を含む講演の割合の推移。

ロップ諸国，さらには日本を始めとしたアジア各国からの講演が急増している．特に日本からの参加者の急増は，山口正治京大名誉教授をはじめとする日本人研究者が世界の化合物研究をリードするとともに，主要オーガナイザーとして日本人研究者が常に加わったことによる．その結果，現在では，ボストンで開催の学会であるにも関わらず，アメリカ，日本，ヨーロッパの研究者を含む主要化合物研究者が一堂に会する金属間化合物研究を象徴するシンボリックな会議として，2年に1度の重要な情報交換の場としての機能を果たしている．

(2) 組成別発表件数割合の変遷

研究対象としては，日本での講演大会の場合と同様に構造材料用途がその大部分を占め，2002年からの包括的な化合物セッションへの移行とともに，機能性材料の研究割合が

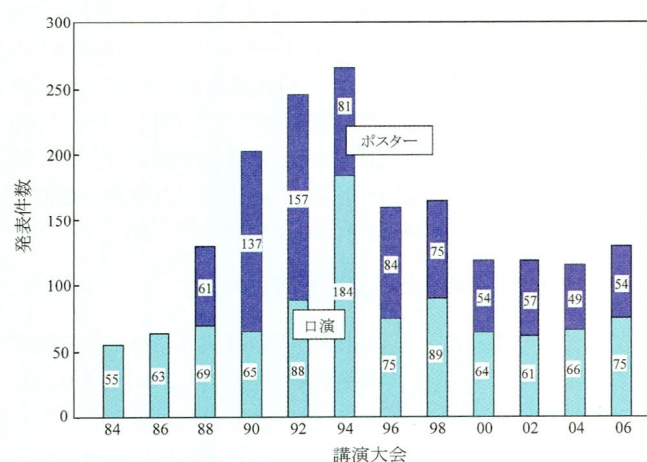


図11 MRS (Materials Research Society) (1984年～2006年)での「High-Temperature Ordered Intermetallics Alloys」シリーズにおける講演件数の推移．口演(口頭による発表)とポスター発表に分類．

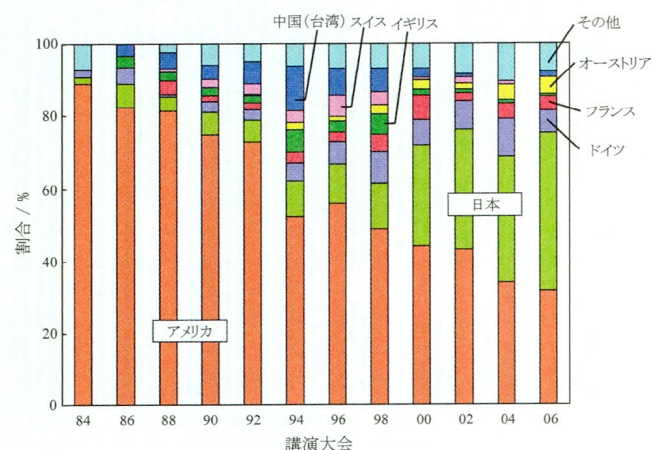


図12 MRS (1984年～2006年)の金属間化合物シンポジウムでの講演者の国別割合の推移．5件/年以下の国をその他として分類．講演者の国別で分類．

20%を越えるようになってきている．講演の行なわれた化合物を対象組成別に見た場合には，図13に示すように，日本と類似した傾向を示すものの，常にNi基がコンスタントに研究されている点，さらに，Ti基化合物が現在でも一定の割合で研究されていることが異なっている．これは，Ni基については，超合金の耐熱温度の上昇の立場から，Ti基については，ヨーロッパを中心としたグループによりTiAl基化合物の基礎ならびに開発研究が今なお精力的に行なわれていることと深く関連している．その他に分類される組成の化合物が日本での講演大会ほど急増していないことも特徴的であり，第3世代の化合物の探索研究は，世界的には日本がリードしていることを意味している．

図14に示すように研究内容としては，力学特性，組織制御，組織観察，格子欠陥解析でその大半を占めるものの，2002年以降の機能性金属間化合物の講演数増加にともない，磁気特性，熱電特性に関する研究が増加の傾向を示している．

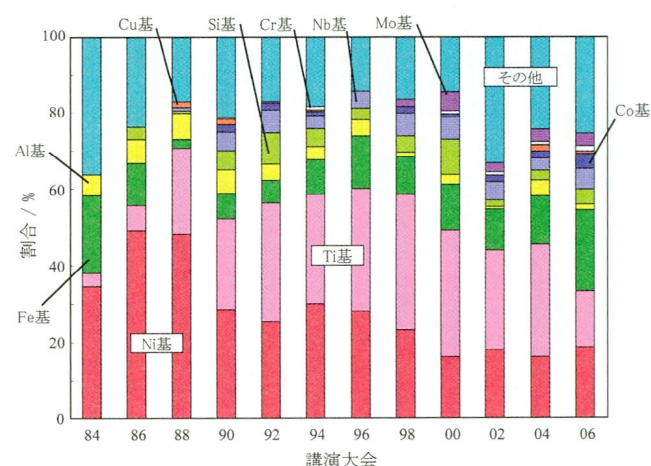


図13 MRS (1984年～2006年)の金属間化合物シンポジウムで講演された金属間化合物組成の推移．

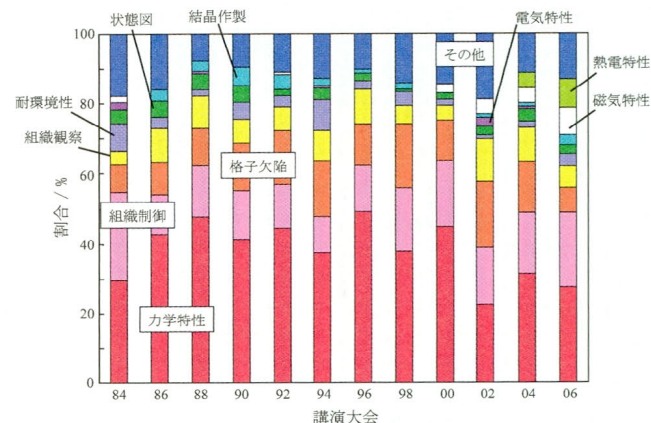


図14 MRS (1984年～2006年)の金属間化合物シンポジウムで講演された研究内容別の分類．講演題目から最も注目したと考えられるもので分類．

4. お わ り に

1984年から2006年までの日本金属学会春秋期講演大会、MRSにおける金属間化合物講演発表・研究の変遷について、統計的なデータをもとに紹介した。第3世代へと突入した金属間化合物研究は、国際的には日本人研究者が先導しているといっても過言ではない。新しい化合物系の探索とともに学理の構築が進んでいる。金属間化合物が異種原子の規則配置の代名詞であり、その機能は異種原子間の強固な結合や規則性、さらにはアトミスティック・スケールでの格子欠陥構造によって支配されることが理解されてきた。こうした原子配列を意識した基礎から応用に至るまでの研究が進められてきたことが、この研究分野の最大の特徴である。(1)各種規則構造における転位運動に基づく塑性変形機構への理解、(2)化学量論組成からのずれや熱平衡・非平衡に基づく空孔やアンチサイト原子の導入効果、(3)添加元素の置換挙動や相安定性がもたらす原子雰囲気場の形成、(4)逆位相境界(APB)や複雑な積層欠陥(CSF)といった規則原子配置に基づく面欠陥の挙動など、ほとんど全ての特異現象がアトミスティック・スケールでの規則構造特有の原子の規則配列と0次元から3次元までの格子欠陥とによって支配されることが明らかになってきた。その結果として、第3世代化合物の新時代には、新しい化合物系の探索に加えて、格子欠陥の立場からは、多量の格子欠陥を単純に導入するような旧来的な手法から、欠陥の種類、配置、サイズといった質的な面の制御までを行うような手法が加わることで、未来に向かった新展開が期待される。こうした「格子欠陥の質的制御」は、他の材料工学分野でも応用可能な技術であり、また、金属間化合物を基軸にしてきた研究者が最も得意とする手法・技術といえる。

尚、第3世代金属間化合物に関する萌芽の研究は、文献(3)にて具体的に示してあるため参照されたい。さらに金属間化合物研究の新たな展開に向けた最新情報の共有化のため、2005年8月より国内200名を越える関連研究者のメーリング

リスト(interim@)が整備され、世界的研究成果を含め瞬時の情報交換が可能となっている。本稿を読んで興味をお持ちいただいた未登録研究者は、三島 [REDACTED] まで是非ご一報いただきたい。

尚、本調査は、平成18年度科学研究費補助金(基盤(C)(企画・調査))「アトミスティック・メタラジーによる第3世代金属間化合物研究への新展開(代表者:東工大 三島良直)」のもとで実施されるとともに、統計データベースの構築には、日本金属学会事務局に一部ご協力いただいた。

文 献

- (1) K. Aoki and O. Izumi: J. Jpn. Inst. Metals, **43**(1979), 1190-1196.
- (2) M. Yamaguchi and Y. Umakoshi: Prog. Mater. Sci., **34**(1990).
- (3) 乾 晴行(編集): インターメタリックスの新たな応用を求めて, 金属, **76**[7](2006), 736-804.



三島良直



乾 晴行



竹山雅夫



高梨弘毅



中谷亮一



三浦誠司



吉見享祐



細田秀樹



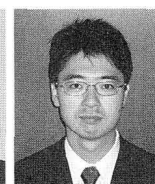
中野貴由



木村好里



安田弘行



波多 聡