

令和 6 年 6 月 14 日現在

機関番号：14401

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2021～2023

課題番号：21H01210

研究課題名（和文）メゾテスティングを用いた非局所結晶塑性の物理

研究課題名（英文）Physics of Nonlocal Crystalline Plasticity using Meso-scaled testing

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

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,900,000円

研究成果の概要（和文）：結晶塑性構成式のパラメータ同定のため、単結晶の弾塑性特性をメゾテスティングにより評価した。シュミット因子最大の結晶粒の選択が必ずしも良いわけではなく、0.4以上でほぼ同じシュミット因子を持つ2つのすべり系を具備した結晶粒の選択により、良好な加工硬化曲線の得られることがわかった。また、長方形断面を持つ角柱の双結晶マイクロビーの圧縮試験から、明確な粒界を跨ぐすべりが新たに観察された。これらの実験結果を踏まえ、原子論的解析により多様な粒界と転位の欠陥相互作用、それを参照した双結晶の結晶塑性有限要素解析、そして物理的描像に対応させた非局所性を持つMicropolar弾塑性解析を行った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で得られた粒界を跨ぐすべりの知見は、世界的には数少ない観察事例になっている。加えて、その力学的な応答を精度よく取得し、従来の臨界分解せん断応力に加えて、粒界を跨ぐすべりの臨界応力が新たに取得できた。このことは、従来の強度の増加は延性の低下を導き、その逆の関係にもある金属材料のトレードオフを打開する貴重な知見になる。すなわち、加工硬化と伸びのバランスを制御するために、転位の堆積と粒界を跨ぐ塑性の活性化が重要な鍵になることが新たにわかった。また、原子論的特性をMicropolar体の付加自由度で表現することにより、トップダウン形式のマルチスケールモデリングの可能性が新たに示唆された。

研究成果の概要（英文）：This work is related to the grain boundary (GB) modeling by so-called mesoscale testing with micrometer-sized pillars and nanoindentation, and also atomic-scale and crystal plasticity simulations. Because the role of GB has two aspects; one is strength due to the dislocation pile-up and the other is enhancement of ductility due to the activation of slip transfer across GB. The former mesoscale testing gave us the guideline of selection grain for the parameter determination of crystal plasticity. And also the mechanical behavior of the slip across GB after yielding the slip inside the grain. Based on these experimental facts, the newly proposed crystal plasticity constitutive law with the smooth function of GB index suggests the difference of slip combination and also the newly constructed micropolar elastic-plastic constitutive law provided the relaxation of strain localization near the interface.

研究分野：固体力学

キーワード：粒界を跨ぐすべり メゾテスティング 結晶塑性構成式 Micropolar弾塑性 有限要素解析

1. 研究開始当初の背景

結晶性材料の引張試験片の代表寸法をマイクロメートル( $\mu\text{m}$ )からナノメートル( $\text{nm}$ )にダウンサイジングすると、材料の降伏点が増加することは近年よく知られた力学挙動における“サイズ効果”である(図1参照)。転位が主たる塑性変形の素過程である結晶性金属材料の場合、直径が十数 $\mu\text{m}$ 以上のマイクロピラー型試験片を用いた圧縮試験ではほぼマクロなバルク体と等価な特性を示し、それ以下になると降伏点が増加する。これは、ピラーの持つ体積が矮小化することで、転位等の材料欠陥の初期存在割合が極端に小さくなり、いわゆる欠陥の“枯渇状態”による理想強度への漸近を示すものである。このことは、十数 $\mu\text{m}$ 以下のサイズを持つ試験では、欠陥の存在によりマクロでは識別できない事象を試験片系全体の力学的応答の中で見い出せることを示唆しており、本研究ではこの試験方法の概念を“メゾテスト”と定義する。一方、 $1\mu\text{m}$ 以下のサブマイクロメートルになると、体積に対する表皮面積の割合が大きくなり、表面の面欠陥の存在が新たな欠陥生成サイトとして強度劣化を導くことになる(図中の逆S字予想曲線参照)。したがって、 $\mu\text{m}$ サイズでの材料特性情報データが材料の階層的(マルチスケールの)力学挙動の理解には極めて重要であることがわかる。

一方、この単結晶に結晶粒界を1つ導入した双結晶(図2参照)では転位の運動が大きく異なり、双結晶の結晶方位に応じて、粒界での転位の堆積(Hall-Petch効果)や容易なすべり変形が見られる<sup>(1)</sup>。このとき、粒界を含む双結晶の結晶学的なすべり系の選択については、これまで両結晶のせん断応力比を考慮したモデル(N値)、粒界面とすべり面の交線の幾何学的関係を考慮したモデル(M値)、さらに粒界での堆積効果と隣接する結晶粒内での転位の射出と転位間の結合効果を考慮したモデル(L値)等、長年に亘って議論されてきており<sup>(2)</sup>、粒界の力学的モデリングの根拠データを提供している。しかし、これらは結晶学的な観点から初期降伏にのみ適用され、かつ粒界近傍の転位の堆積による急峻なひずみ勾配等の力学的観点は考慮されない。さらに、マクロな多結晶体に漸近する過程において、単結晶体の特性や粒界特性が平均化される遷移メカニズムについても、結果として系全体の応力-ひずみ曲線が引張試験から得られるだけで学術的解明はなされていない。

現時点で明確に主張できることは、単結晶体ではシュミット則に基づく主すべり系の作動が初期降伏を導き、双結晶体ではシュミット則と粒界結晶方位に依存したすべり系の選択のメカニズムで初期降伏が生じる。ただし、その選択基準は、両結晶に生じる均一変形を仮定した力学的観点からの応力基準なのか、結晶学的な観点からのエネルギー論的基準なのかについてはわからないが、両者は理論的に等価であると予想している。多結晶体近似モデルとしてのテイラーモデルでは、独立な5個のすべり系が確定すれば、少なくとも変位の連続性を保証することができる。すなわち、面心立方格子(fcc)の場合、1結晶粒につき12個のすべり系で多くの組み合わせがあるにも関わらず、その程度のすべり系で多結晶体のマクロな変形が予測できることになる。塑性仕事を最小にする最適化問題としてすべり系が選択され、単結晶と多結晶の力学挙動の比としてテイラー因子(fcc材料では3.1, bcc材料では2.7, hcp材料では5~6と言われている)が報告されているが、その最適化プロセスは不明である。

(1) T. Hirouchi and Y. Shibutani, Mater. Trans., Vol. 55 (2014), pp. 52-57.

(2) Y. Shibutani, T. Hirouchi and T. Tsuru, J. Solid Mech. Mat. Eng., Vol. 7 (2013), pp. 571-584.

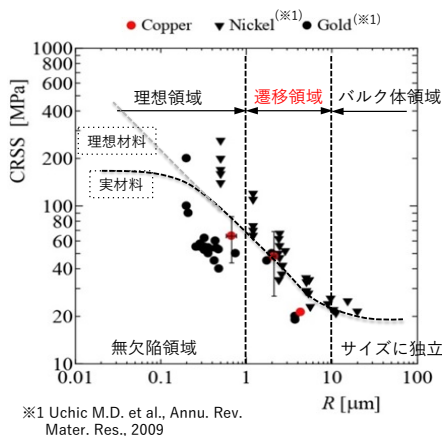


図1 降伏挙動のサイズ効果

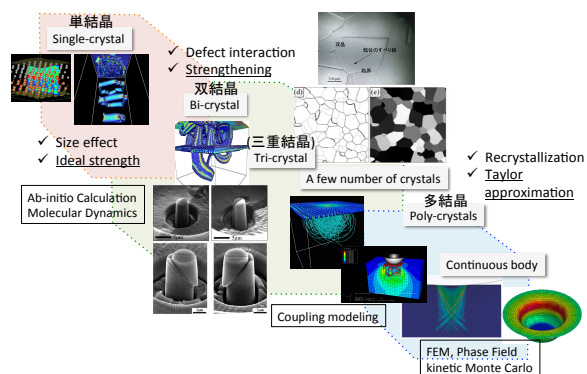


図2 単結晶から多結晶化へのプロセス

2. 研究の目的

本研究では、断面の代表寸法が数 $\mu\text{m}$ から十数 $\mu\text{m}$ 程度のマイクロピラーを用いたメゾテスト

イングにより単結晶、双結晶の弾塑性変形特性を実験的に取得し、その特性を取り入れた新たな結晶塑性構成関係式の提案を行う。従来の転位論に基づく物理的結晶塑性構成式に、変形に応じた粒界指数に基づく双結晶の塑性すべり速度、臨界せん断応力、幾何学的に必要な転位密度の発展則を導入し、粒界特性に基づく転位の堆積による加工硬化とともに、粒界を跨ぐ塑性すべりの挙動を明らかにする。そして、急峻なひずみ勾配とともに多様な塑性変形機構を表現可能なトップダウン形式のマイクロポラー非局所弾塑性に基づく物理の構築を目的とする。

### 3. 研究の方法

#### (1) メゾテストイング (図3 参照) :

主に2021年度から2022年度にかけて、初期欠陥のない単結晶・双結晶を対象に、特定の欠陥(結晶粒界)や特定の機構(固溶元素, 内部相構造等)の存在による基本特性の変化を精度よく取得した。下記の既存の装置を流用してメゾテストイングの手法を拡充し、それを活用した。なお、この課題の遂行には、研究協力者1名(中庭(2021年度博士前期課程2年生))が携わった。

- ①結晶方位を同定するための走査型電子顕微鏡(SEM)を用いた電子線後方散乱回折法(EBSD)による意図を持ったピラー取得位置の同定
- ②集束イオンビーム加工機(FIB)による円柱/角柱等のマイクロピラーの製作
- ③ナノインデンテーションを応用した単軸応力試験

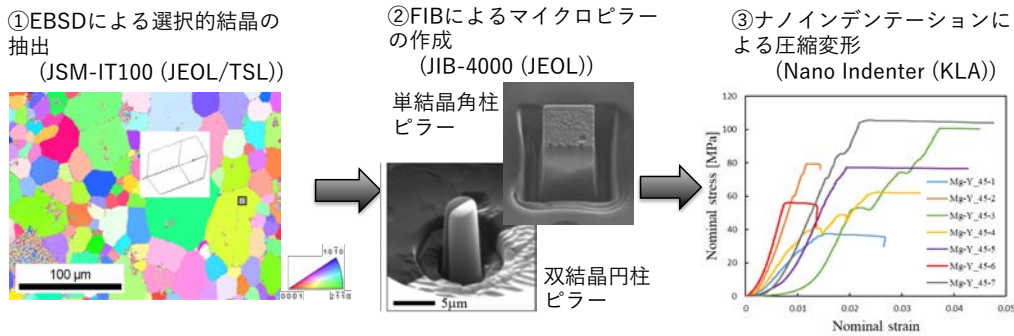


図3 メゾテストイングの流れ

#### (2) マイクロ場連続体に基づく結晶塑性のモデリング (図4 参照) :

(1)のデータを基に、主に2022年度以降に、①図3のメゾテストイングによる結晶方位特性データから、②有限要素モデルを作成し、③結晶粒径/試験片板厚寸法の比 $\alpha$  ( $\alpha > 1$ の場合、2次元的多結晶モデルになる)に応じた双結晶モデル、多結晶モデルを作成した。従来の転位論に基づく物理的結晶塑性構成式に、変形に応じた粒界指数に基づく双結晶の塑性すべり速度、臨界せん断応力、幾何学的に必要な転位密度の発展則を新たに導入した。そして、Micropolar 弾塑性構成式とともにその有限要素定式化を行い、粒界といった界面近傍のひずみの挙動が従来の弾塑性構成式に基づく結果との違いについて検討した。前者の物理的結晶塑性構成式に関わる解析コードは汎用有限要素法解析プログラム LS-DYNA を使い、後者の Micropolar 弾塑性構成式に基づく解析コードは自作のプログラムを新たに作成した。そして、これらの社会実装を目指して、大阪大学日本製鉄材料基礎協働研究所及び大阪大学 JSOL 次世代 CAE 共同研究講座との産学連携を通じて、実用性・汎用性を高めた解析システムの構築を行った。なお、研究協力者2名(Li(2021年度博士後期課程3年生)、松田(2021年度学部4年生))が本課題に携わった。

### 4. 研究成果

本研究で得られた主な成果は、以下のとおりである。

#### (1) メゾテストイングによる単結晶と双結晶の弾塑性力学特性

①数 $\mu\text{m}$ サイズの初期欠陥のない単結晶を対象に、特定の欠陥や特定の機構の存在による基本特性を精度よく取得するためのメゾテストイングを行い、結晶塑性構成式に含まれるパラメータ同定のため、単結晶の弾塑性特性を評価した。材料としては、面心立方格子(fcc)の再結晶させた無酸素銅 OFCU, 純アルミニウム A1050, アルミニウム合金 A3004, 体心立方格子(bcc)の軟磁性鋼板, 最密六方格子(hcp)のマグネシウム合金を用いた。fcc のアルミニウム材料の単結晶における応力-ひずみ曲線から結晶塑性の構成式を構成するパラメータのフィッティングを行った結果、シュミット因子最大の結晶粒の選択が必ずしも良いわけではなく、0.4以上でほぼ同じシュミット因子を持つ2つのすべり系を具備した結晶粒を選択することにより適度な加工硬化曲線が得られることがわかった。そして、それにフィットさせたパラメータを用いた結晶塑性有限要素解析により、他の結晶粒の特性にも比較的精度の高い推定ができることを確認した。



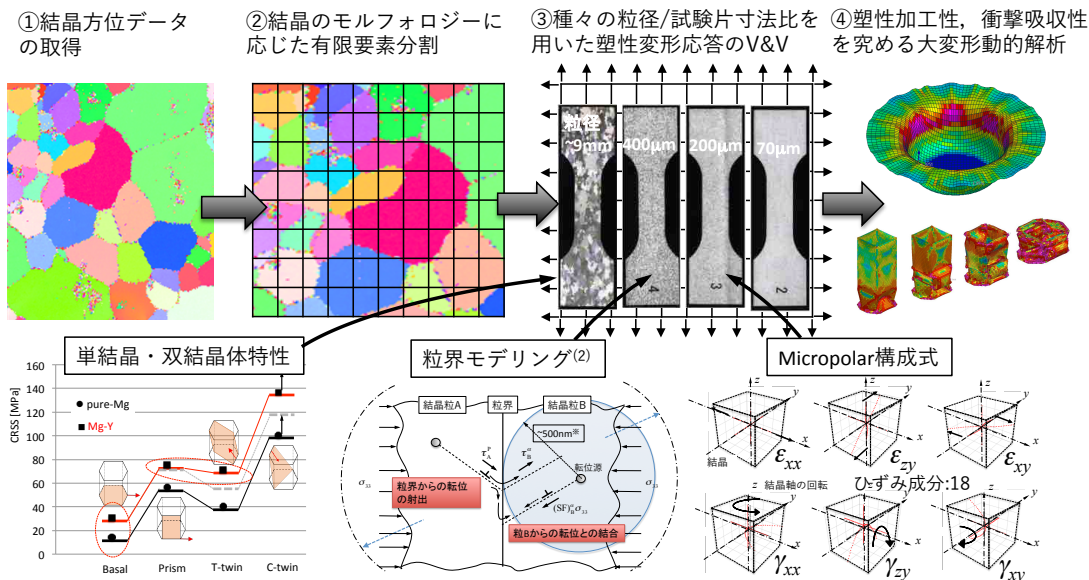


図4 非局所結晶塑性のモデリング

②従来の丸型，正方形断面角柱マイクロピラーに加えて，長方形断面を持つ角柱の双結晶マイクロピーを作成して，粒界を跨ぐ塑性の観察を実施した(図5参照)．その結果，シュミット因子で律される粒内すべりとともに，明確な粒界を跨ぐすべりが新たに観察された．この粒界を跨ぐ塑性すべりの観察結果はまだ限られた研究組織のみが取得しており，数少ない貴重な成果である．そして，粒界のすべりの臨界せん断応力(CRSS)は，単結晶のCRSSの約1.2倍程度であり，多結晶材料の変形初期の降伏時にはほとんど観察されず，変形中後期において転位が粒界に堆積する加工硬化の状況において発生するものと考えられる．

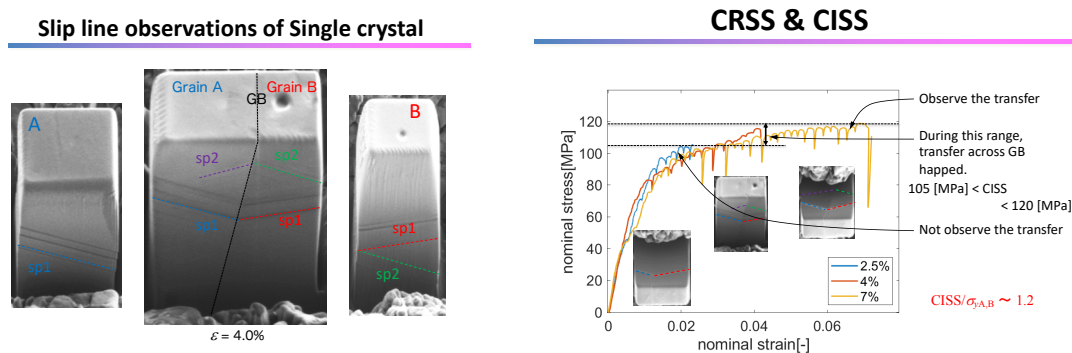


図5 長方形マイクロピラーを用いた粒界を跨ぐ塑性すべり特性

(2) 粒界モデリング

①結晶塑性のモデリング準備のために，分子動力学シミュレーション(MD)と活性化障壁探索法(NEB)の原子論的手法を用いて，多様な粒界(対称傾角粒界)に対する転位の相互作用を整理した(図6参照)．種々の粒界と転位の原子論的相互作用から，(i)転位の堆積，(ii)転位の粒界での吸収，(iii)反応後の分解や隣接結晶粒への射出といった素過程がわかり，そして，それぞれの活性化エネルギー，臨界せん断応力(CRSS)を求めた．双結晶の臨界応力は粒界エネルギーと強い相関があり，粒界エネルギーが大きいほど粒界を跨ぐ塑性すべりは生じやすいことがわかった．そして，その臨界ひずみは粒界を構成する単結晶の転位の射出に関わる一般化積層欠陥エネルギーと，粒界で不動化された転位による応力集中源から転位の粒界射出に関わる不安定積層欠陥エネルギーの差によって整理できることを明らかにした(図7参照)．

②①で得られた多様な粒界と転位の原子論的相互作用から種々の素過程がわかり，それを参照にした3つのシグマ( $\Sigma$ )値を持つ $\langle 112 \rangle$ 軸対応傾角粒界を対象にした双結晶の結晶塑性解析を行った(図8参照)．まずは，粒界モデルを考慮した転位論に基づく結晶塑性構成式モデルと，現象論的結晶塑性構成式モデルの2種類を用いた弾塑性有限要素解析を実施した．上述の3つの粒界に対して，粒界を跨ぐ塑性を考慮しない場合には両者の構成式はほぼ同じ結果になる一方，粒界指数に応じた滑らかな関数で近似された粒界モデルを導入すると，特定の粒界( $\Sigma 35A$ )ですべり系の変化が見られた(図9参照)．

### SUMMARY of CISS vs GB ENERGY

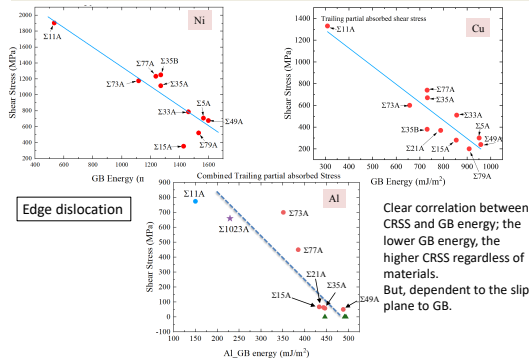


図6 粒界エネルギーと臨界応力の関係

### FURTHER CONSIDERATION for FCC

Width  $d$  of SF can be determined under loading by dislocation theory,

$$\frac{\sqrt{3}}{2} \varepsilon_{crit} \mu b_p + \gamma_{SF} - \frac{(2+\nu)\mu b_p^2}{8\pi(1-\nu)d} - F_{pinning} - F_{GB} = 0$$

Exchanging from  $\gamma_{SF}$  to  $(\gamma_{USF}-\gamma_{SF})$ , then from the above equation,

$$d = \frac{(2+\nu)b_p}{8\pi(1-\nu)} \left( \frac{\sqrt{3}}{2} \varepsilon_{crit} - \frac{\gamma_{USF}-\gamma_{SF}}{\mu b_p} \right)^{-1}$$

Finally, the critical strain of the defect interaction has the linear relation to  $(\gamma_{USF}-\gamma_{SF})/\mu b_p$

$$\varepsilon_{crit} = \frac{(2+\nu)b_p}{4\sqrt{3}\pi(1-\nu)d} + \frac{2}{\sqrt{3}} \frac{\gamma_{USF}-\gamma_{SF}}{\mu b_p} = \alpha + 1.15 \frac{\gamma_{USF}-\gamma_{SF}}{\mu b_p}$$

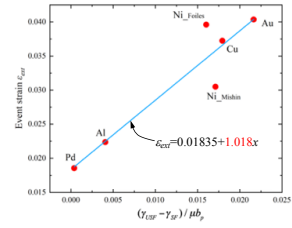


図7 臨界ひずみの積層欠陥エネルギーとの関係

### CRYSTAL PLASTICITY FEM

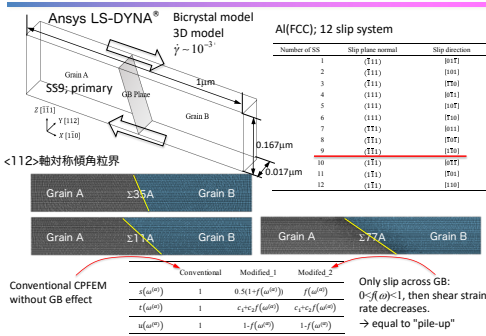


図8 双結晶の結晶塑性解析モデル

### RESULTS: Σ35A

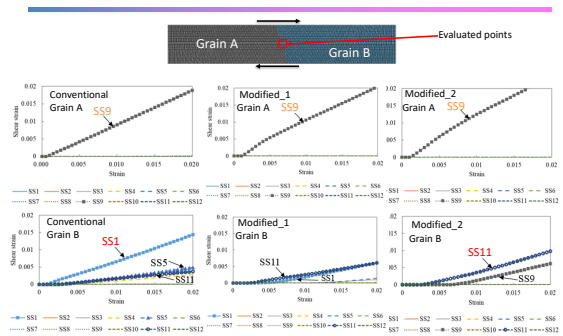


図9 粒界を跨ぐ2結晶のすべり系の変化

③非局所性の特有をもつ Micropolar 弾塑性解析の定式化と有限要素解析手法の開発を行った。従前に自作した2次元弾粘塑性有限要素解析プログラムを3次元化し、そして物体点に回転に関わる3つの新たな自由度を持つ Micropolar 構成式の有限要素定式化とその導入を行った。弾性特性の異なる2相角柱の単軸引張り(図10参照)とねじり(図11参照)を負荷し、塑性の局所化挙動を調査した。その結果、付加自由度は変形の局所化を緩和する方向に作用することが新たにわかった。このことは、粒界近傍における転位の堆積効果は加工硬化を導く一方、原子論的な粒界構造から粒界における大きな自由体積を Micropolar 体で表現される回転の自由度に相当すると考えると、この結果はひずみの集中を緩和する方向にも作用することを示唆することになる。したがって、回転に関わる付加自由度は、粒界での自由体積の存在による緩和や原子論的に見られる転位の粒界における吸収現象を連続体力学的に表現し得るものと解釈できる。

### UNIAXIAL TENSION OF TWO-PHASE BAR

$$\alpha_1 = 0.75, r_2 = 1 \quad E_2/E_1 = 1.2$$

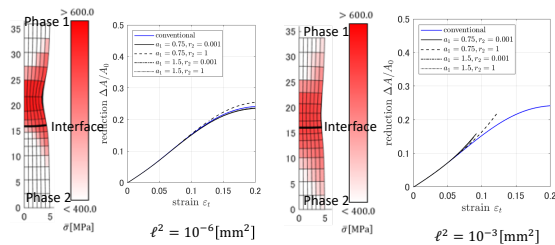


図10 Micropolar 弾塑性解析による単軸引張り

### TORSION OF TWO-PHASE BAR

$$\alpha_1 = 0.75, r_2 = 0.001, \ell^2 = 10^{-6} [\text{mm}^2] \quad E_2/E_1 = 1 (\text{uni-phase bar})$$

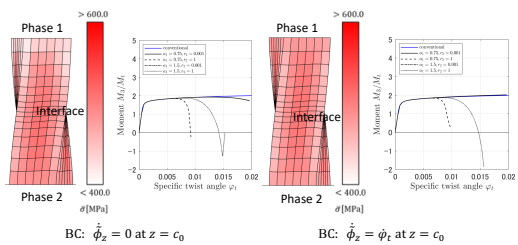


図11 Micropolar 弾塑性解析によるねじり

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Li Li, Liu Lijun, Shibutani Yoji	4. 巻 63
2. 論文標題 Defect Interactions between Screw Dislocations and Coherent Twin Boundaries in Several fcc Materials	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 MATERIALS TRANSACTIONS	6. 最初と最後の頁 829 ~ 834
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.2320/matertrans.MT-M2022017	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 渋谷陽二	4. 巻 425
2. 論文標題 ナノインデンテーションを活用した局所的な材料特性評価	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 月刊トライボロジー	6. 最初と最後の頁 32-37
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 無
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 -
1. 著者名 Li Li, Liu Lijun, Shibutani Yoji	4. 巻 149
2. 論文標題 Defect interaction summary between edge dislocations and <112>-axis symmetric tilt grain boundaries in copper on activation barriers and critical stresses	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 International Journal of Plasticity	6. 最初と最後の頁 103153 ~ 103153
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.ijplas.2021.103153	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 -
1. 著者名 Wang Xiuxia, Lu Siyu, Chen Biao, Junko Umeda, Shibutani Yoji, Kondoh Katsuyoshi, Shen Jianghua	4. 巻 832
2. 論文標題 Micro-compression of high oxygen doped single-crystal titanium along different orientations	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Materials Science and Engineering: A	6. 最初と最後の頁 142449 ~ 142449
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.msea.2021.142449	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 該当する

1. 著者名 Li Li, Liu Lijun, Shibutani Yoji	4. 巻 65
2. 論文標題 Atomistic Defect Interactions in Aluminum, Copper and Nickel: Edge Dislocations and <112>-Axis Symmetric Tilt Grain Boundaries	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 MATERIALS TRANSACTIONS	6. 最初と最後の頁 1~10
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2320/matertrans.MT-M2023113	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている(また、その予定である)	国際共著 -

[学会発表] 計10件(うち招待講演 1件/うち国際学会 2件)

1. 発表者名 天石 敏郎, 近藤 俊之, 渋谷 陽二, 越智 申久, 平島 禎
2. 発表標題 結晶塑性有限要素解析による銅ナノ多結晶薄膜の塑性変形に及ぼす膜厚と粒界の影響
3. 学会等名 日本機械学会第36回計算力学講演会(CMD2023)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 越智 申久, 天石 敏郎, 平島 禎, 渋谷 陽二
2. 発表標題 マイクロピラー試験によるアルミニウム系金属の選択的単結晶力学特性と結晶塑性構成式パラメータ同定のための適切性
3. 学会等名 日本機械学会 M&M2023 材料力学カンファレンス
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Nobuhisa OCHI, Toshiro AMAISHI, Tei HIRASHIMA, and Yoji SHIBUTANI
2. 発表標題 Fundamental Elastic-plastic Behavior using Single Crystalline Micro-pillar Testing of Aluminum Alloy for Determination of Constitutive Parameters of Crystal Plasticity
3. 学会等名 ATEM-iDICs '23, JSME-MMD & iDICs (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 松田 匠弥, 渋谷 陽二
2. 発表標題 Micropolar 弾粘塑性有限要素解析による界面近傍の塑性変形の局所化
3. 学会等名 日本機械学会関西支部第 99 期定時総会講演会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 西川 幸次郎, 松田 匠弥, 渋谷 陽二, 松中 大介
2. 発表標題 メゾスケールによる長方形双結晶マイクロピラーを用いた粒界をまたぐすべりの観察
3. 学会等名 日本機械学会関西学生会 2023 年度学生員卒業研究発表講演会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 桐谷 菜々, 渋谷 陽二, 田中 展
2. 発表標題 Micro連続体による面心体心骨組構造体の均質化弾性特性
3. 学会等名 日本機械学会関西学生会 2023 年度学生員卒業研究発表講演会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 Li Li , Lijun Liu and Yoji Shibutani
2. 発表標題 Activation barrier and critical stress of interactions between screw and edge dislocation with grain boundary in Cu
3. 学会等名 15th World Congress on Computational Mechanics (WCCM-XV) & 8th Asian Pacific Congress on Computational Mechanics (APCOM-VIII) (国際学会)
4. 発表年 2022年



1. 発表者名 天石 敏郎, 越智 申久, 平島 禎, 渋谷 陽二
2. 発表標題 結晶粒界を跨ぐ塑性を考慮した構成式による結晶塑性有限要素解析
3. 学会等名 日本機械学会第35回計算力学講演会 (CMD2022)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 越智 申久, 天石 敏郎, 平島 禎, 渋谷 陽二
2. 発表標題 純アルミニウムのマイクロピラー試験による結晶塑性構成式パラメータの同定
3. 学会等名 日本機械学会材料力学カンファレンス (M&M2022)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 渋谷陽二
2. 発表標題 トップダウン形式のマルチスケールモデリングのためのマイクロ連続体力学モデル-Micromorphic体とMicropolar体-
3. 学会等名 日本材料学会第6回マルチスケール材料力学シンポジウム (招待講演)
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 渋谷陽二 (分担執筆)	4. 発行年 2024年
2. 出版社 シーエムシー出版	5. 総ページ数 400
3. 書名 シリコンと化合物半導体の 超精密・微細加工プロセス技術	

〔産業財産権〕

〔その他〕

大阪大学大学院工学研究科機械工学専攻 渋谷研究室  
<http://www-comec.mech.eng.osaka-u.ac.jp/index.html>

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
研究協力者	李 力  (Li Li)		
研究協力者	松田 匠弥  (Matsuda Takumi)		
研究協力者	中庭 大  (Nakaniwa Dai)		

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		
スペイン	IMDEA Materials Institute		