

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 17 日現在

機関番号：13301

研究種目：新学術領域研究(研究領域提案型)

研究期間：2010～2014

課題番号：22102007

研究課題名(和文)内部欠陥構造発展の大規模計算によるバルクナノメタルの力学特性解析

研究課題名(英文)Analysis of mechanical properties of bulk nanostructured metals by large-scale computing on the defects evolution

研究代表者

下川 智嗣 (SHIMOKAWA, Tomotsugu)

金沢大学・機械工学系・准教授

研究者番号：40361977

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 75,700,000円

研究成果の概要(和文)：バルクナノメタル(結晶粒径がサブミクロン以下の金属材料)は、通常の粗大粒材料とは異なる力学特性を示すことが知られている。そこで、バルクナノメタル中の複雑な格子欠陥の発展を、大規模な分子動力学計算と結晶塑性理論を用いて表現し、以下の現象について検討を行った。粒界が持つ固有の転位源能力とその静水圧依存性を検討し、バルクナノメタルの塑性変形能力を検討した。転位と粒界の相互作用が及ぼす裂先端力学場に対する影響の粒径依存性を調査し、バルクナノメタルの破壊特性を検討した。内部欠陥構造の生成と消滅に基づく塑性変形伝ばプロセスの粒径依存性を調査し、バルクナノメタルの強度-延性特性を検討した。

研究成果の概要(英文)：In bulk nanostructured metals, the volume fraction of grain boundary and interface (plane defects) rapidly increases. Thus, it is very important to investigate the development of lattice defects through grain boundaries, which is closely related with the anomalous mechanical characteristics of BNMs. In this study, the development of complicated interior lattice defects in BNMs was expressed by the large-scale calculation by the atomistic model which can directly express atomic structure of grain boundary (molecular dynamics) and the continuum modeling considering the effect of grain boundaries (crystal plasticity theory), and we investigated the grain size dependence of the following phenomena: (1) dislocation emissions from grain boundaries, (2) the crack tip plasticity based on the interaction between dislocations and grain boundaries, and (3) the propagation mechanism of the plastic deformation based on the formation and dissipation of lattice defects.

研究分野：計算材料力学

キーワード：計算力学 力学特性 ナノ材料 粒界 原子シミュレーション 結晶塑性解析 寸法効果 転位

1. 研究開始当初の背景

結晶粒径がサブミクロン以下の金属材料(バルクナノメタル)は、通常の粗大粒材料とは異なる力学特性を示すことが実験的に多数報告されている。例えば、強ひずみ加工法により作製したバルクナノ極低炭素鋼のぜい性延性遷移温度は粗大粒材に比べて減少することや、バルクナノアルミニウムにおいて通常材では生じない降伏点降下の発生が報告されている。バルクナノメタルでは、単位体積当たりの粒界の割合が急激に増加することから、粒界を介した格子欠陥の発展が通常とは異なる力学特性を引き起こす要因として考えられる。そのため、これらの力学特性の発現メカニズムを、従来の粗大粒材で構築された理論体系の延長線上で理解することは容易ではない。そこで、粒界が積極的に関与した内部格子欠陥の発展を表現できる力学モデルを用いた計算機シミュレーションが、バルクナノメタルの力学特性を理解する有力な道具として期待できる。

バルクナノメタルで重要な役割を担う粒界については、1970年代から原子シミュレーションを用いて様々な構造やその拡散特性に対する研究が盛んに行われるようになってきている。近年では計算機能力の発展に伴い、粒界の転位源能力に対する研究に展開している。これまでに、研究代表者の下川は、上記の研究をさらに発展させ、粒界近傍に転位源や破壊の起点となるき裂を配置することによって、き裂から発生して粒界に進入した転位の背応力によりき裂先端力学場が遮へいされ、さらに粒界に局所的な応力集中場が形成することで、転位源がき裂から粒界へ遷移する現象を見出している。この遷移現象はこれまでに報告されたことがなく、ぜい性延性遷移温度の低温化に必要とされる可動転位密度の急激な上昇を示唆するメカニズムの有力な候補として期待できる。また転位運動の障害物として粒界の影響を考慮する従来のマルチスケール結晶塑性モデルに対して、研究分担者の青柳は、粒界の転位生成サイトとしての機能を新たに硬化則に組み込むことで、バルクナノメタルの降伏点降下現象を再現できる可能性を見出している。

以上のような研究代表者と分担者による異なる空間解像度における先駆的な計算機シミュレーションによって得られた知見からも、バルクナノメタルの特有な力学特性を理解するためには、粒界を介した格子欠陥の発展を詳細に追跡することが重要であるといえる。しかしながら、バルクナノメタルの特徴的な空間スケールは、ボトムアップ的原子モデルの最大スケールとトップダウン的連続体モデルの最小スケールの狭間にあることが推測される。そのため、バルクナノメタル特有の力学特性を定量的に評価し、その発現メカニズムを解明するためには、従来の手法では取り扱うことのできない空間自由度を表現する新たな力学モデルの開発が必

要不可欠である。

2. 研究の目的

ミクロ-マクロの視点に基づく様々な大規模計算機シミュレーションを実行し、粒界を介する格子欠陥の発展に対する粒径依存性に注目してバルクナノメタル特有の力学特性の発現メカニズムを明らかにすることを最終目的とする。そのために、バルクナノメタルの特徴的な空間スケールを表現できる新しい力学モデルを構築する。本モデルに基づき、以下に示す事項に分類して、バルクナノメタルの力学特性を明らかにする。【1】粒界が持つ固有の転位源能力とその粒径依存性を明らかにし、バルクナノメタルの塑性変形能力を解明する。【2】転位-粒界の相互作用が及ぼすき裂先端力学場に対する影響の粒径依存性を調査し、バルクナノメタルの破壊じん性特性を解明する。【3】内部欠陥構造の生成と消滅に基づく塑性変形伝ばプロセスの粒径依存性を明らかにし、バルクナノメタルの強度-延性特性を解明する。

3. 研究の方法

原子レベル情報を反映したマルチスケール結晶塑性モデルを開発するために、原子モデルを用いて、欠陥構造遷移現象に関する新しい欠陥理論体系の構築を行い、結晶塑性解析を用いて、粒界の影響を考慮した新しい結晶塑性論の構築を行う。とを融合することで、原子レベルの粒界特性を反映したマルチスケール結晶塑性論を構築する。最終的には開発した新しい結晶塑性理論を用いて、バルクナノメタルの力学特性発現メカニズムの解明を行う。

4. 研究成果

(1)平成 22 年度

原子モデルにより得られた<112>傾角粒界構造に対して DSC 格子を用いてその粒界に含まれる粒界転位を見出し、粒界転位源能力に対して粒界転位の成分が強く関与していることを明らかにした(図1)。

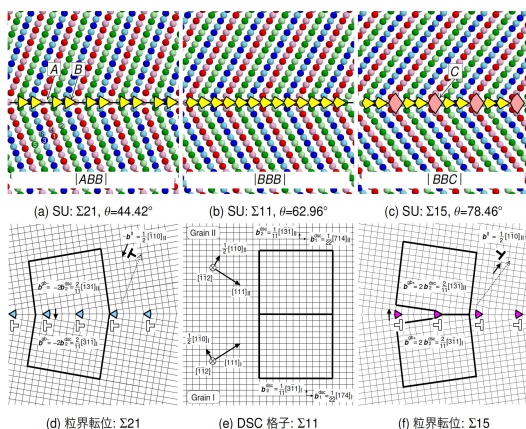


図1 Σ15, Σ□1, Σ21の粒界構造

破壊じん性値に対する粒界の役割を検討するために、き裂近傍に粒界を含む解析モデ

ルに対して分子動力学シミュレーションを実施し、得られる結果と転位論や遮蔽理論を用いて多角的に解析し、粒界から転位が放出する現象と、それに伴う粒界構造の遷移現象が結晶粒微細化に伴う破壊じん性値の向上を説明できる可能性を示した。

粒径が小さくなるほど粒界会合部の領域も増加するため、粒界会合部近傍の塑性現象を分子動力学シミュレーションにより検討を始めた。低温において粒界すべりは粒界転位のすべり運動により生じることを確認し、それらの転位が粒界会合部に蓄積することで、応力集中を形成し、粒界会合部から転位が放出することを確認した。このとき、粒界会合部の自由体積が転位放出能力に強く関連していることを確認した。

結晶粒径がサブミクロン化に伴い初期降伏応力は増加するが延性が低下することが確認されているが、そのメカニズムは明らかになっていない。そこで転位源としての粒界の役割を考慮し、転位密度が極めて低い結晶粒において流れ応力が増加することを表現できる臨界分解せん断応力モデルを構築し、FEM 解析を実行し粒径に依存した変形挙動の違いを検討した(図2)。

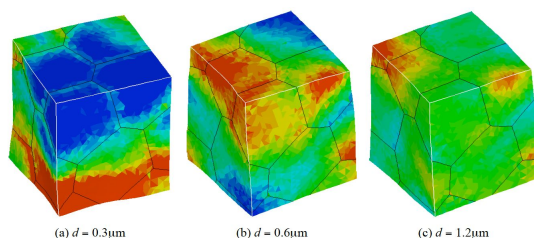


図2 相当塑性ひずみ分布

(2)平成 23 年度

最安定構造の粒界のみならず、準安定構造の粒界転位源能力や余分な格子転位を含む粒界の転位ピンニング効果について検討し、準安定構造は最安定構造に比べて転位源能力が高いことを示した。また、粒界転位源能力の静水圧依存性を検討した。

バルクナノメタルの破壊現象を理解するために、粒界き裂の破壊現象を分子動力学シミュレーションにより解析を行い、粒界き裂の破壊現象を検討した。また、粒界型応力腐食割れを表現する結晶塑性モデルを用いて、結晶塑性有限要素法(FEM)解析および酸素反応-拡散有限差分法(FDM)解析を連成して行い、結晶粒径に依存した粒界型応力腐食割れ挙動について検討した。

結晶粒サイズと転位の自己エネルギーの関係性を調べるために、転位の応力場に対して、その近傍に存在する粒界の影響を準連続体法を用いて検討した。

(3)平成 24 年度

パイルアップモデルに対して粒内転位源

と粒界転位源の寸法・構造依存性を考慮し、実験で報告されている強度と粒径の関係を表現できるモデル化を行った。またそこでは転位が粒界を通過する抵抗が粒界方位差と共に大きくなる仮定を用いるが、その定量的な評価と詳細なメカニズムを原子シミュレーションにより確認した。結果として粒界方位差のみならず粒界転位構造と格子転位構造の関係が転位が粒界を通過する現象には重要であることが理解できた。

粒内に Frank-Read 源を配置したサブミクロン粒で構成される多結晶モデルの変形解析を大規模原子シミュレーションを用いて実施し、粒内転位源、粒界転位源から転位が放出する現象と粒界を転位が通過する現象を調査した。結果として、それぞれの現象を生じるために必要な応力の大小関係が、転位源の長さや粒界構造に強く影響を受けることを確認し、バルクナノメタルの強度を律速するメカニズムが内部構造に応じて変化することを原子モデルで表現できた。

超微細粒材の強度は静水圧依存性を示すことが報告されているが、この現象を理解するために、粒界から転位が放出される現象が静水圧依存性を示すと仮定した。まず、この現象を確認するために、分子動力学シミュレーションにより様々な外力負荷下において粒界から転位を放出させ、そのときの起動するすべり面に作用する垂直応力が、粒界から転位を放出するために必要な臨界分解せん断応力に強く影響を与えていることを確認した。この結果を粒界転位源能力を考慮した結晶塑性理論に適用し、結晶粒が小さいほど強度の静水圧依存性を示せることが確認できた。また、ナノインデンテーションにより粒界の特性を反映した力学応答を獲得し、これらの情報を反映させた結晶塑性モデルの構築も行った。

粒界き裂近傍の粒界から転位が放出する現象と破壊じん性の関係を原子シミュレーションにより検討し、さらにこの現象を破壊力学の枠組で表現できるように理論を構築した。

微小サイズ fcc 結晶モデルの引張変形シミュレーションを分子動力学法を用いて行い、間欠的な塑性変形挙動を観察し、その統計的性質について調査を行った。応力降下量の統計分布を求めた結果、べき分布を示しており、塑性変形過程における応力降下亮に特徴的なスケールが存在しないことを確認した(スケール不変性)。この性質は、転位の生成・移動の繰り返しによって粒内・粒界に蓄積した欠陥が転位運動の障害物や新たな転位生成の起点となっていることに起因すると考えられる。これらの挙動の温度・サイズ・ひずみ速度依存性や粒内・粒界形状との関係を調べていき、スケール不変性の成立範囲を明らかにしていく新しい試みを開始した。

(4)平成 25 年度

Frank-Read 源による転位の増殖過程を原子モデルにより表現した．臨界張り出し形状は、線張力モデルと同様に楕円形状となった．また、張り出し間隔を L としたとき、 $L=4\text{nm}$ という微小 FR 源においても臨界せん断応力は、 $L\ln L^{-1}$ で表現できた (図 3)．また、粒内転位源と粒界転位源の臨界せん断応力について、その非すべり応力依存性について比較した．粒界から転位が放出する現象の方が、強い非すべり応力依存性を示した．この現象は、すべり面間距離の変化に注目することで整理できることを見出した．

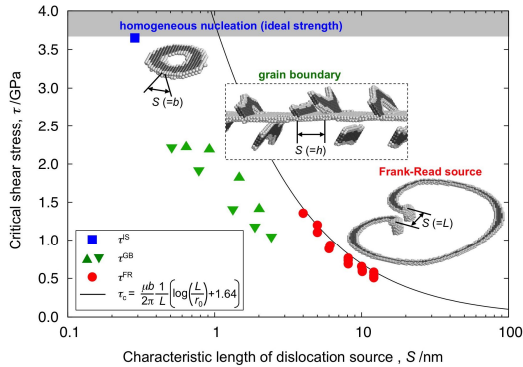


図 3 粒内・粒界転位源の起動応力

これまででは傾角粒界に注目していたが、ねじり粒界のエネルギーと構造の関係の検討を開始した．

大規模原子シミュレーションにより、BNM に対する粒内転位源の運動と粒界での塑性伝播過程の機械特性に対する影響について検討を行った．最初の降伏以降の塑性変形は、粒界を介した転位の移動によるすべり伝播に対する抵抗応力 τ^{TM} に大きく影響され、粒界構造によって変形メカニズムが異なることが示唆された．その結果、粒内転位の運動の臨界応力 τ^{FR} とすべり伝播に必要な抵抗 τ^{TM} の間の関係が、BNM の機械特性に対する特異なサイズ依存性に密接に関係することを明らかにした．また、三次元多結晶モデルを用いた引張りシミュレーションにより、転位密度が初期降伏応力に大きく影響することがわかった．そして、粒内転位の方位による偏りが粒毎の Schmid 因子を低下させ、不均質性を示す要因となり降伏点降下などの BNM 特有の機械特性に大きく影響することを明らかにした (図 4)．

原子シミュレーションより、粒界に侵入した転位の再放出現象に対する焼鈍処理の影響を検討した．焼鈍すると粒界の転位ピン止め効果が高くなることを確認した．これは焼鈍により粒界に侵入した転位のコア構造が変化するため (コアの分解) であることがわかった．

金属における間欠的な塑性変形を調べるために、Cu, Ni, Al 金属の単結晶モデルの引張

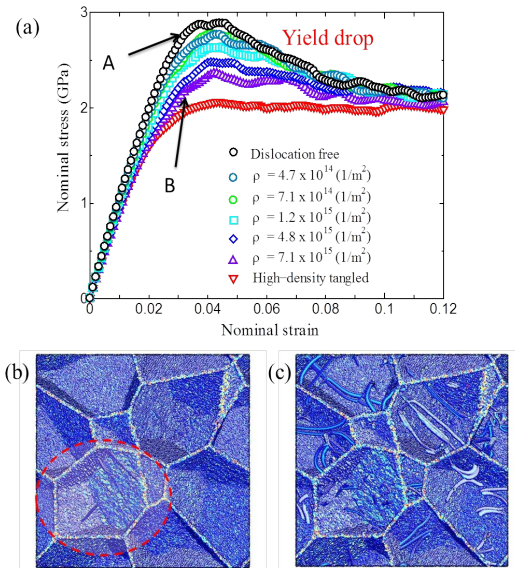


図 4 転位密度と強度の関係

シミュレーションを実行し、べき乗則をとまなう間欠的な塑性変形現象を再現した．Cu および Ni では、Al よりも大きなべき指数がえられた．原子スケールでの観察から、Cu および Ni では転位雪崩運動が観察されたが、対称的に、Al では結晶内に自己形成された欠陥構造クラスターに転位がトラップ/リリースされる挙動が見られた．

転位源の情報を考慮した結晶塑性モデルを用いた FEM 解析を ARB 加工によって創製された超微細結晶粒金属を想定して行い、結晶方位や粒形状が降伏挙動に与える影響について検討した．結晶方位および粒形状は超微細結晶粒材料の降伏挙動 (上降伏点, 下降伏点) に影響を与え、また、加工硬化やマイクロバンド形成にも影響を与えることを示した．

引張り予ひずみを与えた超微細粒金属材料 (UFGM) に対して微小押込み試験と結晶塑性有限要素解析を行い、引張り予ひずみによる組織変化が最大押込み深さに与える影響を評価した．その結果、UFGM 材は初期転位密度が大きいので、微小押込み試験における最大押込み深さが小さくなると考えられる．また、UFGM 材は引張り予ひずみが小さくても転位密度が飽和してしまい、最大押込み深さの変化が生じなくなると考えられる．

(5)平成 26 年度

$\Sigma 11$ 粒界, $\Sigma 15$ 粒界, $\Sigma 59$ 粒界という転位源能力の異なる 3 種類の粒界を含むアルミニウムの多層膜モデルに対して原子シミュレーションにより引張解析を行ない、ナノ構造体における加工硬化現象について検討した．その結果、転位源能力の高い $\Sigma 15$ 粒界と $\Sigma 59$ 粒界から転位を放出し、転位源能力の低い $\Sigma 11$ 粒界に構造遷移することで、粒界転位源が硬化し、その現象が局所変形を抑制するこ

とを確認した．このように「粒界転位源硬化現象」が，ナノ構造体の加工硬化に影響を与える可能性を示した．

有効な転位源として機能する粒界に存在する界面亀裂近傍の塑性現象を，線形破壊力学理論と原子シミュレーションにより調査した．亀裂先端前方の粒界から転位が放出する現象をモデル化し，その臨界応力拡大係数を導入した．これにより，界面亀裂近傍の最初の塑性現象を定量的に見積もる事が可能となった．粒界よりも亀裂先端からの転位放出が生じると予測される場合において，原子モデルでは，亀裂先端からの転位放出に伴い粒界からも転位が放出され，亀裂先端に微細組織が新たに形成された．この微細組織により亀裂先端からの転位放出は抑制された．一方で，粒界から転位が放出しやすい場合，転位放出後に粒界に回位が形成され，亀裂先端の力学場は回位により遮蔽されることが確認できた．つまり，界面破壊じん性値は，粒界エネルギーのみではなく，粒界の構造やその転位源能力にも強く影響を受けることが理解できた．

大規模原子シミュレーションを用いて，BNM が示す降伏点降下，Bauschinger 効果，引張り・圧縮異方性の基礎メカニズムの検討を行った．その結果，BNM では各粒に含まれる転位が減少し，実際に転位が作動する Schmid 因子が小さく，また粒毎の Schmid 因子の差が大きくなるため，系全体の降伏応力が上昇し，また，粒毎の応力分布に不均質性が強く表れることで塑性異方性が生じる要因となることがわかった．同様に，Bauschinger 効果は順方向と逆方向または繰り返し負荷による転位密度の変化によって生じると考えられる．AI では引張り・圧縮異方性が顕著になり，これはすべり面方向の垂直応力に SFE が大きく影響され，特に引張り下で部分転位が安定化することで粒界からの転位の生成を容易にするために，引張りによる降伏応力が低下する要因になることを見出した．

転位源および転位源としての結晶粒界の情報を考慮した結晶塑性モデルに破壊条件を導入し，有限要素解析によって引張り試験における多結晶アルミニウムの破断に対する転位挙動の影響を考察した．破壊条件式を適用した結晶塑性有限要素解析を行った結果，亀裂の進展開始には初期転位密度が影響することがわかった．また，亀裂進展時には切欠き周辺で集中的に転位が増加し，ひずみの増加に伴い亀裂先端だけでなく試験片全体的に転位密度が増加することがわかった．

複数の粒界構造をもつ結晶系における間欠的な塑性変形の統計性を，分子動力学シミュレーションによって明らかにした．結晶が粒界構造を含んでいる場合においてもベキ的な間欠性は残存するが，その変形の最大規模は結晶粒サイズと強い相関をもち，塑性の

雪崩的な伝搬が粒界によって極めて強く抑制されることが確かめられた．

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 41 件)

T. Tsuru and D. C. Chrzan, Effect of Solute Atoms on Dislocation Motion: An Electronic Structure Perspective, *Scientific Reports*, Vol. 5, 2015, 1-8.
DOI: 10.1038/srep08793

Qian Yu, Liang Qi1, T. Tsuru, R. Traylor, D. Rugg, J.W. Morris, Jr., M. Asta, D. C. Chrzan and A. M. Minor, Origin of dramatic oxygen solute strengthening effect in titanium, *Science*, Vol. 347, 2015, 635-639.
DOI: 10.1126/science.1260485

T. Shimokawa and T. Tsubo, Atomic-scale intergranular crack-tip plasticity in tilt grain boundaries acting as an effective dislocation source, *Acta Materialia*, Vol. 87, 2015, 233-247.
DOI: 10.1016/j.actamat.2015.01.002

T. Niiyama and T. Shimokawa, Atomistic mechanisms of intermittent plasticity in metals: Dislocation avalanches and defect cluster pinning, *Phys. Rev. E*, Vol.91 2015, 022401(1-7).
DOI: 10.1103/PhysRevE.91.022401

Y. Aoyagi, T. Tsuru and T. Shimokawa, Crystal plasticity modeling and simulation considering the behavior of the dislocation source of ultrafine-grained metal, *International Journal of Plasticity*, Vol. 56 2014, 43-57.
DOI: 10.1016/j.ijplas.2013.09.009

T. Shimokawa and S. Kitada, Dislocation Multiplication from the Frank-Read Source in Atomic Models, *Materials Transactions*, Vol. 55, 2014, 58-63.
DOI:10.2320/matertrans.MA201319

T. Tsuru, Y. Aoyagi, Y. Kaji and T. Shimokawa, Influence of competition between intragranular dislocation nucleation and intergranular slip transfer on mechanical properties of ultrafine-grained metals, *Materials Transactions*, Vol. 54, 2013, 1580-1586.
DOI: 10.2320/matertrans.MH201313

Y. Aoyagi, R. Kobayashi, Y. Kaji and K.

Shizawa, Modeling and Simulation on Ultrafine-graining Based on Multiscale Crystal Plasticity Considering Dislocation Patterning, International Journal of Plasticity, 47, 2013, 13-28.
DOI: 10.1016/j.ijplas.2012.12.007

K. Kinoshita, T. Shimokawa and T. Kinari, Grain Boundary Structure Dependence of Extrinsic Grain Boundary Dislocation Emission Phenomena: A Molecular Dynamics Study, Materials Transactions, Vol. 53, 2012, 147-155.
DOI: 10.2320/materials.MD201124

Y. Aoyagi and Y. Kaji, Crystal Plasticity Simulation Considering Oxidation along Grain Boundary and Effect of Grain Size on Stress Corrosion Cracking, Materials Transactions, Vol. 53, 2012, 161-166.
DOI: 10.2320/matertrans.MD201126

T. Shimokawa, M. Tanaka, K. Kinoshita, and K. Higashida, Roles of Grain Boundaries in Improving Fracture Toughness of Ultrafine-Grained Metals, Physical Review B, 査読有, Vol. 83, 2011, 214113(1-13).
DOI: 10.1103/PhysRevB.83.214113

T. Shimokawa, Asymmetric ability of grain boundaries to generate dislocations under tensile or compressive loadings, Physical Review B, 査読有, Vol. 82, 2010, 174122.
DOI: 10.1103/PhysRevB.82.174122

〔学会発表〕(計 174 件)

T. Tsuru, Y. Aoyagi, Y. Kaji and T. Shimokawa, Atomistic Simulations of Size-dependent Yield Mechanism of Ultrafine-Grained Metals, Int. Symp. on Plasticity 2014 (Plasticity 2014), January 3-8, 2014, Freeport, Bahamas

T. Shimokawa, Atomic Simulation of Pressure Dependence of Intragranular and Intergranular Dislocation Source Operations, International Symposium on Strength of Fine Grained Materials - 60 years of Hall-Petch, 2013. 7. 16-18, SANJO Conference Hall, The University of Tokyo, Japan

T. Shimokawa, M. Tanaka and K. Higashida, Roles of Dislocation Emission from Grain Boundaries in Mechanical Properties of Bulk Nanostructured Metals, International Workshop on Bulk Nanostructured Metals,

2012.6.26-29, Kyoto University Clock Tower Centennial Hall, Japan

Y. Aoyagi and Y. Kaji, Modeling and Simulation on Irradiated Material Based on Crystal Plasticity Considering Crystal Defect Induced by Irradiation, Plasticity '11: the 16th International Symposium on Plasticity and Its Current Applications, January 3-8, 2011, Puerto Vallarta, Mexico

T. Shimokawa, M. Tanaka and K. Higashida, Effects of Grain Boundaries on Fracture Toughness in Ultrafine-Grained Metals by Atomic-scale Computational Experiments, International Conference on Processing & Manufacturing of Advanced Materials (THERMEC'2011), 2011. 8. 1-5. Quebec, Canada

〔図書〕(計 2 件)

Y. Aoyagi, T. Tsuru and Y. Kaji, A Phenomenological Micromechanical Model of FCC Metals under Radiation Induced Crystal Defects, Effects of Radiation on Nuclear Materials: 25th Volume, (2013), ASTM International, (Ed. Yamamoto, T.).

N. Iwamoto et al., Springer, Molecular Modeling and Multiscaling Issues for Electronic Material Applications, 2012, 55-75. T. Shimokawa, Chapter 4: "ROLES OF GRAIN BOUNDARIES IN THE STRENGTH OF METALS BY USING ATOMIC SIMULATIONS"

〔産業財産権〕

出願状況 (計 0 件)

取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

下川 智嗣 (SHIMOKAWA, Tomotsugu)
金沢大学・機械工学系・准教授
研究者番号: 40361977

(2) 研究分担者

青柳 吉輝 (AOYAGHI, Yoshiteru)
東北大学・工学研究科・准教授
研究者番号: 70433737

都留 智仁 (TSURU, Tomohito)
独立行政法人日本原子力研究開発機構・原子力基礎工学研究部門・研究員
研究者番号: 80455295