

令和元年6月6日現在

機関番号：13301

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K17764

研究課題名(和文)結晶塑性における非平衡臨界挙動の多様性の探求

研究課題名(英文) Study on the diversity of nonequilibrium critical behaviors in crystalline plasticity

研究代表者

新山 友暁(Niiyama, Tomoaki)

金沢大学・機械工学系・助教

研究者番号：00583858

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：結晶材料におけるベキ分布で特徴付けられる臨界的な塑性変形挙動に対して、固体材料の個別的な性質(とくに格子構造や各種の欠陥生成エネルギーおよび初期欠陥構造)が及ぼす影響を調べた。この結果、結晶粒界や不規則固体における緩和構造などの初期構造は分布の最大規模のみに影響し、普遍性に関する指数には影響しなかった。一方で、異なる格子構造をもつ材料種間では差異がみられたが、同じ格子構造をもつ系においても異なる指数を示すものがあった。これは積層欠陥エネルギーの違いが転位の運動自由度に影響した結果であると推測され、固体の個別的な性質が塑性変形の臨界挙動の普遍性に影響しうることが示された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

結晶材料の塑性現象は金属構造材料の変形に対応し、その使用時の耐久性や加工性能などと密接に関わっている。本課題は、この塑性現象を非平衡物理学の文脈から問い直すアプローチである。この文脈では、結晶塑性全体をひとつの描像で記述することが想定されていたが、これは臨界挙動に期待される普遍性に依拠していた。これに対して、本課題の結果は、結晶塑性には多様性が包含されており、材料固有の特性を加味する必要があることを明らかにした。このことは、他の非平衡系の臨界挙動においても多様性の影響が無視できないということを示唆しており、材料科学だけでなく非平衡物理学の文脈においても新たな課題を提起することにつながった。

研究成果の概要(英文)：We investigated the influence of the intrinsic properties of solid materials, especially lattice structures, various defect formation energies, and initial defect structures, on the critical behaviors in plasticity characterized by the power distribution. We found that initial structures such as grain boundaries and structural relaxation in disordered solids affect only the maximum size of the distribution and does not affect the exponents related to universality. On the other hand, crystals with different lattice structures show different exponents. Furthermore, even in some crystals with the same lattice structures, the different exponents are obtained. This difference can be explained by the difference in their stacking-fault energies affecting the degree of freedom of motion of dislocations. The results indicate that individual characters of solids could affect the universality of critical behavior in crystalline plasticity.

研究分野：非線形物理学、非平衡物理学、計算材料科学

キーワード：自己組織化臨界 塑性変形 結晶 アモルファス固体 ベキ乗則

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

金属を代表例とする結晶材料の塑性変形現象は材料の加工や耐久性など工業的側面から重要視され、基礎・応用の両側面から極めて多くの研究が行われてきた。しかしながら、塑性現象は転位や粒界などの準安定な原子構造を介した複雑な非平衡過程であるために、未だ多くの面で説明されていない点が残されている。近年、このような塑性現象において間欠的・突発的な変形挙動が普遍的に内在していることが、実験および理論的な研究から報告されている [1]。

この突発的な塑性変形挙動は、 $P(x) \propto x^{-\alpha}$  ( $x$  はイベントサイズ、 $\alpha$  は分布を特徴付ける定数)であらわされるべき分布と呼ばれる特異な確率分布で特徴付けられる。同様の統計的な特徴をもつ現象は、地震や破壊現象を始めとした自然現象から株式市場変動などの社会現象まで幅広い範囲でみられ、突発的に大規模な事象が発生しうるカタストロフ的な現象がこのような統計性で記述される。この統計的な特徴は臨界現象と多くの類似性を持ち、自己組織化臨界 (self-organized criticality, SOC) と呼ばれる非平衡臨界現象の概念で理解されている。このような文脈から塑性現象を捉えなおすことによって、新たな塑性現象の理解の枠組みが与えられることが期待されている。

このような塑性現象の臨界的な挙動を生み出すメカニズムとして、デピンニング転移 (depinning transition) および転位雪崩 (dislocation avalanches) と呼ばれる 2 つの描像が提案されている。デピンニング転移とは、結晶の塑性変形の担い手である転位 (dislocation) の運動を、ランダム媒質中の弾性多様体の運動として捉えることで塑性降伏現象を解釈する描像である。他方、転位雪崩は、多数の転位が集積して渋滞のような準安定構造を自発形成し、それが突発的に雪崩のように崩壊することで大規模な変形を生み出すという描像である。平衡系の臨界現象には強い普遍性があることから、その類似として当初両者は厳密に区別されず、臨界塑性挙動を含むあるひとつの普遍クラスの存在が予想されていたが、その後、前者は 2 次相転移的であるのに対して後者は非 2 次転移的であることが示され、いずれが臨界的な塑性挙動を正しく記述するのかについては議論が続いている [1, 2]。

一方で、そもそも塑性現象の臨界挙動は、複数の異なるクラスのメカニズムを内包している可能性もある。なぜならば、結晶格子構造や転位のもつ多様性、さらに変形・破壊モードの共存など、個別材料の固有性が現象の普遍性に強く影響すると考えられるからである。実際に、シミュレーションおよび実験において、異なる結晶材料の臨界塑性挙動が異なる指数のべき分布によって特徴付けられることが報告されている [3, 4]。このことは、上述した非平衡臨界塑性のクラス分類の議論を根底から覆し、現象の普遍性そのものに疑問符を投げかける。つまり、一般に臨界現象は普遍性を持ち、物質の詳細によらないとされているが、非平衡臨界塑性においては物質の固有性に左右されることが示唆される。

### 2. 研究の目的

この問題に対していくつかの結晶材料 (代表的な fcc, bcc および hcp 金属結晶) に対して、塑性応答の統計性を特徴付けるスケーリング指数を評価し、それぞれの材料種の属するユニバーサリティクラスを特定する。これによって、物質の固有性が現象の普遍性に影響を及ぼす可能性を明らかにする。さらに、原子スケールの解析を行うことで、各材料種の臨界挙動を生み出すダイナミクスを明らかにする。これによって異なる普遍性を生み出すダイナミクスを記述・特定し、その起源に迫ることを目的とした。

### 3. 研究の方法

本研究の目的を達成するためには、転位間の弾性相互作用だけでなく交差やそれに伴う欠陥生成を取り扱い、さらに材料種個別の特性を数値的に再現するシミュレーション手法が必要である。このため、結晶固体の塑性現象を原子スケールで取り扱うことのできる分子動力学シミュレーションを用いた。

この際に重要になるのが、どのような材料種を選択し、どのような負荷条件での変形を考え、どのような物理量に注目して臨界塑性挙動を抽出するかということである。臨界塑性挙動を明確に再現するような条件設定を見出すために、結晶材料種の特徴を規定する複数の原子間ポテンシャルを使用し、fcc, bcc, hcp 格子構造をもつ結晶および不規則固体モデルを構成した。これらの固体モデルに対して、引張り・圧縮およびせん断変形負荷を加えるシミュレーションを実行した。それぞれの条件で得られたシミュレーション結果から、応力・ポテンシャルエネルギー・運動エネルギーなどの物理量に注目し、塑性応答がどのような統計分布に従うかを調べることで、適切な条件設定を探索した。

さらに、結晶内部の欠陥構造の影響についても検討するため、回転変換によって方位を変えた 2 つの単結晶を合体させることで粒界 (異なる方位の単結晶領域同士の界面) を含む結晶構造モデルを作成し、単軸引張変形シミュレーションを実行した。このとき、複数の粒界をモデルに含めることで、雪崩的な塑性伝播を抑制する効果を定量的に評価した。

本研究では、材料種の固有の性質が臨界挙動の普遍性に及ぼす影響について注目するため、上述した事前調査でえられた適切な変形条件を適用し、異なる材料種間での統計性の違いについて比較した。このため、異なる格子構造・原子間相互作用をもつ結晶として、fcc, bcc, hcp 構造をとる典型的な金属である Al (および Ni), Fe, Mg を対象とし、低温・低ひずみ速度下での単

純せん断変形を加えるシミュレーションを実行した。この臨界的な塑性挙動を特徴づけるために、ポテンシャルエネルギーを基準として塑性イベントが発生した時間領域を特定し、個別のイベントで変形した領域(滑り領域)の面積(に比例する量)を抽出した。この一連の数値計算を、粒子数約 25000 から 400000 個の範囲で実行し、えられた平均滑り領域面積とシステムサイズの関係をもとにして、スケーリングの指数を求めた。

#### 4. 研究成果

分子動力学シミュレーションからえられた応力・ポテンシャルエネルギー・運動エネルギーの時系列データ解析を行ったところ、変形条件に関わらず弾性的な変形と塑性変形の発生を交互に繰り返す挙動が確認できた。これは、応力の時間発展においては、弾性変形による応力上昇と塑性変形イベントの発生による急激な応力降下の繰り返しとして観察された。塑性イベントの規模に対応する変動量は大小様々で、発生時間間隔も多様であり、全体として鋸状の不連続な変動を示した。運動エネルギーは塑性イベント発生時に突発的な急上昇を示したが、ノイズが相対的に大きいことから、このサイズの系においては塑性イベントの発生および規模の定量化には運動エネルギーは適当でないことがわかった。応力は塑性変形規模を適切に表現するが、弦の振動のような転位の微小な運動に鋭敏であるため、不可逆的な塑性イベントの特定に問題があった。一方で、ポテンシャルエネルギーはこのような微小な転位運動には鈍感であり、塑性イベントの特定に有用であることがわかったが、応力解放に寄与しない方向の結晶滑りや欠陥形成のような事象においても変動を示すため、規模の定量化には適切でない側面を含むことが明らかになった。

変形の負荷方向は起動する滑り系に密接に影響し、とくに圧縮変形時に大規模なイベントの発生確率を増加させる傾向があった。単軸引張および圧縮変形は、変形の進行とともに負荷方向と垂直な方向のサイズが減少し、最終的にシミュレーションが破綻してしまう。また、hcp 系での滑り系の特徴を捉えるために 1 方向のせん断応力を加える必要がある。このため、本研究におけるシミュレーションでの有効な負荷として、せん断変形を与えることを選んだ。ただし、以下の多結晶系のシミュレーションにおいては、粒界滑りの影響を避けるために単軸引張を用いた。

結晶内の原子スケール欠陥構造が臨界塑性挙動に与える影響については、とくに結晶粒界の効果をみるために、複数の粒界を含む Al 結晶に対する単軸引張変形シミュレーションを行った。このとき、原子および応力制御のための周期境界長制御に Langevin ダイナミクスを導入することで、大規模変形イベント時に発生する弦の振動的な転位の運動を抑制した。この結果えられた応力時系列を時間平均化によって平滑化を施し、応力降下量  $\Delta\sigma_z$  を抽出して統計分布  $P(\Delta\sigma_z)$  を計算した。

図 1 に示したように、統計分布は以下のようなベキ分布

$$P(\Delta\sigma_z) \propto \Delta\sigma_z^{-\alpha} \exp(-\Delta\sigma_z/\Delta\sigma_c)$$

に従っていることが確かめられた。この指数  $\alpha$  は粒界の個数  $N_{GB}$  に無関係にはほぼ一定値を取っていたが、 $\exp(-\Delta\sigma_z/\Delta\sigma_c)$  で表現されるイベントの最大規模は粒界の個数に依存し、粒界が増加するに従って  $\Delta\sigma_c$  が減少することが示された。このことから、転位移動の最大の障害となる面欠陥である粒界は、臨界塑性挙動の普遍性に対しては大きな影響を及ぼさないことがわかった。

また、結晶内の亀裂進展の間欠挙動についても比較対象としてシミュレーションを実行したが、単結晶内での亀裂進展はベキ分布に従わず、ポアソンの確率過程として記述されることが分かった。このため、固体内部構造のある程度の複雑性が非平衡臨界挙動には必要であることが示唆された。

さらに、補足的な検証として、規則構造を持たないアモルファス固体の塑性変形における臨界挙動についてもシミュレーションを行った。Cu と Zr の原子間相互作用 [5] をとる 2 元粒子系を液体状態から急冷することで、ガラス状態のアモルファス固体モデルを作成し、純せん断変形を加えた時の塑性応答を調べた。さらに、事前熱処理を加えることで構造緩和を与えたモデル (well-aged model) との比較も行った。この結果えられた応力時系列においては、結晶系でみられたような大規模変形直後の振動的な応力変動は見られず、先の応力変動挙動が転位運動特有のものであったことが確かめられた。また、熱処理によって初期のガラス内部で構造緩和が進行し、その結果として個別の塑性伝播領域が異方的に発達することがわかったが、このような空間的な特性もイベントの最大規模  $\Delta\sigma_c$  には影響を与えるが、ベキ指数  $\alpha$  には顕著な影響を及ぼさないことが明らかになった。

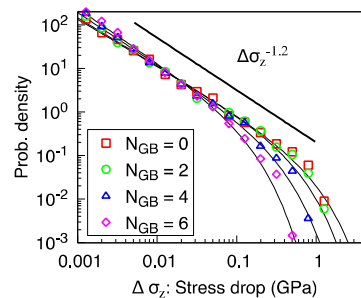


Fig. 1.  $N_{GB}$  個の粒界を含む結晶モデルでのイベントサイズ分布。

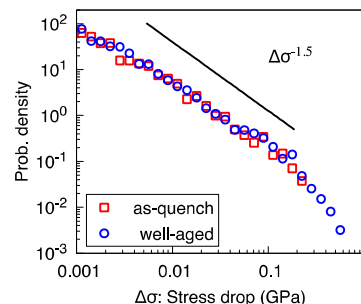


Fig. 2. Cu-Zr 金属ガラス系のイベントサイズ分布。

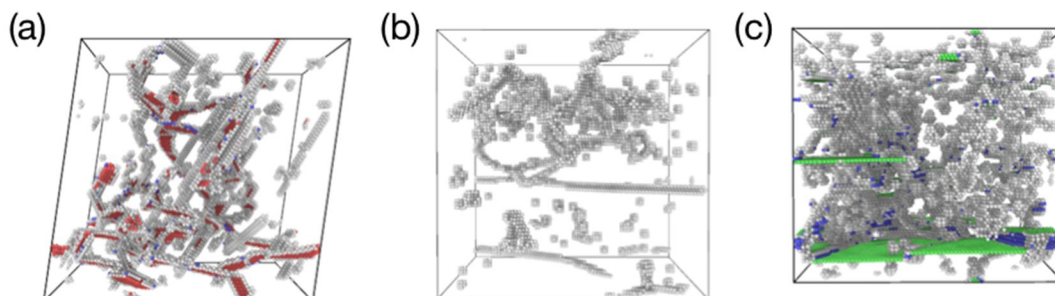


Fig. 3. 格子構造として fcc, bcc, hcp をそれぞれとる (a) Al, (b) Fe, (c) Mg の初期欠陥構造のスナップショット。格子欠陥構造をとる原子のみを表示しており、線状に並んだ原子が転位に対応する。

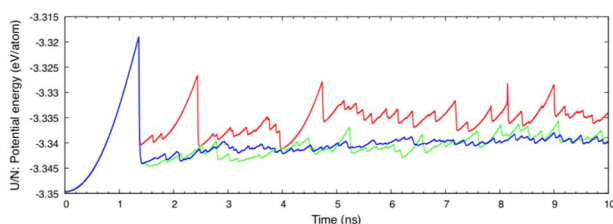


Fig. 4. Al 系のせん断変形時のポテンシャルエネルギーの時間発展。赤色・緑色・青色の線はそれぞれ粒子数  $N = 52668, 196020, 475200$  での結果。

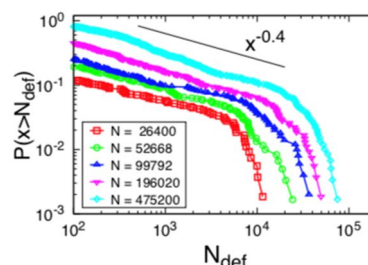


Fig. 5. 転位移動による滑りを担った原子の個数の累積分布のサイズ依存性。

以上のような結果からえられた知見に基づき、複数の結晶材料種での臨界的な塑性挙動の臨界的な挙動の違いを解析した。対象とした材料種としては、fcc, bcc, hcp 格子構造をとる典型例である Al (および Ni), Fe, Mg を選択し、それぞれの原子間相互作用を表現する EAM 型多体ポテンシャルをシミュレーションに用いた [6-8]。変形条件として有限温度下で一定ひずみ速度の外部せん断変形を加えた。

いくつかの予備的なシミュレーション結果から、アモルファス固体と大きく異なる点として、初期原子配置の選択は複雑な問題を内包しており、初期の結晶方位および欠陥構造の取り扱いが重要な因子であることがわかった。例えば bcc 結晶では初期の塑性イベント発生時に内部に大量の欠陥を生成し、それが解消されず粒界などの欠陥構造が残存し、転位運動ではない滑りによって塑性流動が進行してしまった。hcp 結晶では、滑り自由度の小ささが臨界挙動の普遍性に影響を及ぼす可能性が予想されていたため、底面滑り方向をせん断方向に並行になるよう設定したところ、対生成した転位が周期境界条件を通じて対消滅し、その後はこの対生成と消滅を周期的に繰り返す挙動が発生した。このため、両系では事前に高温下で変形を加えて塑性変形を発生させることで、転位を含む初期欠陥を自然に導入することでこれを回避した (図 3)。このようにして一辺およそ 7 nm から 20 nm の範囲の初期配置を作成し、これをもとにシミュレーションを実行した。

図 4 に示したように、えられた応力およびポテンシャルエネルギーの時系列はともに鋸状の不規則な変動を示し、その降下量の統計分布はともにベキ分布に従っていることが確かめられた。臨界塑性挙動への影響を調べるために、ポテンシャルエネルギーを基準として塑性イベントを特定し、その際に滑りが発生した領域を非アフィン自乗変位にもとづいて抽出した。これをイベント規模  $s$  として統計分布を計算したところ、予想された通りベキ分布したがっていた (図 5)。この分布が

$$P(s) \propto s^{-(\kappa+\sigma)} f_{cut}(s / L^{1/\nu\sigma})$$

に従うとして、システムサイズ  $L$  についての依存性に注目することで、ベキ指数およびサイズについてスケーリング指数  $\kappa + \sigma$  および  $\nu\sigma$  を評価した。えられた指数は先行研究の値に近い範囲で整合するものであったが、その範囲内で材料種によって異なる値をとっていた。注目すべき点として、異なる格子構造をとる Al, Fe, Mg の間だけでなく、同じ fcc 構造をとる Al および Ni においても指数は一致しなかった。この差異は、両種での積層欠陥エネルギーが滑りの自由度に及ぼすことにあると推測される。

以上の結果から、格子構造のような空間の対称性を規定する要素だけでなく、原子間相互作用の詳細も塑性現象の臨界的な性質に影響を及ぼしていることが明らかになった。ただし、指数評価を行うための有限サイズスケーリングにおいては、小さなサイズ領域でスケーリングから外れる

傾向やスケーリング曲線から外れるサンプルも見られた。これら誤差の影響は、材料種に依存した結論には定性的に影響しないと予想されるが、より大規模な計算と初期配置作成の精緻化による厳密な評価が今後の課題である。

#### < 引用文献 >

- [1] M. C. Miguel, A. Vespignani, S. Zapperi, J. Weiss, and J.-R. Grasso. *Nature*, **410**, 667, (2001).
- [2] P. D. Ispanovity *et al.*, *PRL*, **112**, 235501, (2014)
- [3] J. Weiss *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **114**, 105504 (2015).
- [4] T. Niiyama and T. Shimokawa, *Phys. Rev. E*, **91**, 022401 (2015)
- [5] S. Kobayashi, K. Maeda, and S. Takeuchi, *JPSJ*, **48**, 1147 (1980).
- [6] Y. Mishin, D. Farkas, M. J. Mehl, and D. A. Papaconstantopoulos, *Phys. Rev. B* **59**, 3393 (1999).
- [7] M. I. Mendeleev, M. Kramer, S. Hao, K. Ho, and C. Wang, *Phil. Mag.* **92**, 4454 (2012).
- [8] M. I. Mendeleev, *et al.*, *Phil. Mag.*, **83** 3977(2003).

#### 5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 2 件)

T. Niiyama and T. Shimokawa, “Discontinuous Dynamics of Mode-I Crack Propagation in Single Crystals”, *J. Soc. Mater. Sci. J.*, **67**, pp. 222-228 (2018).

DOI: 10.2472/jsms.67.222. 査読あり

[https://www.jstage.jst.go.jp/article/jsms/67/2/67\\_222/\\_article/](https://www.jstage.jst.go.jp/article/jsms/67/2/67_222/_article/)

T. Niiyama and T. Shimokawa, “Barrier effect of grain boundaries on the avalanche propagation of polycrystalline plasticity”, *Phys. Rev. B rapid comm.*, **94**, 140102(R) (2016).

DOI: 10.1103/PhysRevB.94.140102. 査読あり

<https://arxiv.org/abs/1602.02981>

〔学会発表〕(計 10 件)

新山友暁, 下川智嗣 “結晶の臨界塑性挙動における材料固有性: 分子動力学シミュレーションによる解析” 日本物理学会 2019 年春季大会, 2019 年.

新山友暁, 下川智嗣, 譯田真人, 石井明男, 尾方成信 “固体材料の塑性現象における突発的・臨界的な変形挙動” 第 59 回高圧討論会, 2018 年. (招待講演)

T. Niiyama, M. Wakeda, T. Shimokawa, and S. Ogata, “System-spanning shear avalanches induced by thermal structural relaxation in metallic glasses”, *The 9th International Conference on Multiscale Materials Modeling (MMM 2018)*, 2018 年.

T. Niiyama, M. Wakeda, T. Shimokawa, and S. Ogata, “Evolution of shear deformation avalanches in annealed metallic glasses”, *Physics of Jammed Matter*, 2018 年. (招待講演)

T. Niiyama, T. Shimokawa, “Mechanical Behaviors Affected by Defect Structures and Intermittent Plasticity in Nano-Scale Materials”, *The 2018 MRS Spring Meeting & Exhibit (Spring MRS 2018)*, 2018 年. (招待講演)

新山友暁, “材料の塑性現象における地震に類似した変形挙動の原子シミュレーション”, *地震活動の物理*, 2018 年. (招待講演)

新山友暁, 尾方成信, 譯田真人, 下川智嗣 “材料塑性に内在する雪崩的な集団挙動とその原子スケールダイナミクス” *日本金属学会 2017 年春季講演大会*, 2017 年. (招待講演)

新山友暁, “固体材料の間欠的な塑性変形とその微視的特性”, *日本材料学会北陸信越支部特別講演会*, 2017 年. (招待講演)

T. Niiyama, T. Shimokawa, “Atomistic Simulations for the Interaction between Grain Boundaries and Avalanche Motion of Dislocations”, *Dislocations 2016*, 2016 年.

T. Niiyama, T. Shimokawa, “Interactions between Collective Dislocation Motion and Grain Boundaries in Metals”, *The 9th Pacific Rim International Conference on Advanced Materials and Processing (PRICM9)*, 2016 年.

#### 6 . 研究組織

(1)研究分担者

研究分担者氏名:

ローマ字氏名:

所属研究機関名：

部局名：

職名：

研究者番号（8桁）：

(2)研究協力者

研究協力者氏名：下川 智嗣

ローマ字氏名：(SHIMOKAWA, Tomotsugu)

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。