

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 30 年 6 月 19 日現在

機関番号：82108

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K17939

研究課題名(和文) 転位の第一原理計算に基づく鉄鋼材料の固溶強化メカニズムの解明

研究課題名(英文) Study on the mechanism of solid solution strengthening in steel based on first principles calculation of dislocation

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) 2,300,000円

研究成果の概要(和文)：本課題では転位の第一原理計算に基づき固溶原子が鉄の強度に及ぼす影響について研究を行った。具体的には、添加元素がらせん転位の運動に及ぼす影響について注目し、まず電子論に基づく第一原理計算より鉄中のらせん転位と添加元素の相互作用を定量的に評価した。さらに得られた相互作用から、添加元素が巨視的な力学特性に及ぼす影響を予測する理論的枠組み、および転位ダイナミクスモデルの検討を行った。これらは鉄鋼材料の固溶強化を原子論から理解するうえで基礎的な知見となる。

研究成果の概要(英文)：In this research, I investigated effects of solute atoms on strength of iron based on first principles calculation of dislocation. I focused on the effect of solute atoms on screw dislocation motion. The quantitative interactions between a screw dislocation and a solute atom were evaluated based on first principles calculation. Moreover, a theoretical framework and a simulation model to predict the effects of solute species on the macroscopic mechanical properties were constructed and discussed based on the obtained interaction. These results should be fundamental knowledge to understand the solid solution strengthening of steel based on the atomistic theory.

研究分野：計算材料力学

キーワード：転位 第一原理計算 固溶強化 鉄

1. 研究開始当初の背景

鉄鋼材料は社会で広く用いられている金属材料であり、その高強度化は輸送機械の軽量化、建築物の安全化などに寄与する。鉄鋼材料をはじめとする金属材料の力学特性は、材料中の種々の材料欠陥の影響を受ける。特に転位と呼ばれる原子レベルの材料欠陥の運動や増殖は、塑性変形の主たる素過程であり材料強度に大きな影響を与える。転位は材料中の様々な空間スケールの他の欠陥(固溶原子、析出物、他の転位、粒界など)と相互作用する。特に鉄鋼材料は種々の添加元素を固溶原子として含むことから、添加元素が転位のふるまいに影響を与え、その結果マクロな力学特性に影響を及ぼす。固溶元素による材料の強化が固溶強化であり、鉄鋼材料に限らず様々な合金で見られる。

従来より様々な合金で、実験や理論、あるいは原子論計算などにに基づき転位と固溶原子の相互作用、さらには各元素の固溶強化への寄与が議論されてきた。転位と添加元素の相互作用は原子レベルで生じる事象であり、その理解には電子・原子論解析が有効である。金属材料のさらなる高強度化、あるいは高延性化を目指して、材料欠陥どうしの相互作用の理解と、各材料欠陥が巨視的な力学特性に及ぼす影響を明らかにすることが現在も求められている。

2. 研究の目的

本研究では、鉄中の転位と固溶元素の相互作用を評価し、さらに得られた相互作用から巨視的な降伏強度に及ぼす添加元素の影響を検討することを目的とする。転位と添加元素の相互作用は電子・原子レベルで生じる事象であり、これを定量的に評価するためには電子論に基づく第一原理計算が有効である。近年の計算機性能の急速な進展により、電子論に基づく第一原理計算を用いて転位と添加元素の相互作用を評価する研究が世界的に既に行われている。本課題では第一原理計算を用いて、体心立方格子中のらせん転位と添加元素の相互作用を電子・原子論に基づき評価することを第一の目的とした。体心立方格子をもつ鉄中では、刃状転位の移動のエネルギー障壁がらせん転位のそれよりも小さいことから、刃状転位はらせん転位よりも容易に運動することが知られている。このことから降伏強度などにはらせん転位の運動が支配的な影響を与えることが指摘されている。よって本研究では体心立方格子中のらせん転位を解析対象とした。

得られた相互作用から、添加元素がマクロな強度に及ぼす影響を評価するためには、添加元素が転位のダイナミクスに与える影響を明らかにすることが重要である。降伏現象には主として材料中の転位速度や転位密度が影響することから、添加元素がこれらの転位の特性に影響を及ぼし、その結果巨視的な降伏強度に影響を与えると考える。このこと

から、添加元素が転位の挙動を介してマクロな力学特性に影響を与えるプロセスを予測する理論モデル、あるいはシミュレーションモデルが重要である。電子・原子論から得られた相互作用の知見に基づき、マクロな力学特性を予測する枠組みを獲得することが本研究のもう一つの目的である。

3. 研究の方法

(1) 第一原理計算より転位と添加元素の相互作用を定量的に評価する

本研究では転位と添加元素の相互作用を評価するのに第一原理計算を用いた。第一原理計算は電子論に基づく計算手法であり、経験的原子間相互作用モデルに基づく古典分子動力学計算よりも高精度な評価が可能である。数百原子からなる体心立方格子の鉄モデルを構築し、原子配置がらせん転位の構造となるように原子構造を変化させる。純鉄中のらせん転位の第一原理計算は既に行われており、本研究で構築したモデルがこれまでに報告されているものと同様の構造とエネルギー状態をもつことを確認した。そのうえで、このモデルに添加元素を置換型あるいは侵入型で導入する。導入位置は転位芯の中、あるいは転位芯から離れた場所を選択した。そのうえで原子構造の変化やエネルギーを評価することで転位と添加元素の相互作用を定量的に評価した。体心立方格子をもつ鉄中のらせん転位の構造として最安定な転位芯構造の他、いくつか特徴的な転位芯構造が知られており、これらの転位芯構造についても添加元素との相互作用を評価した。

(2) 相互作用エネルギーから転位の速度を評価し、さらにマクロな降伏強度を予測する枠組みを獲得する

結晶金属材料のマクロな降伏強度は、主として転位速度と転位密度によって支配されるとのOrowanの式がある。ここではOrowanの式に基づき降伏強度を評価する理論モデルを構築した。転位密度が一定との仮定の下では、転位速度が降伏現象を支配することから、まず転位速度の定式化が必要である。本研究では添加元素と転位の相互作用エネルギーから、転位速度をまず定式化する。そのうえでOrowanの式に基づき、様々な温度、添加物濃度でのマクロな降伏強度を予測する枠組みを構築した。

(3) 相互作用エネルギーから一本の転位のダイナミクスを評価する解析の枠組みを検討する

(2)の枠組みでは転位速度を予測する際に、一本の転位運動をある程度簡略化してモデル化している。転位速度をより正確に予測するためには、複雑な挙動も扱えるモデルが有用である。そこで転位運動に関するエネルギー障壁の値に基づき、転位の速度を評価する粗視化モデルの構築を行った。また一本の転

位運動の情報から、複数の転位が存在する場合での転位間相互作用に基づきマクロな力学応答を評価するモデルについても検討を行った。

4. 研究成果

研究期間において以下に記す研究成果を得た。3. 研究の方法で述べた(1), (2), (3)の項目ごとに説明する。

(1) 第一原理計算による添加元素と転位の相互作用評価

体心立方格子中のらせん転位と置換型元素の相互作用を第一原理計算に基づき評価した。原子数百個の鉄モデルに対してらせん転位を導入し、第一原理計算より構造を緩和した。緩和して得られた構造は従来より報告されているエネルギー的に最安定な転位芯構造となることを確認した。さらに最安定な転位芯構造だけではなく、複数の特徴的な転位芯構造についても第一原理計算よりエネルギーを評価し、いずれも過去に報告されているエネルギーと同程度の値をもつことを確認した。純鉄のらせん転位構造モデルの検証を終えた後、置換型元素を導入して転位と置換型元素の相互作用を第一原理計算より評価した。置換位置は転位芯近傍から遠方まで相対配置を変えて検証を行った。種々の元素を置換型で配置してらせん転位との相互作用を評価したところ、多くの元素で引力的な相互作用が生じていることが明らかとなった。最安定な転位芯構造だけではなく、その他の特徴的な転位芯構造と添加元素の相互作用についても評価を行った。添加元素によっては転位芯構造が違くと相互作用が異なる様子が見られた。本研究で解析対象とした特徴的な転位芯構造は、らせん転位が移動する際にとる構造と関係することが報告されており、この結果はこれらの添加元素が転位の移動に影響を与えることを示唆している。

相互作用エネルギーのより詳細な検討を行うために、完全結晶モデルを用いて、添加元素が一般化積層欠陥エネルギーに与える影響を評価した。一般化積層欠陥エネルギーは、結晶格子モデルをある原子面上で特定の結晶方位にずらした時のエネルギー変化であり、転位のエネルギーと関係があると考えられてきた。ずらす面内の鉄原子を置換型元素に置き換え、一般化積層欠陥エネルギーの最大値(ずらした時のエネルギーが最も高い状態)が置換型元素によってどの程度変化するのかを評価した。多くの置換型元素で、一般化積層欠陥エネルギーの最大値が低下する様子が見られた。またこの低下の程度は、らせん転位 - 添加元素の相互作用エネルギーと関係が見られた。このことは、らせん転位 - 添加元素の相互作用が添加元素と鉄の原子間

結合に関係していることを示唆している。置換型元素だけではなく、炭素などの侵入型元素についてもらせん転位との相互作用を評価した。既に報告されているが、らせん転位と炭素は強い引力相互作用であるとの結果を得た。さらには個々の添加元素による個別の影響だけではなく、複数の添加元素が同時に存在する場合についても検討を進めた。炭素が存在することで置換型元素 - らせん転位の相互作用に影響を与えるとの結果を得た。

(2) 相互作用エネルギーから転位の速度を評価し、さらにマクロな降伏強度を予測する枠組みの構築

獲得した相互作用エネルギーかららせん転位速度を評価する理論式を定式化した。体心立方格子中のらせん転位はキンク機構と呼ばれるプロセスで移動することが知られている。これは最安定のエネルギー状態をもつ直線状のらせん転位の一部分が、隣の最安定な位置へと移動し、転位の曲がった部分(キンク)が生じ、さらにキンク対が転位線に平行に移動することにより最終的に転位全体が隣の最安定の位置へと移る機構である。それぞれキンク対形成プロセス、キンク移動プロセスと呼ぶ。キンク対形成プロセスとキンク移動プロセスのエネルギー障壁を原子論計算から評価し、熱活性化過程に基づく定式化より、キンク対形成頻度、キンク移動頻度を予測する式を求めた。キンク対形成、キンク移動のエネルギー障壁に対して添加元素がどのように影響するのかについては、電子論・原子論計算から得られた値を用いた。転位の速度から Orowan の式を用いて、降伏強度を評価した。Orowan の式では、結晶性金属材料の降伏強度が転位速度、転位密度に依存する形式となっている。ここでは転位密度の時間変化が無視できるほど小さい場合を考える。また従来より指摘されているように、体心立方格子ではらせん転位が降伏強度に支配的な影響を与えると考え、らせん転位速度に注目して降伏強度を評価した。任意の温度、任意の固溶元素濃度におけるらせん転位の速度を上記の で評価し、それに基づき降伏強度を温度、固溶元素濃度の関数として定式化した。構築した理論モデルを検証するために、経験的原子間相互作用ポテンシャルから評価した Fe-Si 合金のらせん転位と固溶 Si の相互作用エネルギーを用いてらせん転位速度、さらには降伏強度を温度と Si 濃度の関数として評価した。純鉄の場合では温度が高くなるほど転位速度が速くなるため降伏強度は低下する。この傾向は Si を添加した場合も同じである。一方 Si の添加により低温での降伏強度は純鉄よりも低下し、常温以上の降伏強度は純鉄よりも上昇する結果が得られた。この傾向は実

験でも報告されており、実験結果をある程度再現可能な理論モデルを構築できたと考える。次に第一原理計算から得られた種々の置換型元素と転位との相互作用エネルギーを用いて、各元素が降伏強度に及ぼす影響を評価した。元素の種類によって相互作用エネルギーは異なり、その結果、降伏強度に及ぼす影響も異なることを確認した。本解析では添加元素は無秩序に空間分布していると仮定し、さらに1個の添加元素と1本の転位との相互作用エネルギーから固溶強化への寄与を評価した。実際には添加元素どうしの相互作用で複数個集まる場合や、析出物や粒界、転位に偏析する可能性、さらには複数の添加元素による非線形な転位との相互作用など、本解析で考慮していない要因も巨視的な降伏強度に影響する可能性がある。これらの影響を理論モデルに取り込むことは今後の課題である。

- (3) 相互作用エネルギーから一本の転位ダイナミクスを評価する解析の枠組みを検討獲得した相互作用エネルギーから一本の転位ダイナミクスを評価した。上記(2)でらせん転位速度を理論的に評価する式を構築した。しかしながらこの式はいくつかの仮定に基づくものであり、例えば転位はある特定の1つのすべり面上で運動すると仮定している。実際に転位に作用する力は複雑であり、1つの転位のすべり面の候補が複数ある場合も存在する。特にらせん転位では交差すべりが発生し、転位はすべり面を変えることが知られている。そこで転位の3次元かつ複雑な運動を評価することを目的として、動的モンテカルロ法に基づく転位ダイナミクス解析の枠組み構築に取り組んだ。らせん転位運動をキンク対形成とキンク移動プロセスに分け、それぞれのエネルギー障壁に基づき頻度を求める。添加元素の影響についても頻度に取り込むことで固溶元素の影響下での活性化頻度を求める。評価した各イベントの頻度に基づき動的モンテカルロ解析を行い、キンク対形成、キンク移動の結果として生じるらせん転位運動を様々な添加元素濃度、温度、応力で求める。また複数のすべり面でのキンク対形成、キンク移動のイベントを考えることで、転位の交差すべりなどの運動を扱うことも可能である。本モデルを用いて、転位に働く力の作用面を変えることで、異なるすべり面での転位の挙動を評価した。上述のように、転位速度は降伏強度に関係しており、さらに転位のすべり面も力学特性に影響することから、この粗視化モデルは今後、電子・原子論から得られた知見をより大きな時間・空間スケールの転位ダイナミクスの理解へと結びつけるうえで有用なモデルであると考える。

複数の転位間に生じる相互作用に基づき転位ダイナミクスを予測する離散転位動力学法を用いて、転位間相互作用が支配因子となる力学特性を評価するモデルについて検討を行った。上記のモデルでは1本の転位の挙動に対する添加元素の影響を電子・原子論の時間・空間スケールを越えて議論するモデルについて検討した。一方で、結晶性金属材料では転位間相互作用が重要な役割を果たす力学特性もある。このような力学特性を議論するために離散転位動力学法の活用が考えられる。離散転位動力学法は、一本の転位を複数のセグメントに分割し、各セグメントに作用する力を評価して、複数の転位が存在する系での転位挙動を評価する手法である。離散転位動力学法では、転位の運動、消滅、増殖などを取り扱うことが可能である。本研究では、電子・原子論から得られた転位と固溶元素の相互作用、1本の転位のダイナミクスを扱うモデルの結果をマクロな力学特性へと結びつけるための基礎的検討として、離散転位動力学解析についても取り組んだ。

上記のように本研究では、電子論に基づく第一原理計算より、体心立方格子中のらせん転位と種々の添加元素の相互作用を定量的に獲得し、その上で各元素が固溶強化に及ぼす影響を評価する理論モデルを構築した。さらには一本のらせん転位の長時間ダイナミクス獲得するシミュレーションモデルの構築に取り組んだ。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計2件)

- (1) M. Wakeda, T. Tsuru, M. Kohyama, T. Ozaki, H. Sawada, M. Itakura, and S. Ogata, Chemical misfit origin of solute strengthening in iron alloys, *Acta Materialia*, 査読あり, Vol. 131 (2017) pp.445-456. <https://doi.org/10.1016/j.actamat.2017.04.017>
- (2) 新里 秀平, 譯田 真人, 尾方 成信, 原子論に基づく鉄合金のマクロ降伏強度予測のための理論モデルの構築, *日本金属学会誌*, 査読あり, 80 巻 (2016) pp.197-205. <https://doi.org/10.2320/jinstmet.J2015061>

〔学会発表〕(計15件)

- (1) 譯田真人, 新里秀平, 尾方成信, 階層的モデリングによる鉄合金中の転位解析, 日本金属学会 2018 年春季(第162回)講演大会(基調講演), 2018.3.19-21, 千葉工業大学(千葉県・習志野市)。
- (2) 譯田真人, 尾方成信, 格子欠陥の第一原理計算に基づく構造材料の力学特性予測, 第27回日本MRS年次大会(招待講演), 2017.12.5-6, 横浜情報文化センター(神奈川県・横浜市)。
- (3) 譯田真人, 尾方成信, 鉄の転位芯近傍に

- おける置換型固溶元素と炭素の相互作用解析, 日本機械学会第 30 回計算力学講演会, 2017.9.16-18, 近畿大学(大阪府・東大阪市).
- (4) 新里秀平, 譚田真人, 尾方成信, 原子論的解析に基づく kinetic Monte Carlo 法を用いた鉄基合金中の転位運動の解析, 日本金属学会第 160 回春期講演大会, 2017.3.14-17, 首都大学東京(東京都・八王子市).
- (5) 世良悟, 堀裕多, 石井明男, 譚田真人, 君塚肇, 尾方成信, 離散転位動力学法を用いた転位の集団挙動の統計的性質に関する研究, 日本機械学会 関西学生会平成 28 年度学生員卒業研究発表講演会, 2017.3.11, 大阪大学(大阪府・吹田市).
- (6) S. Shinzato, M. Wakeda, S. Ogata, Atomistically informed kinetic Monte Carlo simulation of dislocation motion in solid solution strengthened bcc alloys, Materials Research Society (MRS) 2016 Fall Meeting, 2016.11.27, Boston (USA).
- (7) 譚田真人, 尾方成信, 第一原理計算に基づく鉄中のらせん転位運動に対する炭素原子の影響解析, 日本機械学会第 29 回計算力学講演会(CMD2016), 2016.9.22, 名古屋大学(愛知県・名古屋市).
- (8) S. Shinzato, M. Wakeda, S. Ogata, Kinetic Monte Carlo study on effect of solute atoms on dislocation motion in Fe-based alloys, The 9th Pacific Rim International Conference on Advanced Materials and Processing (PRICM9), 2016.8.1, Kyoto (Japan).
- (9) 譚田真人, 尾方成信, 電子論に基づく鉄の固溶強化の研究, マルチスケール材料力学シンポジウム(第 21 回分子動力学シンポジウム), 2016.5.27, 富山大学(富山県・富山市).
- (10) 譚田真人, 尾方成信, 第一原理計算に基づく鉄中のらせん転位と置換型固溶元素の相互作用解析, 日本金属学会第 158 回春期講演大会, 2016.3.23-25, 東京理科大学葛飾キャンパス(東京都).
- (11) 譚田真人, 田中柁伎, 新里秀平, 尾方成信, 原子論的解析に基づく bcc-Fe 中のらせん転位のジョグ形成に与える添加元素の影響評価, 日本機械学会 関西支部第 9 1 期定時総会講演会, 2016.3.11-12, 大阪電気通信大学(大阪府・寝屋川市).
- (12) 譚田真人, 田中柁伎, 新里秀平, 尾方成信, 鉄合金中のらせん転位ダイナミクスの kinetic Monte Carlo 解析, 日本機械学会第 28 回計算力学講演会(CMD2015), 2015.10.10-12, 横浜国立大学(神奈川県・横浜市).
- (13) 新里秀平, 譚田真人, 君塚肇, 尾方成信, 鉄基合金の固溶体強化メカニズムの原子論的解明, 日本機械学会 材料力学部門若手シンポジウム 2015, 2015.8.10-11, 神

- 宮会館(三重県・伊勢市).
- (14) 譚田真人, 尾方成信, 第一原理計算による Fe のパイエルス・ポテンシャルに対する固溶元素の影響評価, 第 20 回分子動力学シンポジウム, 2015.5.22, 山形大学(山形県・米沢市).
- (15) M. Wakeda, S. Ogata, Multiscale modeling of solute atom effect on critical resolved shear stress of Fe, 12th International Conference on the Mechanical Behavior of Materials (ICM12), 2015.5.10-14, Karlsruhe (Germany).

[その他]

https://samurai.nims.go.jp/profiles/wakeda_masato

6. 研究組織

(1) 研究代表者

譚田 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