
構造不規則系のレオロジー:アナンケオン動力学の確立

領域番号:22B206

令和4年度～令和6年度

科学研究費助成事業(科学研究費補助金)

(学術変革領域研究(B))

研究成果報告書

令和7年度 6月

領域代表者 岩下 拓哉

大分大学・理工学部・准教授

はしがき

素材産業への新材料発見, 既存材料の高機能化といった要求はより先鋭化しており, 既存の材料にはない複雑な構造を持つ材料の開発が求められている. 液体や非晶質を代表とする原子・分子が不規則に並んだ『構造不規則系』材料の利用は, 現代における新機能材開発戦略の一つであり, 幅広いスケールで多岐にわたる不規則系材料が存在する. 不規則系材料の高性能・高機能化・制御を実現するために, 非晶質であることに起因する柔らかさや流れ易さといった特異な力学応答, いわゆる, レオロジー特性を明らかとし, その制御を許す, 構造不規則系の科学の確立が求められている. 本領域では, 構造不規則系の動的素励起, 『アナンケオン』とそれらの相互作用によるアナンケオン動力学を打ち立て, 従来の「不規則構造の静的配置に立脚した物性予測」から「不規則構造の動的挙動に立脚したレオロジー特性予測」へと構造不規則性の科学パラダイムの転換を目標とした.

研究組織

計画研究

領域代表者 岩下 拓哉 (大分大学・理工学・准教授)

(総括班)

研究代表者 岩下 拓哉 (大分大学・理工学・准教授)

研究分担者 足立 望 (豊橋技術科学大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授)

研究分担者 椎原 良典 (豊田工業大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授)

(計画研究 A01 班)

研究代表者 岩下 拓哉 (大分大学・理工学・准教授)

研究分担者 長屋 智之 (大分大学・理工学・教授)

研究分担者 Ivan Lobzenko (2023,2024) (国立研究開発法人日本原子力研究開発機構, 原子力科学研究所 原子力基礎工学研究センター, 研究職)

(計画研究 A02 班)

研究代表者 椎原 良典 (豊田工業大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授)

研究分担者 Ivan Lobzenko (2022) (国立研究開発法人日本原子力研究開発機構, 原子力科学研究部門 原子力科学研究所 原子力基礎工学研究センター, 博士研究員)

(計画研究 A03 班)

研究代表者 足立 望 (豊橋技術科学大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授)

交付決定額(配分額)

総括班 X01

	合計	直接経費	間接経費
令和4年度	390,000 円	300,000 円	90,000 円
令和5年度	260,000 円	200,000 円	60,000 円
令和6年度	260,000 円	200,000 円	60,000 円
総計	910,000 円	700,000 円	210,000 円

計画研究 A01

	合計	直接経費	間接経費
令和4年度	17,550,000 円	13,500,000 円	4,050,000 円
令和5年度	17,680,000 円	13,600,000 円	4,080,000 円
令和6年度	17,810,000 円	13,700,000 円	4,110,000 円
総計	53,040,000 円	40,800,000 円	12,240,000 円

計画研究 A02

	合計	直接経費	間接経費
令和4年度	8,840,000 円	6,800,000 円	2,040,000 円
令和5年度	8,710,000 円	6,700,000 円	2,010,000 円
令和6年度	8,710,000 円	6,700,000 円	2,010,000 円
総計	26,260,000 円	20,200,000 円	6,060,000 円

計画研究 A03

	合計	直接経費	間接経費
令和4年度	17,810,000 円	13,700,000 円	4,110,000 円
令和5年度	17,810,000 円	13,700,000 円	4,110,000 円
令和6年度	17,680,000 円	13,600,000 円	4,080,000 円
総計	53,300,000 円	41,000,000 円	12,300,000 円

研究成果

研究計画班 A01: 荷電コロイド分散系のレオロジー: アナンケオン動力学と電気粘性

塩の添加によって粒子間相互作用が変化し、それに伴って粘度が急激に変化する電気粘性レオロジー現象は、流動性と構造ダイナミクス、そして粒子間相互作用を結びつける特異な現象であり、構造不規則系の研究において極めて有用な手がかりを提供する。そこで、粒子間相互作用を外部パラメタにより正確に制御できる実験系の構築を目指した。

本研究を遂行するにあたり、粘弾性測定装置および小角散乱法、物理化学測定機器による実験的手法と、理論・計算科学的手法を組み合わせた複合的な研究を展開した。研究は複数の項目から構成されており、その第一の課題は、荷電コロイド分散系のサンプル調製法の確立であった。再現性の高い実験系を構築するために、大気と平衡状態にある荷電コロイド分散系を調製し、大気中で安定な系の物理化学的性質(電気伝導度や pH, ゼータ電位)を詳細に評価した。また、荷電コロイド分散系の物理化学的特性データに対して理論・計算を連携させ、コロイド粒子の帯電状態および系全体のイオン強度、またはデバイ長を実験的に推定し、粒子間相互作用に関与するポテンシャルパラメタを決定することができた。本研究成果に関しては、論文として発表する予定である。

二つ目の課題は、荷電コロイド分散系のレオロジーと小角散乱実験から液体相や結晶相のような熱平衡および非平衡相図を作成することであり、荷電コロイド分散系のガラス形成が期待できる領域を把握、ガラス相の有無に関する実験的検証を行った。強アルカリである NaOH を添加することで、粒子間相互作用が増大し、コロイド結晶が形成された。さらに添加すると液化する現象が観測され、それに伴い定常せん断流下の粘度は急激な減少を示す電気粘性効果を観測した。一つ目の課題であった粒子間相互作用の性質とレオロジーの関係性を明らかにするには至らなかったが、ブラウニアン動力学シミュレーションを用いて両者の関係性を築くことが今後の課題である。

研究計画班 A02: 金属ガラスのレオロジー: 計算科学によるアナンケオン動力学の構築

金属ガラスの塑性変形メカニズムは、長年にわたって未解明のままであった。その最大の理由は、結晶性材料における転位のような、塑性を担う変形素子が特定されていなかったことにある。当計画研究では、この変形素子を「アナンケオン」と名付け、分子動力学計算によりその本質的な解明を目指して研究を進めてきた。研究過程において、アナンケオンが原子の協調運動として現れるという仮説を立案し、その抽出を試みた。

具体的には、「原子凍結法」と呼ばれる新しい計算手法を提案した。従来の変形素子の同定手法には、一義的な同定が不可能という問題があった。これに対し提案手法では、変形直前の構造に対して仮想的に一つの原子を凍結し、その結果として協調運動が停止するか否かを調べることで、塑性変形に本質的に関与する原子群を定量的に同定することに

成功した。

本手法の妥当性を、CuZr 金属ガラスを用いて検証した。アナンケオンはおよそ 40 個程度の原子で構成されており、その存在が周囲に大きな原子変位を誘発することが明らかとなった。さらに、この素子は特定の構造的特徴を持たず、従来信じられてきた「構造的に柔らかい領域で変形が始まる」という通説を覆す結果も得られた。また、アナンケオンを構成する原子は、局所的な結合の断裂や再結合を通じて塑性流動を誘起する役割を果たしていた。

これらの成果は、金属ガラスの変形メカニズムに対して「構造欠陥に依存する」という従来の理解を超え、「動的かつ確率的な協調運動」として再定義するものであり、極めて重要な意義を有している。さらに、この新たな視点は、金属ガラスにとどまらず、他の非晶質材料にも応用可能である。ソフトマターから地殻変動に至るまで、広範な非平衡系の力学理解に貢献し得る、新たなパラダイムを提示している。

アナンケオンの同定により、本研究課題の目的は完全に達成された。得られた成果は、基礎科学から応用分野に関心を持つ幅広い読者を想定し、現在、国際誌に投稿中である (arXiv:2503.14903)。

研究計画班 A03: 金属ガラスのレオロジー:アナンケオン動力学と弾塑性変形

A03 班は、構造不規則系の代表である金属ガラスの塑性変形におけるアナンケオン動力学の解明に向けて、予ひずみの付与により構造変化した金属ガラスの力学特性と組織の関係を調査するため、以下のサブテーマに取り組んだ。

(1) 2元系バルク金属ガラスの作製

研究代表者のこれまでの研究により、高圧ねじり加工により予ひずみを付与した金属ガラスは引張延性を示す(アナンケオンの活性化が容易になっている)ことが明らかになっていることから、高圧ねじり加工した金属ガラスの変形に伴う構造変化を評価することによって、アナンケオンの活性化に重要な構造を明らかにすることができるかと期待される。構造不規則系におけるアナンケオンの活性化に伴う構造変化を X 線散乱法等により実験的に詳細に評価するためには、可能な限り単純系の金属ガラスを用いる必要がある。そこで、計画班 A02 において実施する計算機シミュレーションとの連携を考慮して、Zr-Cu 2 元系バルク金属ガラスの作製を試みた。2 元系金属ガラスはガラス形成能が低いため、まず単ロール法を用いて急冷薄帯を作製し、その後急冷薄帯を複数重ね合わせた状態で高圧ねじり加工を施すことで、室温メカニカルアロイングによるバルク化を行った。その結果、直径 10mm 程度のバルク形状の Zr-Cu 金属ガラスを作製することに成功した。

(2) 加工・熱処理による金属ガラスの組織制御

サブテーマ(1)にて作製した金属ガラスの構造緩和挙動を密度測定および熱分析により評価した結果、低温度域からガラス転移温度までの広範な温度域において顕著な密度変化および発熱反応を示した。この密度変化率および発熱量は、鋳造で作製した金属ガラス

を高圧ねじり加工した場合と比較して、顕著に大きかった。研究代表者によるこれまでの研究で、高圧ねじり加工による密度変化率や発熱量は、金属ガラスの延性、すなわちアナンケオンの活性化と関係があることが示されている。したがって、急冷薄帯を出発材として高圧ねじり加工した2元系金属ガラスは、単純系でありながら、アナンケオンの活性化が容易な構造を有していると言える。しかしながら、本試料は引張試験において低応力で破断した。これは、本試料が、薄帯の積層により作製したことで、薄帯間の界面が破壊起点となっているためと考えられる。このことから、2元系金属ガラスの引張試験中その場 X 線散乱による構造解析には至らなかった。

(3) 金属ガラスの延性に重要な組織因子の調査

サブテーマ(2)にて認められた密度変化や発熱反応は、金属ガラスのアモルファス構造中に存在する自由体積に起因していると報告されている。しかしながら、高圧ねじり加工した Zr-Cu-Al 金属ガラスにおいて、密度変化量が小さいにも関わらず非常に大きな発熱量を示すことが明らかになった。これは、安定構造よりも疎な構造(自由体積)に加えて、密な構造(反自由体積)も高圧ねじり加工により多量に導入されたことを示している。これは、延性を示さない金属ガラスには認められない特徴である。したがって、金属ガラスの延性向上には、従来研究において指摘されている自由体積に加えて、反自由体積が共存していることが重要であることが明らかになった。さらに、熱処理に伴う密度変化と発熱量の変化を詳細に調査した結果、発熱を伴わない密度変化が低温度域において生じていることが新たに明らかになった。高圧ねじり加工した金属ガラスの延性は、この発熱を伴わない密度変化の発現に連動して低下した。この密度変化は、金属ガラス中にマイクロメートルスケールで分散している残留応力に起因することが示唆されており、金属ガラスの延性に重要な組織因子として注目している。この残留応力が付与されるメカニズムは現在調査中であるが、マルチスケールな応力分布を活用することによって金属ガラスの力学特性を制御できる可能性が新たに示された。これらの成果は近日中に論文として発表する予定である。

総括班 X01: 総括班:アナンケオン動力学研究の連携的な企画と運営

総括班は領域内の研究方針の共有と統一を図るため、計 28 回の総括会議を実施した。そのうち 23 回は Zoom を用いたオンライン形式で開催し、5 回は対面形式により実施した。令和 5 年度には、品川で対面による総括会議を開催し、海外のアドバイザー研究者から講評を受けるとともに、最先端の研究成果について報告がなされた。これにより、本領域の研究方向性を新たな視点から見直し、より高い新規性を備えたテーマの形成へとつなげる重要な契機となった。さらに、令和 6 年度にはオンライン形式での国際的な意見交換を通じて、海外研究アドバイザーから貴重な助言を受け、研究成果の論文化に向けた具体的な道筋を明確にすることができた。また、各研究計画班の連携会議は、計 23 回実施され、研究手法や研究対象が異なるグループ間の密な議論を活性化することに成功し、研究成果の一部は論文という形で結実した。さらに、領域代表者は、これまでに対面 3 回、オンライン 3

回の計6回にわたり、海外アドバイザーとの意見交換を重ね、各計画研究班の代表者と迅速かつ的確に情報を共有した。同様に、研究分担者においても、海外アドバイザーとの対面による議論の機会を設け、研究計画に対する具体的なフィードバックを得て、研究の方向性に反映させることができた。こうした取り組みにより、領域全体の推進と成果の質的向上に大きく寄与したといえる。

また、領域ホームページを作成・公開し、研究活動状況をホームページ上で周知できるようにした。研究成果のアウトリーチ活動として、液体研究を推進している領域代表は、異分野である日本金属学会や材料力学学会の関連会議にて招待講演を行い、金属分野や材料分野の研究者からの貴重な意見を頂戴した。その意見を踏まえ、領域研究の新奇性を実現するよう領域研究の方向性を総括会議にて再考した。成果発表の機会としては、領域代表者がシンガポールにて基調講演を行い、同会場には招待講演者として領域メンバーも集まり、現地にて活発なディスカッションを実施した。

また、学術変革領域研究(B)「柔と剛の不均質構造が拓く超越材料設計学」との交流を目的とした発表会を開催し、各研究計画班の代表が京都にて成果発表や意見交換を行い、学術変革領域研究(A)という新たな研究プロジェクトに向けた交流を開始した。

領域ホームページのリンクは以下のとおり。

学術変革領域研究(B)「構造不規則系のレオロジー：アナンケオン動力学の確立」
ホームページ: <https://www.anankeon.com>

研究発表

雑誌論文

1. Ivan Lobzenko, Tomohito Tsuru, Yoshinori Shiihara, Takuya Iwashita, “First-principles atomic level stresses: application to a metallic glass under shear”, *Materials Research Express* **10** 085201–085201 (2023).
2. Ivan Lobzenko Ivan, Tomohito Tsuru, Hideki Mori, Daisuke Matsunaka, Yoshinori Shiihara, “Implementation of Atomic Stress Calculations with Artificial Neural Network Potentials”, *MATERIALS TRANSACTIONS* **64** 2481–2488 (2023).
3. Ivan Lobzenko, Yoshinori Shiihara, Hideki Mori, Tomohito Tsuru, “Influence of group IV element on basic mechanical properties of BCC medium-entropy alloys using machine-learning potentials”, *Computational Materials Science* **219** 112010–112010 (2023).
4. Silvia Pomes, Nozomu Adachi, Masato Wakeda, Takahito Ohmura, “Probing pre-serration deformation in Zr-based bulk metallic glass via nanoindentation testing”, *Scripta Materialia* **237** 115713 (2023).
5. Silvia Pomes, Nozomu Adachi, Masato Wakeda, Takahito Ohmura, “Temperature

Dependence of Nanoindentation-Induced Deformation Dynamics in Zr-Based Bulk Metallic Glass”, Materials Transactions **65** 481-486 (2023).

6. Silvia Pomes, Nozomu Adachi, Masato Wakeda, Takahito Ohmura, “Comparative analysis of nanoindentation-induced incipient deformation of zirconium-based bulk metallic glass in various structural states”, Intermetallics **168** 108269 (2024).

7. Y. Shiihara, T. Iwashita, N. Adachi, Y. Todaka, T. Egami, “Cooperative atomic motion during shear deformation in metallic glass”, 発表予定 (arXiv:2503.14903).

学会発表

1. Yoshinori Shiihara, Takuya Iwashita, “Identification of Deformation Elements in Metallic Glasses through Frozen Atom Analysis”, International Conference on PROCESSING & MANUFACTURING OF ADVANCED MATERIALS Processing, Fabrication, Properties Applications 2025 年 6 月.

2. Yoshinori Shiihara, Takuya Iwashita, “Molecular Dynamics Simulation Identifying Deformation Elements in Metallic Glass”, The 11th international conference on Materials Structure and Micromechanics of Fracture 2025 年 6 月.

3. Ivan Lobzenko, Yoshinori Shiihara, Takuya Iwashita, “The stability and mechanical properties of CuZr bulk metallic glass using Swap Monte Carlo simulation”, The 10th Symposium on Multiscale Materials Mechanics: Mechanism and Modeling (A satellite symposium of ICSMA 20) 2025 年 6 月.

4. 岩下 拓哉, “構造不規則系のダイナミクス”, マルチスケール材料力学部門委員会 第 73 期第 2 回公開部門委員会 2025 年 3 月.

5. 椎原 良典, “ガラス構造における変形素子の特定”, マルチスケール材料力学部門委員会 第 73 期第 2 回公開部門委員会 2025 年 3 月.

6. 足立 望, “金属ガラスの構造若返りによる力学的高機能化”, マルチスケール材料力学部門委員会 第 73 期第 2 回公開部門委員会 2025 年 3 月.

7. 足立 望, 鈴木 隆之, 榎園 知弥, 藤井 洸太, 安部 洋平, 石井 裕樹, 戸高 義一, “高圧ねじり加工による La 系金属ガラスの構造若返り”, 日本金属学会 2025 年春期(第 176 回)講演大会 2025 年 3 月

8. 谷口 慈英, 椎原 良典, “変位・応力・結合解析: 金属ガラスの応力緩和現象“, 第 34 回日本 MRS 年次大会 2024 年 12 月.

9. 山下 優衣, 岩下 拓哉, “荷電シリカコロイド水溶液の流れやすさを科学する ～コロイド帯電とイオン遮蔽～”, テクノカフェ大分 2024 第 10 回高専・大学合同研究発表会 2024 年 12 月.

10. 岩下 拓哉, 椎原 良典, “剪断弾性変形における金属ガラスの協働性の特定”, 第 38 回分子シミュレーション討論会 2024 年 12 月.

11. 山下 優衣, 岩下 拓哉, “電気伝導度測定による荷電コロイドの電荷とイオン強度の決定”, 第 130 回日本物理学会九州支部例会 2024 年 11 月.
12. Yoshinori Shihara, Takuya Iwashita, “Identifying and Characterizing Deformation Elements in Metallic Glasses through Molecular Dynamics”, The 11th International Conference on Multiscale Materials Modeling 2024 年 9 月.
13. Yoshinori Shihara, Takuya Iwashita, “Exploring Plastic Deformation Elements in Metallic Glasses through Molecular Dynamics Simulations”, The 30th International Conference on Computational & Experimental Engineering and Sciences (ICCES2024) 2024 年 8 月.
14. Ivan Lobzenko, Tomohito Tsuru, Yoshinori Shihara, Takuya Iwashita, “Local Von Mises Stress Change in CuZr Metallic Glass as an Indicator of the Stress Response”, The 30th International Conference on Computational & Experimental Engineering and Sciences (ICCES2024) 2024 年 8 月.
15. Bin Wu, Takuya Iwashita, “Collective Dynamics of Liquids in Space and Time”, The 30th International Conference on Computational & Experimental Engineering and Sciences (ICCES2024) 2024 年 8 月.
16. Shuoyang Xiao, Songlin Wang, Bin Wu, Takuya Iwashita, “De-Smearing of Sans Spectra Based on Artificial Neural Networks”, The 30th International Conference on Computational & Experimental Engineering and Sciences (ICCES2024) 2024 年 8 月.
17. Takuya Iwashita, “Dynamics of Liquids: From Excitations to Rheology”, The 30th International Conference on Computational & Experimental Engineering and Sciences (ICCES2024) 2024 年 8 月.
18. 足立 望, 鈴木 隆之, 藤井 洸太, 榎園 友弥, 戸高 義一, “金属ガラスの機械的構造若返りに及ぼす圧力の影響”, 一般社団法人粉体粉末冶金協会 2024 年度春季大会 2024 年 6 月.
19. 岩下 拓哉, “構造不規則系のレオロジーに対するマイクロな視点”, 第 9 回マルチスケール材料力学シンポジウム 2024 年 5 月.
20. 岩下 拓哉, “構造不規則系のマイクロな『流れ』を科学する”, 公益財団法人稲盛財団 3S 交流会 2024 年 4 月.
21. 岩下 拓哉, “脱塩下にある荷電コロイド分散系の粒子間相互作用パラメタの決定 –電気伝導度と化学平衡式の連携による現象論モデリング–”, 研究会「凝縮系の理論化学」2024 年 3 月.
22. 足立 望, 鈴木隆之, 榎園知弥, 藤井洸太, 安部洋平, 戸高 義一, “高圧ねじり加工による金属ガラスの構造若返りに及ぼす加工条件の影響”, 日本金属学会 2024 年春季(第 174 回)講演大会 2024 年 3 月.
23. Ivan Lobzenko, Tomohito Tsuru, Yoshinori Shihara, Takuya Iwashita, “First-principles calculation of atomic stress in CuZr metallic glass under shear strain”, The 7th

International Soft Matter Conference, ISMC 2023 年 9 月.

24. 足立 望, 戸高 義一, “構造若返りした Zr 系金属ガラスの不均一構造評価”, 日本金属学会 2023 年秋期(第 173 回)講演大会 2023 年 9 月.
25. 岩下 拓哉, “液体のダイナミクス:ソフトマターとハードマター”, 令和 5 年度高分子学会九州支部女性研究者創発フォーラム 2023 年 9 月.
26. 岩下 拓哉, “動的素励起に基づく構造不規則系材料の変形機構”, 日本金属学会 2023 年秋期(第 173 回)講演大会 2023 年 9 月.
27. 足立 望, “微小力学応答に基づく金属ガラスの変形挙動解析”, 日本金属学会研究会 No.82 微小領域の力学特性評価とマルチスケールモデリング(招待講演)2023 年 8 月.
28. 足立 望, 戸高 義一, 濱名 亮太, 大村 孝仁, “構造若返りしたバルク金属ガラスの力学応答解析”, 日本金属学会 第 172 回春期講演大会 2023 年 3 月
29. 濱名 亮太, 足立 望, 戸高 義一, 大村 孝仁, “HPT 加工を施した Zr 基バルク金属ガラスの力学挙動に及ぼす構造不均一性の影響”, 日本金属学会研究会 “微小領域の力学特性評価とマルチスケールモデリング 2022” 2022 年 11 月.

図書

特になし.

産業財産権

出願

特になし

取得

特になし

その他

特になし