

令和元年5月21日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K06714

研究課題名(和文)六方晶金属における塑性異方性改善のための合金設計手法の開発

研究課題名(英文)Computational alloy design for improvement of mechanical properties in HCP metals

研究代表者

都留 智仁 (Tsuru, Tomohito)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 原子力科学研究所 原子力基礎工学研究センター・研究副主幹

研究者番号：80455295

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：マグネシウム(Mg)などの六方晶合金は、塑性変形の異方性のため低温～室温で延性・加工性に乏しく、構造材料として本質的な欠点を有している。しかし、合金化と機械特性の関係は古くから古典的な固溶強化機構が知られているものの、降伏後の塑性変形や延性を関連づける理論や機構はわかっていない。本研究では、この周期系の転位を有する原子モデルを構築し、電子構造解析に基づく塑性変形の評価法を構築し、塑性異方性を改善する機構を構築した。また、一部の合金元素によって塑性異方性が改善され、延性が向上することを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

合金化に対する電子状態を考慮した欠陥構造のモデリングに注力し、転位構造と合金元素の電子的な相互作用がもたらす影響を評価する新たな枠組みを構築することで、材料の力学特性の理解に大きく貢献した。さらに、材料設計における普遍的な問題である合金化による力学特性の評価において、従来の試行錯誤で行われていた材料開発に新たなアプローチを提案した。これらの元素戦略による材料設計は学術的な革新性のみならず、資源の少ない我が国において効率的な材料開発が可能になるという観点から工学的にも意義がある。

研究成果の概要(英文)：Solution strengthening is a well-known approach to tailoring the mechanical properties of structural alloys. Ultimately, the properties of the dislocation/solute interaction are rooted in the electronic structure of the alloy. Accordingly, we compute the electronic structure associated with, and the energy barriers to dislocation cross-slip. The energy barriers so obtained can be used in the development of multiscale models for dislocation mediated plasticity. The computed electronic structure can be used to identify substitutional solutes likely to interact strongly with the dislocation. Using the example of a-type screw dislocations in HCP metals, we compute accurately the Peierls barrier to secondary slip and argue that some solutes should interact strongly with the studied dislocation, and thereby decrease the dislocation slip anisotropy in the alloy.

研究分野：計算材料科学

キーワード：転位構造 合金設計 電子状態解析

様式 C - 19 , F - 19 - 1 , Z - 19 , CK - 19 (共通)

1 . 研究開始当初の背景

マグネシウム (Mg) などの六方晶合金は , 塑性変形の異方性のため低温 ~ 室温で延性・加工性に乏しく , 構造材料として本質的な欠点を有している . 近年 , 1at% 以下という少量の添加で延性を劇的に改善する元素が確認され , 合金開発による実用化が期待されている . しかし , 合金化と機械特性の関係は古くから固溶強化が知られるのみで , 降伏後の塑性変形や延性を関連づける理論や機構は知られていない .

2 . 研究の目的

近年の計算機技術の発展により , 電子状態計算から力学特性や熱力学特性などの材料の特性を評価し , 非経験的に合金設計を行う元素戦略材料設計が注目されている . 本研究では , 第一原理計算で評価が可能なバルク特性と転位論を基礎とした理論的な枠組みを組み合わせ , 転位構造や合金元素の影響を評価する手法を構築することを目的とする . ここで , 周期転位の場合を考慮した電子構造解析に基づく塑性変形の評価法を構築し , 塑性異方性を改善する機構を検討する . そして , 六方晶合金の高強度と高延性の両立を実現するための普遍的な合金設計手法を開発する .

3 . 研究の方法

溶質元素は一般に転位との弾性相互作用による固溶硬化を生じる一方 , 延性改善への影響はこのような古典的理論で説明することはできない . 転位芯構造への影響が延性の変化をもたらすことに着目し , 電子状態解析によって合金元素と転位の化学的相互作用を明らかにする . しかしながら , 転位は弾性場の減衰がゆるやか (距離に反比例) であるため , 本来評価に必要な系で電子状態の計算をすることはできない . そこで本研究では , 様々な転位構造に対して , 周期系の転位が生成する弾性場を逆格子空間から数値的に求める手法を構築する . 弾性解と第一原理計算で等しい周期系を用いて弾性エネルギーの寄与を正当に評価し , 合金元素と転位の化学的結合状態と転位運動の関係を明らかにする . 本研究では , 転位芯構造を第一原理計算で評価する枠組みを構築する . そして , 新たな構造材料として期待されている , マグネシウム (Mg) , チタン (Ti) , ジルコニウム (Zr) の転位芯構造および界面構造の評価を行った .

4 . 研究成果

【転位芯構造解析と延性に関する研究】

原子の特性を電子状態から解析する第一原理計算では周期的な原子モデルを前提として解析を行う . 本研究では , 転位双極子の拘束条件下で弾性場をフーリエ空間上で解くことにより , 周期条件を満たす原子モデルを構築した . 第一原理計算によって上記の材料について応用して得られた転位構造を図 1 に示す . 図から , 同じ六方晶金属でも転位構造が全く異なり , Mg では底面 , Ti では柱面 , Zr では柱面に広がる

ことが確認された .
次に , それぞれの材料について合金元素の影響を検討した . 一例として , Mg 中の合金として , Al と Y が添加された際の転位芯構造を示す (図 2) . 機械特性に影響しない Al と延性を向上させる Y では転位構造が大きく異なることがわか

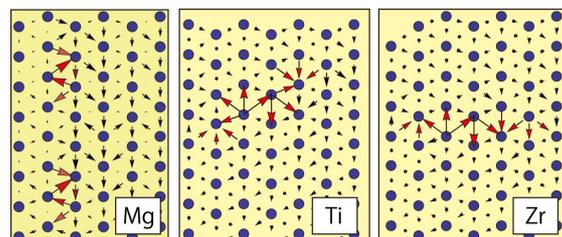


図 1 六方晶金属の転位構造 . 転位芯のひずみが大きい箇所を赤い矢印で示す .

る．電子状態解析によって，Mg と Y の強い相互作用により底面に拡張した転位が収縮し，非底面すべりを活性化することで延性が改善されることを発見した．さらに，同様のアプローチによって Ti 合金のすべり挙動に関して，合金元素として広く用いられている Al と V 元素が底面すべりを活性化する効果を生じることを明らかにした．

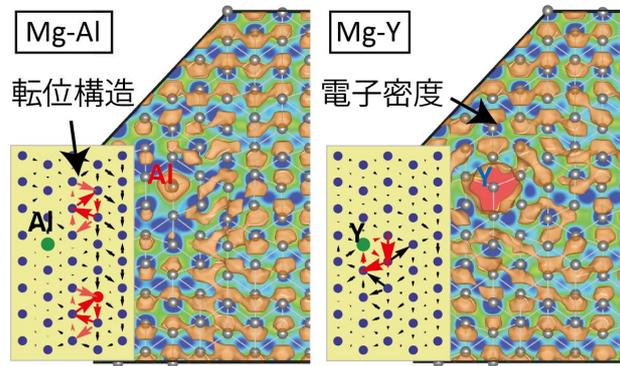


図2 Mg合金の転位構造．転位構造の変化と合金元素近傍の電子の結合を示す．

合金元素と転位の化学的相互作用は鈴木効果などが知られているが，機械特性への詳細な影響を電子状態から予測することにより，合金設計の新たな評価法として幅広く適用できることを示した．

【粒界脆化因子の計算科学的評価手法】

合金元素の延性に関する特性に加えて，破壊力学を応用して合金元素が破壊挙動に及ぼす影響について評価する枠組みを検討した．

Mg合金では，粒界や双晶境界などの結晶の界面から割れが発生することがわかっており，界面の特性にもたらす合金元素の影響が割れの特性を決めていると考えられる．このような問題に対して破壊力学を基本とした理論体系が古くから知られている．本研究では，理論に計算科学の結果を組み合わせる特性を評価する枠組みを構築するとともに，実験による2元系合金の破壊靱性試験と連携して，合金元素の界面への偏析やどのようなメカニズムで破壊に寄与するかを検討した．ここで，界面構造に起因した特定の評価にならないために，実験で観察される様々な界面の原子構造を用いて体系的に評価した．

その結果，図3に示すように，Li，Ca，Sn，Pbが負の値を示し，割れを促進する元素であることが予測された．それら以外の元素は正の値を示し，特に，Zrは割れにくくする影響が強いことがわかる．電子状態の詳細な解析から，このような特徴はMgのp電子と合金元素のd電子の結合によって生じることを見出し，IIIBやIVB族元素が破壊抵抗を向上する効果を有することを明らかにした．図4から実験結果と計算には良好な相関が見られ，計算によって予測されたZrが顕著に靱性を向上させることが確認された．これまでの成果と合わせて，計算科学によって構造材料の強度，延性，靱性を評価することを可能にした．

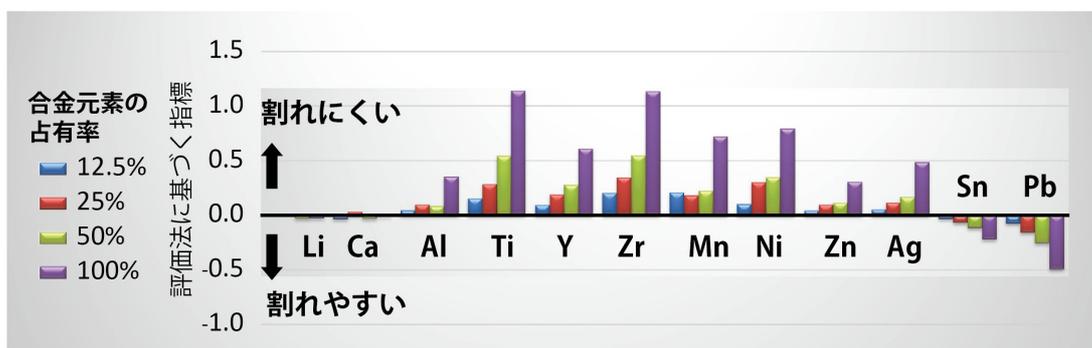


図3．計算に基づく元素毎の破壊に対する影響．

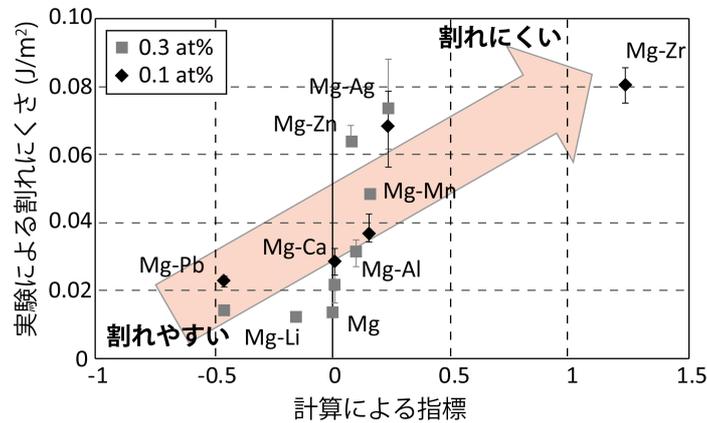


図 4. 計算による予測と実験の割れにくさとの関係 .

5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 20 件)

P.-J. Yang, Q.-J. Li, T. Tsuru, S. Ogata, J.-W. Zhang, H.-W. Sheng, Z.-W. Shan, G. Sha, W.-Z. Han, J. Li, E. Ma, “Mechanism of hardening and damage initiation in oxygen embrittlement of body-centred-cubic niobium”, *Acta Mater.* 168 (2019), 331–342.

戸田 裕之・山口 正剛・松田 健二・清水 一行・平山 恭介・蘇 航・藤原 比呂・海老原 健一・板倉 充洋・都留 智仁・他 6 名, 水素分配制御によるアルミニウム合金の力学特性最適化, *鉄と鋼*, 第 105 巻第 2 号 (2019), 118–131.

M. Yamaguchi, K. Ebihara, M. Itakura, T. Tsuru, K. Matsuda, T. Toda, “First-principles calculation of multiple hydrogen segregation along aluminum grain boundaries”, *Comput. Mater. Sci.*, 156 (2019), 368–375.

A. Bendo, K. Matsuda, S. Lee, K. Nishimura, H. Toda, K. Shimizu, T. Tsuru, M. Yamaguchi, “Microstructure evolution in a hydrogen charged and aged Al–Zn–Mg alloy”, *Materialia*, 3 (2018), 50–56.

T. Tsuru and T. Suzudo, “First-principles calculations of interaction between 5d solutes and dislocation in tungsten”, *Nucl. Mater. Ener.*, 16 (2018), 221–225.

T. Tsuru, H. Somekawa and D. C. Chrzan, “Interfacial segregation and fracture in Mg-based binary alloys: Experimental and first-principles perspective”, *Acta Mater.* 151 (2018), 78–86.

T. Suzudo, T. Tsuru and A. Hasegawa, “First-principles study of solvent-solute mixed dumbbells in bodycentered-cubic tungsten crystals”, *J. Nucl. Mater.* 505 (2018), 15–21.

T. Tsuru, M. Yamaguchi, K. Ebihara, M. Itakura, Y. Shiihara, K. Matsuda, H. Toda, “First-principles study of hydrogen segregation at the MgZn₂ precipitate in Al–Mg–Zn alloys”, *Comput. Mater. Sci.* 148, (2018), 301–306.

A. Bendo, K. Matsuda, S. Lee, K. Nishimura, N. Nunomura, H. Toda, M. Yamaguchi, T. Tsuru, et al., “Atomic scale HAADF-STEM study of η' and η_1 phases in peak-aged Al–Zn–Mg alloys”, *J. Mater. Sci.* 53-6, (2018), 4598–4611.

T. Tsuru, “Origin of tension-compression asymmetry in ultrafine-grained fcc metals”, *Phys. Rev. Mater.*, 1 (2017), 033604 (Editors’ Suggestion).

I. S. Winter, T. Tsuru and D. C. Chrzan, “Lattice softening in body-centered-cubic lithium-magnesium alloys”, *Phys. Rev. Mater.*, 1 (2017), 033606.

H. Somekawa and T. Tsuru, “Effect of alloying elements on grain boundary sliding in magnesium binary alloys: Experimental and numerical studies”, *Mater. Sci. Eng. A*, 708 (2017), 267–273.

H. Somekawa, T. Tsuru, A. Singh, S. Miura and C. A. Schuh, “Effect of crystal orientation on incipient plasticity during nanoindentation of magnesium”, *Acta Mater.*, 139 (2017), 21–29.

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 Mater.*, 131 (2017), 445–456.

李昇原・度遅克己・松田健二・西村克彦・布村紀男・戸田裕之・平山恭介・清水一行・高紅葉・山口正剛・海老原健一・板倉充洋・都留智仁・吉田朋夫・村上哲・池野進, 「ピーク時効した Zn/Mg の異なる Al Zn Mg 合金における時効析出組織と機械的性質」, *軽金属*, 第 67 巻 5 号, (2017), 162–167.

I. S. Winter, M. Poschmann, T. Tsuru, M. Asta and D. C. Chrzan, “Dislocations near elastic instability in high pressure body-centered cubic magnesium”, *Phys. Rev. B*, 95 (2017), 064107.

都留智仁, 「第一原理計算に基づく転位構造解析と合金設計 マグネシウムの延性向上への取り組み」, *まてりあ*, 56-1 (2017), 5–13.

H. Somekawa, T. Tsuru, “Effect of twin boundary on crack propagation behavior in magnesium binary alloys: Experimental and calculation studies”, *Scripta Mater.*, 130 (2017), 114–118.

T. Tsuru, Y. Aoyagi T. Shimokawa, “Atomic Scale Simulations of Relationship between Macroscopic Mechanical Properties and Microscopic Defect Evolution in Ultrafine-grained Metals”, *Mater. Trans.*, 57-9 (2016), 1476–1481.

M. Itakura, H. Kaburaki, M. Yamaguchi and T. Tsuru, “Novel Cross-Slip Mechanism of Pyramidal Screw Dislocations in Magnesium”, *Phys. Rev. Lett.*, 116 (2016), 225501.

〔学会発表〕(計 27 件)

(基調講演) 都留智仁・山口正剛・板倉充洋・D.C. Chrzan, 「六方晶合金の特異なすべり特性と合金元素の影響に関する研究」, *金属学会 2019 年春期(第 164 回)講演大会*, 2019 年 3 月 20-22 日, 東京電機大学東京千住キャンパス.

(招待講演) 都留智仁, 「欠陥挙動に基づく構造材料の力学特性と合金開発 ～原子・電子シミュレーション～」, *日本鉄鋼協会 材料の組織と特性部会 若手フォーラム 平成 30 年度 第二回研究会フォーラム*, 2019 年 2 月 13-14 日, 鉄鋼会館.

(Invited) T. Tsuru, Effect of solutes on dislocation core structure and motion, 7th ESISM International Workshop, Jan. 7-9, 2019, Kyoto, Japan.

(Invited) T. Tsuru, T. Suzudo, M. Itakura, M. Yamaguch, M. Wakeda, S. Ogata, D. C. Chrzan, “DFT-based predictions of the effect of solutes on dislocation motion in bcc and hcp alloys”, *International Symposium on Atomistic Processes of Crystal*

Plasticity, Oct. 25-27, 2018, Tokyo, Japan.

(Invited) T. Tsuru, T. Suzudo, M. Wakeda, S. Ogata and D. C. Chrzan, "First-principles study on effect of Re, Os and 5d solutes on dislocation motion in W alloys", The 10th Korea-Japan Berkeley Symposium, Jun. 20-22, 2018, Pohang, Korea.

(Invited) T. Tsuru, T. Suzudo, M. Wakeda, S. Ogata and D. C. Chrzan, "Effect of transmutation products on materials properties in tungsten alloys", The 11th International Workshop on Materials Behavior at the Micro- and Nano- Scale, Jun. 8-10, 2018, Xi'an, China.

(招待講演) 都留智仁, 染川英俊, 山口正剛, 板倉充洋, 「Effects of alloying elements on deformation and fracture: First-principles approach to element strategy」, 第26回日本MRS年次大会, 2016年12月19日-22日, 横浜市開港記念会館 他.

(依頼講演) 都留智仁, 「欠陥組織と合金元素の機械特性への影響に関する原子・電子シミュレーション」, 日本塑性加工学会 圧延工学分科会 第123回研究会, 2016年7月22日, 東京電気大学, 東京.

(依頼講演) 都留智仁, 「原子・電子シミュレーションによる組織制御・合金化における機械特性評価」, 第29期 Computer Aided Materials and Molecular design (CAMM) フォーラム本例会, 2016年6月3日, アイビーホール, 東京. 他18件

〔図書〕(計 0件)

〔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

<https://www.jaea.go.jp/02/press2018/p18051102/>

https://nsec.jaea.go.jp/fme/group5/group5_index.htm

6. 研究組織

(1) 研究分担者(なし)

(2) 研究協力者

研究協力者氏名: 染川 英俊

ローマ字氏名:(Hidetoshi, Somekawa)

研究協力者氏名: ダリル ショーン

ローマ字氏名:(Daryl C, Chrzan)

科研費による研究は, 研究者の自覚と責任において実施するものです. そのため, 研究の実施や研究成果の公表等については, 国の要請等に基づくものではなく, その研究成果に関する見解や責任は, 研究者個人に帰属されます.