

令和 5 年 6 月 7 日現在

機関番号：82108

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2020～2022

課題番号：20K05069

研究課題名(和文) Ti構造相変態の初期機構解明に向けた原子論的アプローチ

研究課題名(英文) An atomistic study of early stage mechanism of solid-solid phase transformation in Titanium

研究代表者

譯田 真人 (Wakeda, Masato)

国立研究開発法人物質・材料研究機構・構造材料研究拠点・主任研究員

研究者番号：00550203

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：本研究課題では、構造相変態の初期過程について、原子個々の運動を直接的に扱う分子動力学により、温度や圧力などの外部環境の影響とともに、材料組織の影響に関する知見を獲得した。また構造相変態を対象とした原子論解析の枠組み構築のため、構造相変態の初期機構解析において重要となる力とエネルギーの高精度評価手法、および有限温度・有限圧力下での各相のエネルギー的安定性を評価する手法にも取り組み、初期機構解明の基盤となる原子スケールの知見と計算手法に関する知見を得た。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本課題では構造相変態の初期過程を評価する枠組みの開発にも取り組んだ。構造相変態が重要となる現象として、金属材料だけでなく金属材料組織形成や材料変形などがあり、原子論解析による調査が十分におこなわれていない材料種や現象についても本解析枠組みの応用先になると考える。このことから本課題は、Ti材料にとどまらず広範な材料の組織形成と変形機構に対してアプローチ手法を提案する側面をもち、学術的意義や社会的意義を有する。

研究成果の概要(英文)：In this study, factors affecting the initial process of solid-solid phase transformation were investigated by using molecular dynamics techniques, which can directly treat individual atomic motion. I obtained knowledge on effects of external factors such as temperature and pressure as well as internal factors related to microstructures. I also worked on an atomistic simulation framework, such as a method for the accurate evaluation of forces and energies, which is useful for the quantitative analysis of the initial mechanism of solid-solid phase transformations. A method for evaluating the energetic stability of each phase under finite temperature and pressure was also worked on. Based on these studies, I obtained atomistic-scale knowledge and computational methods, which are useful for the elucidation of the initial mechanism of solid-solid phase transformation.

研究分野：計算材料力学

キーワード：Ti 相変態 分子動力学法

1. 研究開始当初の背景

金属材料の材料組織形成や形状記憶効果の発現，さらには材料強度に影響する変形機構のいずれにおいても，構造相変態は重要な素過程である．構造相変態の学術的，産業的な重要性からこれまで構造相変態に関して多くの実験，計算，理論研究が実施されてきた．構造相変態が重要となる材料として例えば Ti (チタン) がある．Ti 材料は周囲の温度と圧力に応じて HCP, BCC などの複数の結晶構造をとる．また熱および応力負荷により固相 - 固相間での相変態 (構造相変態) が生じることで複雑な材料組織を形成し，また形状記憶効果を発現する合金も存在する．構造相変態の初期過程においては，核形成とその後の核成長が生じていると考えられる．これまで材料欠陥 (粒界や添加元素など)，外部環境 (温度や応力など) が Ti の構造相変態に及ぼす影響について研究が行われてきた．また構造相変態を扱う数理モデルも提案されている．一方で構造相変態の初期機構 (核形成と成長過程) を実験や理論研究で直接的に観察，評価することは容易ではなく，初期過程の詳細な機構に関するさらなる知見獲得が求められていた．金属材料の構造相変態を理解しこれを制御するための知見を収集する研究において，核形成と成長プロセスの原子論解析は有効な手法である．しかしながら原子モデルにより初期過程を定量的に評価する試みはこれまであまり行われていない．

2. 研究の目的

本課題の目的は，構造相変態の初期過程の直接的な解明に向けて，原子個々の運動を直接的に扱う分子動力学計算により構造相変態の影響因子を評価するとともに，Ti 合金の構造相変態を対象とした原子論解析の基盤的枠組みを構築することである．電子論に基づく第一原理計算は極めて高精度であるが，計算コストが大きいことから核形成と成長過程を直接的に扱うことは困難であり，一様な相変態を対象として解析が行われてきた．一方，分子動力学計算は計算コストが小さいことから，多くの原子を含むモデルを用いることで粒界部などでの核形成・成長ダイナミクスを扱うことも可能であるが，計算精度は一般的に高いとはいえず定量的な評価や元素の影響の評価は容易ではない．このような原子論解析の技術的な制約に対して，以下のアプローチをとることで，計算精度を担保しつつ，第一原理計算では対象とすることができない時間・空間スケールの現象を扱うことができると考える．まず第一原理計算により配位空間上で構造相変態経路とその時のエネルギー情報を獲得する．相変態経路のエネルギー (および弾性ひずみ場) を精度よく再現する原子間相互作用モデルを作成し，これを用いた原子論解析により知見の収集を行う．本研究課題では，このように計算精度を確保しつつできるだけ大きな時間・空間スケールを対象とすることで構造相変態の初期機構理解につながる原子論計算の基盤の構築についても取り組む．

3. 研究の方法

本研究課題では主に 2 つの方法から研究を実施した．

- (1) 構造相変態機構の原子論的評価
 - (2) 構造相変態を扱う原子論解析手法の基盤構築
- 以下，各方法の詳細を記す．

(1) 構造相変態機構の原子論的評価

有限温度の分子動力学計算を実施し，結晶構造中に存在する別の相 (別の結晶構造) が成長，消滅する過程について，原子論計算の設定温度や相のサイズの影響を評価する．また固体結晶状態からの加熱，あるいは液体状態から冷却過程においてどのような相変態挙動が見られるかを原子スケールから調査する．さらには複数の結晶構造からなる多結晶構造モデルを作成し，昇温・冷却プロセス，また変形挙動解析を実施することで，Ti の構造相変態に対する初期原子構造，材料欠陥，温度，および応力などの影響を系統的に解析する．また Ti 単元系の有限温度分子動力学計算から構造相変態の初期過程で生じる原子変位を調査し，結晶構造モデルに対してこれを促進させる外部負荷を与えた場合の構造相変態挙動を分子動力学計算から調査する．以上の解析からナノスケールにおける構造相変態の基礎的なふるまいを獲得する．

(2) 構造相変態を扱う原子論解析手法の基盤構築

Ti の構造相変態を対象とした原子間相互作用ポテンシャル (原子と原子の間に作用する力とポテンシャルエネルギーを評価するモデル) について，原子論解析結果をもとにポテンシャルの高精度化に向けた要点を整理する．そのうえでポテンシャルモデルを並列分子動力学計算において使用することを想定し，できるだけ汎用的な分子動力学計算プログラムに適した枠組みでの構築を進める．構築の際には，高精度な電子論計算である第一原理計算で求めた多数の構造とポテンシャルエネルギーの関係性から多体間型のポテンシャル関数などのパラメータ探索を実施する．さらに Ti の構造相変態における原子スケールの力とエネルギーを適切に表現するために，第一原理計算データに基づく機械学習タイプの原子間相互作用モデルについても作成に取り組む．そのうえでこれらの原子間相互作用モデルを用いた場合のエネルギーなどの予測精度を調査する．また構造相変態の重要な因子である各結晶相のエネルギー的安定性を評価するため，有限温度・圧力下での自由エネルギーを評価する手法についてもその有効性の評価など解析に取り組む．

4. 研究成果

本研究課題では、Ti における構造相変態の初期過程を直接的に解明することを目指して、原子個々の運動を直接的に扱う分子動力学法により構造相変態の影響因子を評価した。また本研究課題では Ti 構造相変態の初期機構解明において基盤となる力場、エネルギー評価手法、原子スケール解析について種々の原子論計算を実施し、初期機構解明の基盤となる原子スケールの知見および計算手法に関する知見を得た。本課題で取り組んだ原子間相互作用モデル、相安定性のエネルギー的評価、相変態の原子スケール調査などの種々の原子論的アプローチ手法は、Ti のみならず構造相変態が重要となる他の材料・現象においても適用できると考えており、このことから本課題で実施した解析は学術的意義と重要性をもつ。以下、2 項目に分けて研究成果を説明する。

(1) 構造相変態機構の原子論的評価に関する取り組み

本課題では、Ti の構造相変態を解析する原子シミュレーション手法として、有限温度における原子個々の運動を直接扱うことができる分子動力学法を主として用いた。まず有限温度の分子動力学計算から、結晶構造中に人工的に導入した別の結晶相が成長、消滅する過程について、設定温度や初期結晶相サイズの影響を評価した。さらに固体結晶状態から加熱、あるいは液体状態から冷却することで、どのような相変態挙動が自発的に発現するかを系統的に調査した。また複数の結晶構造からなる多結晶構造モデルを作成し、昇温・冷却プロセスの解析、また変形挙動解析を実施することで、構造相変態に対する初期原子構造、材料欠陥、温度、および応力などの影響を系統的に解析した。構造相変態解析の一環として、構造相変態が容易に生じることが実験で確認されている別の合金系についても、多結晶構造原子モデルを作成し、有限温度での分子動力学計算による単軸引張・圧縮の変形解析から構造相変態挙動を調べた。これらの系統的な調査から、分子動力学計算で対象とできる時間・空間スケール内で発生する Ti および特定の合金系の構造相変態について、基礎的なふるまいに関する知見を獲得した。本研究で得られた成果の一部は国内・国際会議および国内研究会において発表した。また相変態そのものの理解を深めるために、2 元系合金を対象にして、高温液体状態から急冷することで、過冷却液体状態の中で自発的に生じる結晶核の形成過程について初期形成機構の詳細な原子論解析を実施し、新たな知見を獲得した。

(2) 構造相変態を扱う原子論解析基盤構築に関する取り組み

構造相変態を対象とした原子間相互作用モデルについて、上記(1)の構造相変態の原子論的評価から得られた知見をもとにポテンシャルの高精度化に向けた要点を整理した。そのうえでまず Ti の構造相変態を対象とした原子間相互作用ポテンシャルについて、第一原理計算で求めた複数の構造とポテンシャルエネルギーの関係性から、従来より広く用いられてきた多体間型のポテンシャル関数を用いて、第一原理計算結果を出来るだけ再現するようなポテンシャル関数のパラメータ探索を実施した。ここではポテンシャル関数のパラメータ数が多くないため、既存のパラメータ探索のツールを使用した。作成した原子間相互作用モデルを一般的な並列計算機上で動作する分子動力学計算において使用することを目指したことから、現在広く用いられている汎用分子動力学パッケージに適した枠組みでのポテンシャルモデルのパラメータ探索を実施した。さらに原子間相互作用モデルの高精度化を目指して、第一原理計算から得られた多数の構造とエネルギーの関係を使用して Ti の構造相変態における原子スケールの力とエネルギーを適切に表現する機械学習タイプの原子間相互作用モデルの作成に取り組んだ。そのうえで構築したポテンシャルモデルについて、これらを用いた場合のエネルギーや力の予測精度を調査し、構造相変態を対象とした原子間相互作用モデル構築に関する詳細な知見を得た。さらには構造相変態において、有限温度・圧力下での各結晶相のエネルギー的安定性を評価する自由エネルギー計算手法についても原子論的解析に取り組んだ。上記の高精度ポテンシャルの枠組みを用いて、並列化された汎用的な分子動力学プログラム上でこの自由エネルギー計算が実施できることを確認した。これらの計算手法は、構造相変態などの各結晶相の自由エネルギーの相対的な値が重要となる様々な材料中の現象に対して、高精度でエネルギー的安定性を評価することができる有効な手法になると考える。

本研究課題において構造相変態の初期過程(核形成と成長)を定量的に評価する枠組みの開発を目指した。すなわち本研究課題は、構造相変態の初期機構の影響因子評価とともに、材料開発に役立つ原子モデリング手法開発の側面をもつ。構造相変態の初期過程が重要となる現象として金属材料だけでも、形状記憶効果、相変態による材料組織形成、相変態による変形などがあり、本枠組みの応用先は多岐にわたると考える。すなわち従来は原子論解析による調査が十分におこなわれていない材料と現象について、新たに原子論による評価対象にできる可能性がある。この意味において本課題は Ti 材料にとどまらず広範な材料の組織形成と変形現象に対して新たなアプローチ手法を提案するものであり、本研究課題で取り組んだ手法を今後、他の材料や現象に対して適用していきたいと考える。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Wakeda Masato, Saida Junji, Ichitsubo Tetsu	4. 巻 -
2. 論文標題 Atomistic study on simultaneous achievement of partial crystallization and rejuvenated glassy structure in thermal process of metallic glasses	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Philosophical Magazine	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1080/14786435.2022.2048112	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計5件（うち招待講演 3件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 譚田 真人
2. 発表標題 転位の原子論計算に基づく金属材料の力学特性解析
3. 学会等名 日本鉄鋼協会 「高温材料の高強度化」研究会 第5 回研究会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 譚田 真人
2. 発表標題 金属材料における組織形成と変形機構の原子シミュレーション解析
3. 学会等名 日本鉄鋼協会 2020年度第5 回「不均一変形組織と力学特性」研究会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Masato Wakeda
2. 発表標題 Atomistic Evaluation of Strengthening Factors in Iron Alloys Based on Computational Interaction Analysis of Lattice Defects
3. 学会等名 2022 MRS Spring Meeting & Exhibit (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 譚田 真人
2. 発表標題 面欠陥と転位の電子・原子論解析に基づく強化機構の研究
3. 学会等名 日本金属学会 第171回講演大会（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 譚田 真人
2. 発表標題 結晶・アモルファス金属における微視的変形機構の原子論的解析
3. 学会等名 日本金属学会 2023年春期講演大会（招待講演）
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関