

【構成員】

教授:杉山 和正/准教授:林 好一/助教:志村 玲子/事務補佐員[1名]/大学院生[6名]

【研究成果】

本研究部門は、回折法を応用して得られる原子レベルの構造情報に基づき、材料特性の最適化や興味ある特性の発現メカニズムの解明に取り組んでいる。

昨年度より、周期的なクラスター容器としてその応用が期待されているマイクロポーラス物質の合成と構造評価に関する研究を継続している。本年度は、昨年度の計画通り X線異常散乱法を用いて Se クラスターを導入したゼオライト(mordenite)結晶の環境構造解析を実施した。本研究によって、これまで定性的にしか議論されていなかった一次元チャンネルの中に閉じ込められた Se 鎖の存在と、周囲に存在する陽イオンとの相互作用に関して議論することができた (*Ref. 1*)。

また今世紀初頭より、金属化合物が 5 回対称あるいは正二十面体クラスターという 2 つの新しい概念を基盤に大きな進展を遂げている事実を踏まえて、金属間化合物に存在する特殊構造と特定その発現メカニズムに関する研究展開を行っている。具体的には、準周期構造をもつ準結晶の近傍に存在する複雑な構造を持つ近似結晶の構造解析および X線異常散乱法を用いた非晶質金属の精密構造解析という方向から研究取り組みを進めている。本年度は、このような金属複雑化合物に関する研究成果のひとつとして、Al-Re-Pd 系および Al-Mn-Pd-Si 系近似結晶の構造解析に成功した (*Ref. 2 & 3*)。例えば、Al-Re-Pd 近似結晶の解析では、これまで中心に重原子の存在する Mackay クラスターに関して、その存在が理論的に予想されていたクラスター中心近傍の構造乱れに関する実験的な結論を示すことができた。また、Al-Pd-Mn-Si 系の近似結晶の解析では、これまで基本構造単位と考えられていた Al-Mn および Al-Pd 系で発見されていた五回対称アトムカラムの連結による新しいカラム構造を発見することができた。一方、非晶質系物質の構造解析に関しては、放射光源を応用した X線異常散乱 (AXS) 法と reverse Monte Carlo (RMC) 法をドッキングした AXS-RMC 法を駆使して、Ga 融液、 $Zr_{50}Cu_{50}$  非晶質合金および  $Zr_{70}Pd_{30}$  非晶質合金の構造解析を推進した (*Ref. 4 & 5*)。本研究グループで独自に開発した AXS-RMC 法は、非晶質合金に存在するアトムクラスターの詳細やその連結様式を解明する目的には最適であり、これまで分子不動力学計算から予想されていた正 20 面体原子配列の特徴やその連結様式を実験的に解明することができた。らに AXS-RMC 法を用いて導出した原子間距離およびその頻度分布を議論することによって、準結晶を晶出する非晶質金属には、結合性の強い正 20 面体原

子配列が存在することも同時に示すことができた。特に、正 20 面体原子配列がランダム系合金に共通に存在する基盤局所構造単位であることを定量的に示すことができたことは、今後非晶質金属の構造的な研究に大きなインパクトを与えることができる基礎研究成果であると自負している。

**Ref.1** N.Togashi, K.Sugiyama, J.Yu, S.Qiu and O.Terasaki:Single crystal structure analysis of the Se-incorporated mordenite, coupled with the anomalous X-ray scattering  
Solid State Sciences **13**, 684-690 (2011).

**Ref.2** S.Suzuki, R.Simura and K.Sugiyama: Crystal structure of  $\kappa$ -AlPdRe.  
Philos. Mag., **91**(19/21), 2610-2616(2011).

**Ref.3** R.Simura, N.Kaji, K.Sugiyama and K.Hiraga: Crystal structure of a new orthorhombic  $Al_{72}Pd_{18}Mn_5Si_5$  approximant phase. Philos. Mag., **91**(19/21), 2603-2609(2011).

**Ref.4** T.Kawamata, Y.Yokoyama, M.Saito, K.Sugiyama and Y.Waseda: Structural Study of  $Zr_{50}Cu_{50}$  Amorphous Alloy by Anomalous X-ray Scattering Coupled with Reverse Monte-Carlo Simulation. Mater. Tans. **51**(10) 1796-1801 (2010).

**Ref.5** K.Sugiyama, T.Muto, T.Kawamata, Y.Yokoyama and Y.Waseda: Structure of a glassy  $Zr_{70}Pd_{30}$  alloy analyzed by anomalous X-ray scattering coupled with reverse Monte Carlo simulation (AXS-RMC). Phillos. Mag., **91**(19/21), 2962-2970(2011).

#### 【研究計画】

平成 23 年度も、優れた機能を有するランダム系物質の特性発現機構解明のために、原子レベルの構造解析を中心に研究推進する計画である。具体的には、ランダム無機構造の解析分野では①X線異常散乱(AXS)法およびリバースモンテカルロ(RMC)法を用いた金属ガラス構造の定量的構造評価を継続推進し、多元系 Zr 系金属ガラスの構造的な特徴を明らかにする研究および②準結晶近似結晶を探索し、特殊なアトムクラスター構造の解明に関する構造評価を推進したい。また、無機複雑結晶材料分野に関しては、平成 22 年度に継続してゼオライト類似の 3 次元チャンネル構造をもつマイクロポーラス物質の構造的な研究を推進する計画である。一方、本研究グループのもう一つの重点目標である、最先端の X 線技術を駆使した原子イメージング法および環境構造解析法などこれまでの限界を超える新しい構造解析技術の研究開発も継続推進する計

画である。具体的には、X線ホログラフィーのさらなる定量化・実用化の推進、および、電子線・中性子線を用いたホログラフィー技術の開発などを計画している。特に、今般注目を集めているナノ結晶構造の微細構造を評価するためのPDF法に関しては、我々の得意とするX線異常散乱法をドッキングすることによって、大きな進歩が確実であるので特に積極的に取り組みたいと考えている。