

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 6 月 7 日現在

機関番号：14401
 研究種目：基盤研究(S)
 研究期間：2008～2012
 課題番号：20226004
 研究課題名（和文）
 塑性物理学の創出
 研究課題名（英文）
 Plastic Physics of Defect Mechanics
 研究代表者
 澁谷 陽二 (SHIBUTANI YOJI)
 大阪大学・大学院工学研究科・教授
 研究者番号：70206150

研究成果の概要（和文）：本研究では、塑性変形の基礎メカニズムである転位を素欠陥とし、その素欠陥同士の相互作用、および素欠陥と結晶粒界等の周囲欠陥との相互作用に代表される塑性物理現象を、実験力学および計算力学の両面から解明した。各欠陥相互作用の中でも、加工硬化や強化の観点から転位と結晶粒界の力学的相互作用が最も重要であり、相互作用の程度を表す指数を提案し、双結晶マイクロピラーを用いたナノインデンテーションの実験と分子動力学シミュレーションから、その指数の適用性を含めた検証を行った。

研究成果の概要（英文）：Yielding of polycrystalline ductile materials can be realized by transfer of dislocation across a grain boundary (GB), or by incorporation between the residual GB dislocation and the dislocations nucleated in the near-field of GB due to the applied stress. These phenomena are determined by the crystallographic orientation and the multiaxial stress state around GB. In the present research, the interaction between dislocations and GB among several defects interactions has been investigated from nanoindentation using a micro-sized pillars consisting of two grains and one GB. Also molecular dynamics simulations revealed the physical dislocation reactions under a uniform compression and a nonuniform indentation stress state. These interactions can be summarized by using a boundary interaction condition proposed here.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	28,200,000	8,460,000	36,660,000
2009年度	23,200,000	6,960,000	30,160,000
2010年度	17,100,000	5,130,000	22,230,000
2011年度	10,400,000	3,120,000	13,520,000
2012年度	10,800,000	3,240,000	14,040,000
総計	89,700,000	26,910,000	116,610,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：機械工学・機械材料・材料力学

キーワード：塑性物理、欠陥間相互作用、ナノインデンテーション、分子動力学シミュレーション、最小エネルギー経路探索、粒界相互作用指数、マイクロピラー、マイクロ材料力学

1. 研究開始当初の背景

固体力学における非可逆な塑性変形は、欠陥の生成とその発展挙動につくる。従来から、結晶性材料の塑性変形を導く素欠陥である転位の運動学と、その集団化・統計平均化さ

れた結果としての現象論的塑性力学の発展が推し進められてきた。一方、転位の原子論的な描像が、分子動力学シミュレーション(MD)といった新たな計算力学手法の拡充により、明確な物理現象として記述されるよう

になった。従来では確率論的、現象論的な仮定の下で非線形な転位芯を取り扱ってきたが、MDでは原子間ポテンシャルの正当性を保証する範囲内で、その転位芯を自然な形で再現することができるようになった。しかしながら、従来のマクロ的塑性挙動の描像が、超多自由度で構成される原子構造体の変形場で完全に網羅できるかと言えば、それは不可能である。なぜなら、素欠陥の転位は単独で振る舞うことに意味はなく、転位間の相互作用、転位と面欠陥である結晶粒界あるいは表面・界面との相互作用等、不均質な周囲環境との相互作用の結果としてスケールの上位階層の変形場が実現される。単独の運動に加えて、複雑な周囲環境との相互作用をすべて決定論的に解明することは、天文学的な数値の巡り合わせに等しい。このような背景のもとで、マクロ場と原子集合体のマイクロ場を時空間にマッチングさせるマルチスケールモデリングの研究が世界的にも推し進められてきた。

本報告者は、これまでナノインデンテーションを用いた力学的階層性に関する研究を実施してきた。全体寸法がマクロな量をもつ従来の材料に対して、ナノスケールで押し込み負荷し、その塑性変形の初期段階の応答を調べた。そして、ナノ塑性という新たな分野を実験力学から展開し、数個の転位間相互作用を計算力学手法のMDにより結晶学的な論理の下で解明してきた。そして、素欠陥群の集団的振る舞いである押し込み荷重-押し込み変位に見られる変位バースト現象に着目し、塑性変形の初生を議論した。これまでは単結晶を対象に基本的な現象の解明に焦点を絞り、いわば数個の素欠陥同士の相互作用を明らかにしてきた。次の段階として、上述したように、その素欠陥と周囲欠陥との相互作用の解明が現在の固体力学における最先端課題であり、実用的なマルチスケールモデリングには不可欠な課題でもある。このような一連の背景から、転位を素欠陥に位置づけ、その素欠陥と周囲欠陥との相互作用をモデル化することで、従来のマクロな塑性挙動と関連付ける塑性物理学を構築する着想に至った。

2. 研究の目的

本研究では、固体材料の塑性変形の基礎メカニズムである転位を素欠陥とし、その素欠陥と素欠陥の相互作用、および素欠陥と結晶粒界や表面・界面といった周囲欠陥との相互作用に代表される**塑性物理**現象を実験力学および計算力学の両面から解明し、従来より体系化されてきたマクロな塑性現象と論理的に関連付けることにより、新たに塑性物理学という学理の創出を目的とするものである。

3. 研究の方法

粒界を挟んだ結晶粒の方位関係を後方散乱電子回折像(EBSP)による結晶方位解析を行い、粒内と粒界近傍の位置を明確に同定したナノインデンテーションを行う。従来の単結晶の研究より、その特性が明らかにされている変位バースト挙動を、いわば粒界と相互作用させる試行転位群として位置づけ、その変位バーストから引き出される特性を用いて、粒界の力学的役割について実験力学的に解明する。そして、材料内部で生じている欠陥群の相互作用を明らかにするため、次のような計算力学的アプローチにより、そのメカニズムを解明する。

- (1) MDによる素欠陥と粒界との相互作用のダイナミクス
- (2)最小エネルギー経路(MEP)探索シミュレーションによる相互作用のエネルギー論的評価
- (3)レベルセット法転位動力学シミュレーションによる内部応力場の評価

4. 研究成果

(1)転位と粒界のエネルギー論的相互作用の評価：

計算力学的アプローチ(2)の手法である最小エネルギー経路(MEP)探索シミュレーションを用いて、1個の刃状転位と $\Sigma 3$ 対称傾角粒界(双晶)との相互作用の活性化障壁を評価した。図1に示すように、双晶(TB)と転位が十分に離れた孤立状態を初期状態とし、それらを含む系全体にせん断応力を負荷して、刃状転位を運動させる。そして、意図的に双晶と会合させて、反応後の平衡状態を終状態とした。それらの状態間における反応経路を探索し、その反応経路に沿ったエネルギー変化を示したのが図2である。これからわかるように、この相互作用の場合には明らかな活性化障壁が存在し、その大きさは転位の単位長さあたり $0.116[\text{eV}]$ ほどあることがわかった。これは、同じ面心立方格子(fcc)材料中の刃状転位が運動するとき生じる、パイエルズポテンシャル・バリアーの10,000倍に相当するという新たな知見が得られた(5. 主な発表論文等[雑誌論文]の⑫)。通常の一般粒界よりも、より安定な(粒界エネルギーの小さな)双晶との相互作用の活性化障壁は著しく大きいことがわかる。この特性を活かしたのが、最近報告されたナノツイン(nano-twin)構造の材料である。この大きな活性化障壁を優先的に作動させるため、他の転位や周囲欠陥との相互作用を生じさせないように内部構造を制御することによって、通常が多結晶材料よりも10倍の降伏応力が得られている。このような計算力学的手法によ

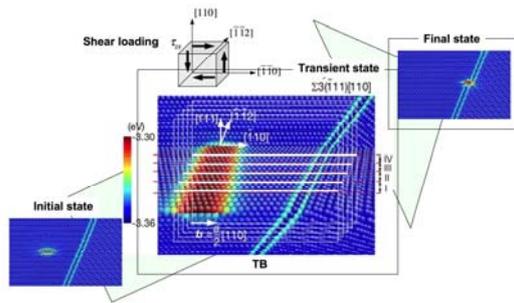


図1 NEB法によるMEP

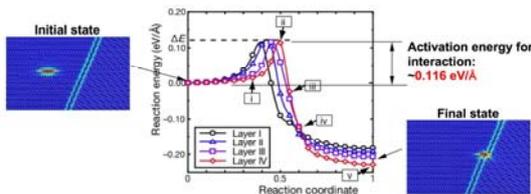


図2 活性化エネルギーの評価

り、転位と粒界の相互作用に関わる活性化障壁を見積もった例は極めてまれなケースであり、学術的なインパクトは大きい。

(2)複数の転位群と粒界の相互作用ダイナミクス：

インデンテーションにより意図的に発生させる転位群を試行欠陥群として定義し、分子動力学シミュレーション(MD)により、粒界の面欠陥との相互作用のダイナミクスを調べた。本解析は、実験では困難なメカニズムの解明に大きく寄与した。

<110>軸を回転軸とする対称傾角粒界と表面が垂直に会合するモデルを考える。これは、後述する(3)の実験の試料に対応する。ミスオリエンテーション角 70.52 deg.のΣ3対称傾角粒界(双晶)を対象に、粒界から 2 nm 離れた表面に剛体球圧子を押し込んだ時に生じる転位の反応を図3に示す。他の粒界の場合と比較して、このケースでは大きな変形抵抗を示した後、まず粒界近傍で転位が発生する(図3A)。そして、双晶面に沿って分解した転位 $a_0/6[\bar{1}12]$ が運動をする(図3C)。そして、もう一方の転位 $a_0/6[112]$ は不動化し、その内部応力場と押し込みの応力場により、粒内にせん断ループが発生する(図3D)。この時に、押し込み荷重-押し込み変位曲線において、大きな荷重低下が生じている。その後、せん断ループはショックレーの拡張転位に分解し、大きく張り出すことになる(図3F)。このメカニズムは、粒界の作る自己平衡した内部応力場に強く影響をうけることがわかる。例えば、図4に示したように、粒界エネルギーの大き

なΣ11[332]では、原子オーダーでの不均質構造が大きく、応力集中源として容易にせん断ループを射出することになる。このため、粒界が存在することによる変形抵抗の増加は、Σ3に比べると小さくなっている。

粒界との相互作用では、粒界の持つ内部応力場との相互作用が大きな影響を持ち、特に粒界真上ではなく、そこから 2 nm 程度離れたところで、その影響が大きく現れている。粒界エネルギーとの関係を調べると、必ずしも明確な相関はないことから、エネルギーレベルでの評価と、応力レベルでの評価が一致しないことがわかった(5. 主な発表論文等[雑誌論文]の⑧)。このように、直接的なダイナミクスをとらえた解析例は従来の研究では見あたらず、高い評価を得ている。

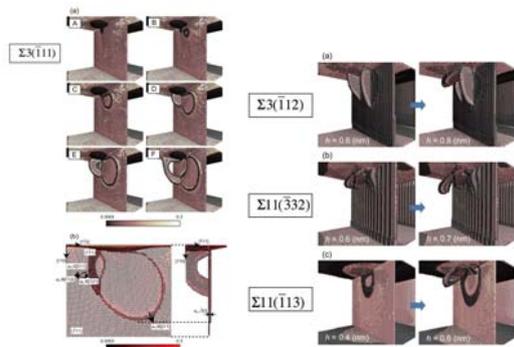


図3 転位の反応 図4 各粒界と転位の射出

表面と平行に位置する粒界と転位の直接的な相互作用をMDにより求めた例が図5と6である。図5はΣ3Aの粒界に対して垂直に一樣な圧縮応力を作用させ、Frank-Read源から発生した転位と粒界が相互作用した後、粒界から転位が反対側の粒に射出している。ここでは図示していないが、Σ3Bとの比較から提案した粒界相互作用指数を用いた評価が可能であることを確認している。さらに、インデンテーションの不均一な応力場での解析例が図6である。応力軸の傾きを考慮す

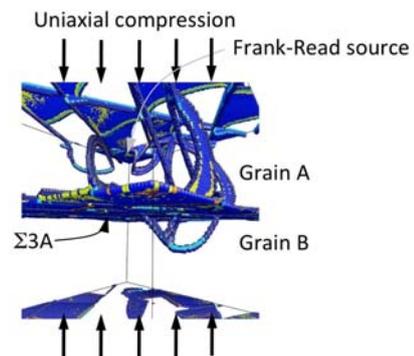


図5 一樣圧縮応力下での双結晶MDモデル

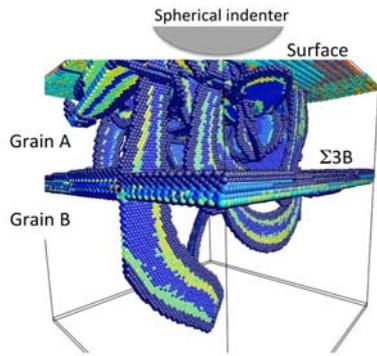


図6 押し込み変形下での双結晶 MD モデル

ることにより、同様に評価できることがわかった。いずれの場合にも、 $\Sigma 3B$ は粒界をまたぐ塑性変形が容易である一方、 $\Sigma 3A$ は粒界面で複雑な転位の反応を示した後、隣の粒へ転位が射出することがわかった(これらの成果は、現在投稿中である)。

(3) ナノインデンテーションによる粒界相互作用の実験的評価：

粒界近傍でのナノインデンテーションが精度よく実施できること、上述したMD解析との整合性が良いことから、直線的な会合面となる双晶を取り上げた。銅(Cu)を再結晶させることにより、双晶を優先的に作り出した試料を用いて、ナノインデンテーションを実施した。まず、無酸素銅の再結晶処理後の試料を用いて結晶方位分析を実施した結果、再結晶過程で得られた直線上の粒界は、すべて対称傾角粒界 $\Sigma 3A$ ($\langle 110 \rangle \{1\bar{1}1\}$)の最も安定な双晶であることがわかった。集束イオンビーム加工機(FIB)のエッチングにより、双晶の試料内部への傾き角を直接測定し、双晶を含む2結晶の完全な結晶方位を明らかにした。 $\Sigma 3A$ を介した比較的低指数の組み合わせを選択して、図7のように1粒界と2結晶粒を含む直径 $5\mu\text{m}$ 、高さ $15\mu\text{m}$ 程度のもマイクロピラーの製作に成功した。このピラーを用いて押し込み試験を行った。公称圧縮応力—公称ひずみ曲線を示したのが図8である。2結晶粒の方位の組み合わせにより特長的な応答が得られた。提案した粒界相互作用指数の高い組み合わせ(粒界をまたぐ塑性変形がより容易)をもつマイクロピラーでは、降伏とともに急激な変位バースト挙動を示した(図8(a)と図9参照)。一方、顕著な加工硬化を示す組み合わせもあった(図8(b)と図10参照)(これらの成果は、現在投稿中である)。

この手法を応用し、結晶学的及び力学的観点から、粒界と転位の相互作用を予測し、その特性に応じて選択のできる可能性を示した。そして、材料強化のマクロなガイドラインであるホールペッチ則をミクロな視点から解釈するための知見を与えた(5. 主な発表論

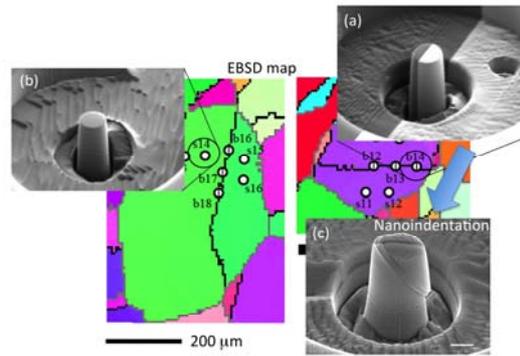
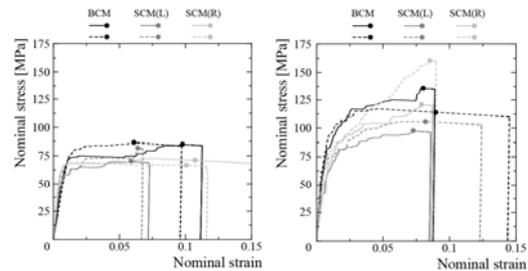


図7 マイクロピラーの作成とナノインデンテーションによる圧縮変形



(a)不安定降伏モデル (b)加工硬化モデル

図8 公称圧縮応力—公称ひずみ関係

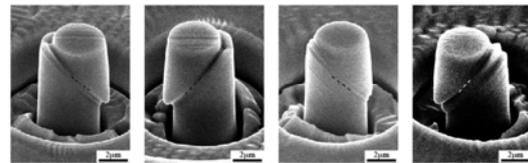


図9 不安定降伏モデルのすべり変形

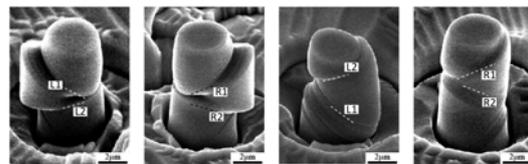


図10 加工硬化モデルのすべり変形

文等[雑誌論文]の①)。

(4) 塑性物理現象を理解するための欠陥力学に関する基礎学問の確立：

現象を理解するための基礎知識となる従来からの理論、そして従来より提案されているモデルを整理する目的で、「塑性の物理—素過程から理解する塑性力学—」を平成 23 年 3 月 31 日、森北出版(株)から出版した。連続体力学としての塑性力学と、弾性力学に立脚した転位力学、そして結晶学的な塑性論をまとめた本書籍は、当該分野の拡充に大きく貢献した(5. 主な発表論文等[図書]の①)。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 15 件)

- ① 渋谷陽二, 松中 大介, 垂水 竜一, ホールペッチ効果の塑性ひずみ依存性と温度依存性, 材料, 査読有, 61 巻, (2012), 724-729.
- ② J. Pan and Y. Shibutani, Formation of Prismatic Dislocation Loop around a Spherical Inclusion Using Level Set Dislocation Dynamics, J. Solid Mech. Eng., 査読有, Vol.6, (2012), 913-924.
- ③ A. Koyana and Y. Shibutani, Non-Destructive Observations of Internal Micro-Defects Using Scanning Electron-Induced Acoustic Microscope, J. Solid Mech. Eng., 査読有, Vol.6, (2012), 512-518.
- ④ J. Pan and Y. Shibutani, Internal Stress Field of Double Cross-slip using Level Set Dislocation Dynamics, J. Solid Mech. Eng., 査読有, Vol.6, (2012), 61-70.
- ⑤ T. Hirouchi, T. Tsuru and Y. Shibutani, Grain growth prediction with inclination dependence of <110> tile grain boundaries using multi-phase-field model with penalty for multiple junctions, Comp. Mat. Sci., 査読有, Vol.53, (2012), 474-482.
- ⑥ 廣内 智之, 都留 智仁, 渋谷 陽二, 高次 Multi-phase-field モデリングによる粒成長過程の予測, 日本機械学会論文集 A 編, 査読有, 77 巻, (2011), 1723-1734.
- ⑦ T. Tsuru, Y. Kaji and Y. Shibutani, Fundamental role of $\Sigma 3$ (-11) and $\Sigma 3$ (-112) grain boundaries in elastic response and slip transfer, J. Appl. Phys., 査読有, Vol.110, (2011), 073520.
- ⑧ T. Tsuru, Y. Kaji, D. Matsunaka and Y. Shibutani, Incipient plasticity of twin and stable/unstable grain boundaries during nanoindentation in copper, Phys. Rev. B, 査読有, Vol.82, (2010), 024101-1-6.
- ⑨ Y. Shibutani, J. Fujita and A. Koyama, Nondestructive Thermal Wave Detection of Internal Micro-defects using Scanning Electron-induced Acoustic Microscope, Proc. of SPIE, 査読無, Vol.7522, (2010), 752200O-1-7.
- ⑩ T. Tsuru, Y. Kaji, Y. Shibutani, Minimum Energy Motion and Core Structure of Pure Edge and Screw Dislocations in Aluminum, Journal of Computational Science and Technology, 査読有, Vol.4, (2010), 185-193.
- ⑪ T. Tsuru, Y. Shibutani and Y. Kaji, Nanoscale contact plasticity of crystalline metals: Experiment and analytical investigation via atomistic and discrete dislocation models, Acta Mat., 査読有, Vol.58, (2010), 3096-3102.
- ⑫ T. Tsuru, Y. Shibutani and Y. Kaji, Fundamental interaction process between pure dislocation and

energetically stable grain boundary, Phys. Rev. B, 査読有, Vol.79, (2009), 012104.

⑬ 都留 智仁, 渋谷 陽二, 三次元離散転位力学法と境界要素法のマルチスケール解析とインデンテーション問題への応用, 日本機械学会論文集 A 編, 査読有, 74 巻, (2008), 933-938.

⑭ T. Tsuru and Y. Shibutani, Dislocation Nucleation and Interaction under Nanoindentation in Single Crystalline Al and Cu: Molecular Dynamics Simulations, Journal of Computational Science and Technology, 査読有, Vol.2, (2008), 459-467.

⑮ T. Tsuru, Y. Shibutani, Theoretical Investigation of the Displacement Burst Observed in Nanoindentation by Collective Dislocation Loops Nucleation Model, J. Comp. Sci. & Tech., 査読有, Vol.2, (2008), 559-567.

[学会発表] (計 14 件)

① Y. Shibutani and A. Koyama, Non-Fourier thermo-elastic wave propagation for nondestructive observations, 3rd Asian Conference on Mechanics Functional Materials and Structures (ACMFMS), 2012-12, NewDelhi, India.

② Pan Jun, 渋谷 陽二, レベルセット転位動力学法を用いたブリズマティック転位ループのモデリング, 日本機械学会第 25 回計算力学講演会, 2012-10, 神戸ポートアイランド.

③ 渋谷 陽二, 廣内 智之, 都留 智仁, 転位—粒界相互作用指数を用いた粒界近接力学場の評価, 日本機械学会 M&M2012 材料力学カンファレンス, 2012-9, 愛媛大学.

④ Y. Shibutani, T. Tsuru and A. Nakano, Defects interaction conditions in near-field of grain boundaries, 23rd International Congress of Theoretical and Applied Mechanics (ICTAM), 2012-8, Beijing, China.

⑤ Y. Shibutani and A. Nakano, Dislocations and S3-Boundary Interaction by Nanoindentation, 2nd International Conference on Material Modelling (ICMM), 2011-9, Paris, France.

⑥ 大工 嘉弘, 松中 大介, 渋谷 陽二, ホールペッチ則の温度依存性と塑性ひずみ依存性, 日本機械学会関西支部第 86 期定時総会講演会, 2011-3, 京都工芸繊維大学.

⑦ 渋谷 陽二, 結晶性・非晶性のディフェクトダイナミクスシミュレーション(基調講演), 日本機械学会 2010 年度年次大会, 2010-9, 名古屋工業大学.

⑧ 廣内 智之, 都留 智仁, 渋谷 陽二, 傾角粒界特性を考慮した Multi-phase-field モデルによる粒成長シミュレーション, 日本機械学会第 23 回計算力学講演会, 2010-9, 北見工業大学.

⑨ Jun Pan, 渋谷 陽二, レベルセット転位動力学法による交差すべり挙動の解析, 日本機械学会第 23 回計算力学講演会, 2010-9, 北見工業大学.

⑩ 加納 明, 松中 大介, 渋谷 陽二, 第一原理計算

を用いた粒界と転位の相互作用に関するエネルギー論的検討, 日本機械学会第 23 回計算力学講演会, 2010-9, 北見工業大学.

⑪ Y. Shibutani, J. Fujita and A. Koyama, Nondestructive Thermal Wave Detection of Internal Micro-defects using Scanning Electron-induced Acoustic Microscope, 4th International Conference on Experimental Mechanics (ICEM), 2009-11, Holiday Inn Atrium Hotel, Singapore.

⑫ Y. Shibutani, M. Kosuge and T. Tsuru, Behaviors of Dislocations emitted near Grain Boundary under Nanoindentation, 1st International Conference on Material Modelling (ICMM), 2009-9, Dortmund, Germany.

⑬ Y. Shibutani and M. Kosuge, Heterogeneous Grain Boundary Effect using Displacement Burst of Nanoindentation (招待講演), 4th International Symposium on Designing, Processing and Properties of Advanced Engineering Materials (ISAEM), 2008-11, Noyori Conference Center, Nagoya Univ.

⑭ Y. Shibutani, and Y. Nakahama, Heterogeneous Grain Boundary Effect to Displacement Burst of Nanoindentation, 2nd International Conference on Heterogeneous Material Mechanics (ICHMM), 2008-6, International Conference Center, HuangShan, China,.

[図書] (計 1 件)

① 渋谷陽二, 森北出版, 塑性の物理-素過程から理解する塑性力学-, (2011), 259.

[その他]

ホームページ

<http://www-comec.mech.eng.osaka-u.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

渋谷 陽二 (SHIBUTANI YOJI)

大阪大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号 : 70206150

(2) 研究分担者

・都留 智仁 (TSURU TOMOHITO, 平成 21~24 年度)

独立行政法人日本原子力研究所開発機構・原子力基礎工学研究部門・研究員

研究者番号 : 80455295

・垂水 竜一 (TARUMI RYUICHI, 平成 20 年度のみ)

大阪大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号 : 30362643

・松中 大介 (MATSUNAKA DAISUKE, 平成 20 年

度のみ)

大阪大学・大学院工学研究科・助教

研究者番号 : 60403151

(3) 連携研究者

・垂水 竜一 (TARUMI RYUICHI, 平成 21~24 年度)

大阪大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号 : 30362643

・松中 大介 (MATSUNAKA DAISUKE, 平成 21~24 年度)

大阪大学・大学院工学研究科・助教

研究者番号 : 60403151

・廣内 智之 (HIROUCHI TOMOYUKI, 平成 24 年度)

大阪大学・特任研究員

(4) 研究協力者

・小菅 正裕 (KOSUGE MASAHIRO, 平成 20, 21 年度)

大阪大学・大学院博士前期課程学生

・PAN JUN (PAN JUN, 平成 20~24 年度)

大阪大学・大学院博士後期課程学生

・中野 明宏 (NAKANO AKIHIRO, 平成 22, 23 年度)

大阪大学・大学院博士前期課程学生

・廣内 智之 (HIROUCHI TOMOYUKI, 平成 23 年度)

大阪大学・大学院博士後期課程学生

・池田 健二郎 (IKEDA KENJIRO, 平成 24 年度)

大阪大学・大学院博士前期課程学生