

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 5 月 31 日現在

機関番号：14401

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2011～2015

課題番号：23246025

研究課題名(和文)原子論に基づく材料の有限温度長時間変形の理論体系の創出

研究課題名(英文)Atomistically informed deformation theory of materials at finite temperature

研究代表者

尾方 成信(Ogata, Shigenobu)

大阪大学・基礎工学研究科・教授

研究者番号：20273584

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 37,100,000円

研究成果の概要(和文)：原子レベル時間加速解析を構築し、これを用いた大規模解析によって、有限温度下での長時間変形を解析し、変形のサイズ依存性、応力依存性、温度依存性、ひずみ速度を原子レベルで獲得した。得られた知見をベースに塑性変形理論とクリープ変形理論を融合させた普遍的な有限温度・長時間変形の理論体系を確立した。そして、第一原理計算による材料物性評価をもとに、確立した理論体系を用いてナノ材料開発の指針を提供した。

研究成果の概要(英文)：We developed accelerated molecular dynamics method for analyzing materials plastic deformation processes at finite temperature. Using the newly developed method, we studied size, temperature, stress and strain rate effects on the activation behavior of plastic deformation processes. Based on the obtained properties of the the plastic deformation process, we constructed an unified theory between creep and ordinary plastic deformation theories, which is more general theory of materials deformation including size, temperature, stress and strain rate effects. We applied the theory to deformation study of nanocrystalline materials and proposed a design guide.

研究分野：計算力学、計算材料科学

キーワード：塑性変形 クリープ 原子論 ナノ材料 温度依存性 ひずみ速度依存性 サイズ依存性

1. 研究開始当初の背景

世界的な省エネルギーへの取り組みのなか、熱機関の熱効率向上を目指して、プラントやエンジン等には、より高温での稼働が要求されている。また、安全性やコストの面から、長期間の安定稼働も同時に要求されている。これらの機器の高温における長期の構造健全性を確保するためには、使用する構造材料の有限温度、有限荷重下における力学安定性や長時間変形の理解と予測が不可欠である。また、近年の材料開発技術の発達に伴い、材料への様々な機能付与を目的として、ナノスケールで構造や形状が制御された材料が開発されつつある。このようなナノ材料ではマクロ材料に比べて熱ゆらぎの力学特性に与える影響が大きく、常温においても高温におけるマクロ材料と同様の議論が不可欠である。これまで、有限温度における材料の一般的な力学的特性や変形の記述を目的として、塑性変形理論およびクリープ変形理論が構築されてきた。これらの理論に関する研究は80年以上の歴史を持ち、その間潤沢な実験が実施され、実験事実に基づく経験的理論の構築がなされてきた。ところが、このような経験的理論では、材料の変形と、材料内部の原子挙動や材料の基本物性との関連が十分に明確になっていないため、未知の組成や内部組織を持つ材料の変形に対して、予測的かつ定量的な記述が難しい。さらには、変形と、材料のスケールとの関連も明確ではなく、ナノ材料のように材料の特徴的なサイズが原子スケールに近づくことによって、スケールの効果が大きく現れる対象にそのまま適用することができない。このような現状から、直接的かつ予測的に材料物性、スケール効果、電子・原子挙動を獲得可能である原子・電子モデリング理論に基づいての根本的な理論再構築が希求されている。しかしながら、これまで電子・原子レベルからの根本的な理解および材料特性の予測をも可能にする理論構築はほとんどなされていない。局所変位による材料の変形を議論した塑性変形理論については、原子レベルの実験観察技術および計算機モデリングおよびシミュレーション技術の向上により、転位論をベースとした原子レベルの知見に基づく理論構築がある程度なされつつあるが、拡散等の熱活性化過程に律速された有限温度での長時間変形を対象とするクリープ変形理論については、実験の長期化や、長時間事象を扱える原子レベルでの計算機モデリングおよびシミュレーション技術の立ち遅れから、全く手がつけられていない。一般的に有限温度における材料変形は、転位運動による塑性変形と、原子拡散によるクリープ変形の両変形メカニズムが互いに関連し合いながら発生するものであり、その原子レベルからの根本理解には、原子論に立脚した塑性変形理論とクリープ変形理論の構築はもとより、これらを融合させた新たな理論体系を構築する必要がある

2. 研究の目的

本研究では、材料の定量的な物性予測が可能な第一原理解析とそれに基づく原子レベル時間加速動力学解析によって、有限温度における構造材料の長時間変形と材料の基本物性および材料のスケールとの関連を原子挙動の観点から明らかにする。そして、その知見をベースに、有限温度・長時間の材料変形を記述する理論体系を創出し、予測的に高温構造材料、耐熱性ナノ材料を開発するための指針を提供することを目的とする。

3. 研究の方法

多結晶材料を取り扱うことが可能な原子レベル時間加速解析を構築し、これを用いた大規模解析によって、有限温度下での長時間変形と、その材料スケール依存性を原子レベルで獲得し、得られた知見をベースに塑性変形理論とクリープ変形理論を融合させた普遍的な有限温度・長時間変形の理論体系を確立する。そして、第一原理計算による材料物性評価をもとに確立した理論体系を用いて、高性能高温構造材料や耐熱性ナノ材料開発の指針を提供する。以下の研究成果は何れもモデル材料として銅を対象としている。

4. 研究成果

(1)クリープ変形メカニズムマップの構築
分子動力学計算手法を用いて、ナノ多結晶体のクリープメカニズムマップを構築した(図1)。低応力では粒界拡散や粒界すべりが変形を支配するが、高応力では粒界からの転位核生成が変形を支配することを示した。一方温度に関して、低温では粒界からの転位核生成が、高温では粒界拡散や粒界すべりが支配的になることを示した(図2)。これらの結果はこれまで経験則により予想されていた挙動であるが、原子の振る舞いの観点から明らかにすることに成功した点が重要な成果である。また、粒界拡散、粒界すべり、粒界

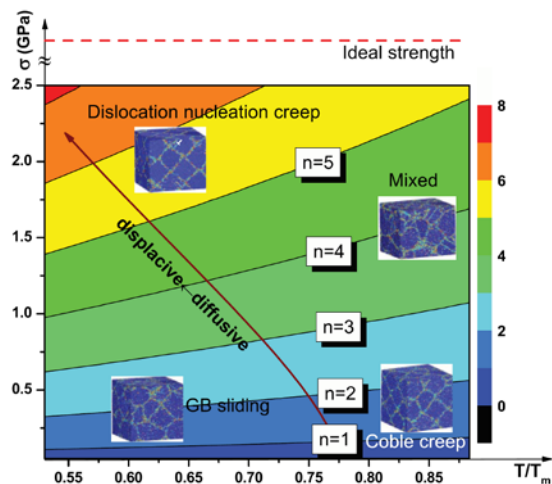


図1 変形メカニズムマップ (雑誌論文⑩)

からの転位核生成を熟活性化過程として物理的に取り扱うことで、これまでのクリープ経験則が理論的に導かれることを示した。

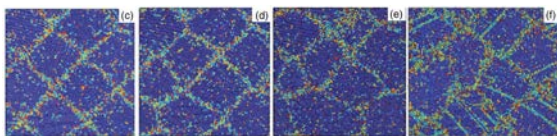


図2 応力による変形メカニズムの変化 (右ほど負荷応力が高い) (雑誌論文⑩)

(2) ナノ多結晶体のクリープ変形の粒径依存性の解明

分子動力学計算手法を用いて、様々な粒径のナノ多結晶体に対するクリープ解析を実施した。その結果、粗大結晶材料とは異なり、ナノ多結晶体では、クリープ速度に明確な粒径依存性があることを見いだした。具体的には、クリープ速度の粒径に対するべき指数が高温低応力の場合には3、低温高応力の場合には2に近い値となることを示した。これは理論的に粒界拡散が支配的な場合には2、粒界からの転位核生成が支配的な場合には3が与えられることと良く整合している。

(3) ナノ多結晶体のクリープ現象におけるエントロピー効果の定量化

ナノ多結晶体に対する分子動力学計算から得られたクリープ速度およびその温度依存性から、活性化エンタルピーと活性化エントロピーを算出し、その温度依存性を評価した。その結果、活性化エントロピーのクリープ速度に与える効果が高温では大きく、無視できないことを示した。また各温度での活性化エントロピーとエンタルピーの間に常に線形関係が成立していることを見いだした。

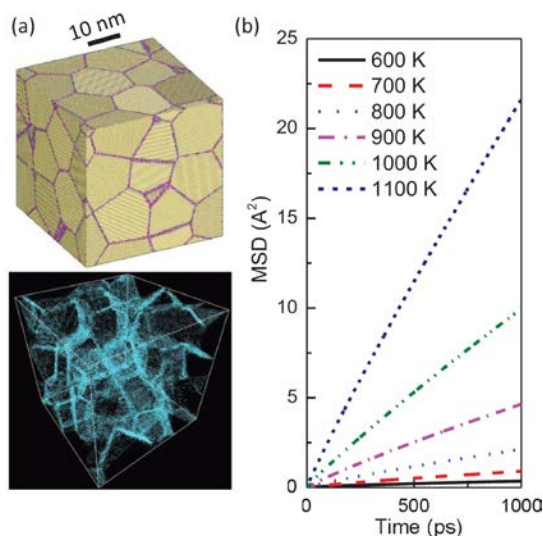


図3 ナノ多結晶体における粒界原子拡散の様子とその温度依存性 (雑誌論文④)

(4) ナノ多結晶体のクリープ現象における

粒界原子拡散の定量化

分子動力学計算法を用いて、ナノ多結晶体での粒界での原子拡散係数とその温度依存性を初めて定量化した。また、粒界が重なる3重線部分では粒界面内よりも拡散が高速になることも明らかにした (図3)。さらには、粒界での原子拡散の活性化エンタルピーやエントロピーは粒径に依らず一定であることも証明した。得られた値は過去の実験値とも良く整合している。

(5) ナノ多結晶体の塑性変形を支配する粒界からの転位核生成の解析

(1)で示したとおり、ナノ多結晶体では低温もしくは高応力下では粒界からの転位生成がクリープ変形 (塑性変形) を支配している。そこで、ナノ多結晶体の変形の温度依存性、応力依存性をより詳細に解明するために、粒界からの転位生成の温度、応力依存性を加速分子動力学法を用いて解析した。その結果、a) 応力によって転位核生成の形態が変化する (図4)。具体的には、低応力では単一の転位が核生成し、高応力では複数の転位が一度に核生成する核生成メカニズムの遷移が生じる。b) 転位核生成現象は極めて強い温度依存性を有する (図5)。c) 転位核生成応力一ひずみ速度関係には、上記 a) のためキックが生じる (図6)、ことを発見した。

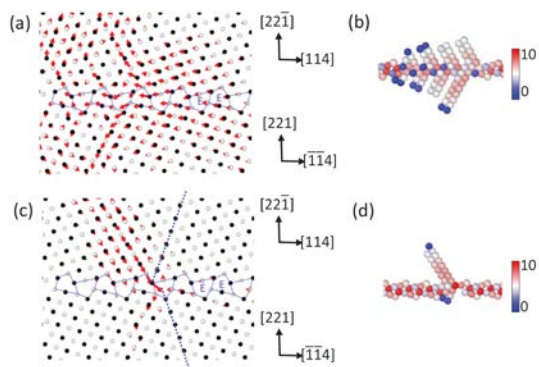


図4 粒界からの転位核生成メカニズムの遷移 (上図が高応力下の結果) (雑誌論文①)

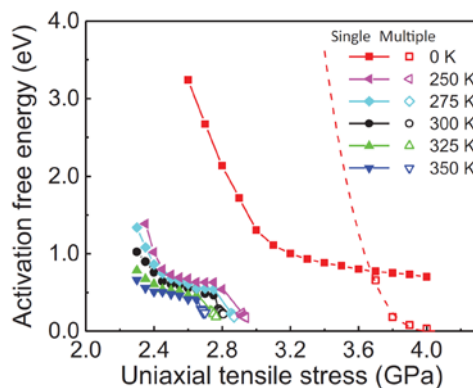


図5 粒界からの転位核生成の活性化エネルギーの温度依存性 (雑誌論文①)

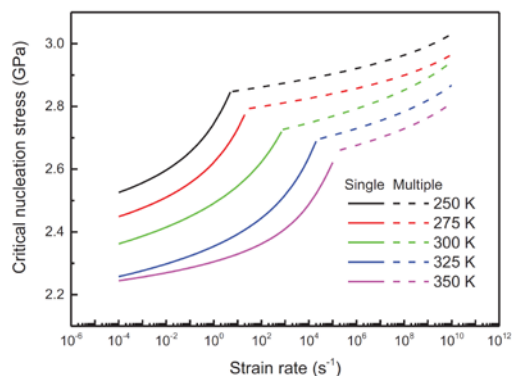


図6 粒界からの転位核生成による降伏応力のひずみ速度および温度依存性 (雑誌論文①)

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 31 件)

- ① J. P. Du, Y. J. Wang, Y. C. Lo, L. Wan, and S. Ogata, Mechanism transition and strong temperature dependence of dislocation nucleation from grain boundaries: An accelerated molecular dynamics study, *Physical Review B*, Vol.94, (2016), pp.104110-1-8.
DOI: 10.1103/PhysRevB.94.104110
- ② N. Miyazaki, Y. C. Lo, M. Wakeda, and S. Ogata, Properties of high-density, well-ordered, and high-energy metallic glass phase designed by pressurized quenching, *Applied Physics Letters*, Vol.109, (2016), pp.091906-1-5.
DOI: 10.1063/1.4962128
- ③ N. Miyazaki, M. Wakeda, Y. J. Wang, and S. Ogata, Prediction of pressure-promoted thermal rejuvenation in metallic glasses, *npj Computational Materials*, Vol.2, (2016), pp.16013-1-9.
DOI: 10.1038/npjcompumats.2016.13
- ④ K. Matsubara, H. Kimizuka, and S. Ogata, Formation of {11-21} twins from I1-type stacking faults in Mg: A molecular dynamics study, *Computational Materials Science*, Vol.122, (2016), pp.314-321.
DOI: 10.1016/j.commatsci.2016.05.033
- ⑤ K. P. So, X. Liu, H. Mori, A. Kushima, J. G. Park, H. S. Kim, S. Ogata, Y. H. Lee, and J. Li, Ton-scale metal-carbon nanotube composite: The mechanism of strengthening while retaining tensile ductility, *Extreme Mechanics Letters*, Vol.8, (2016), pp.245-250.
DOI: 10.1016/j.eml.2016.04.002
- ⑥ 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* 第 80 卷 第 3 号 (2016) pp.197-205.
DOI: 10.2320/jinstmet.J2015061
- ⑦ Y. J. Wang, M. Zhang, L. Liu, S. Ogata, and L. H. Dai, Universal enthalpy-entropy compensation rule for the deformation of metallic glasses, *Physical Review B*, Vol. 92, (2015), pp.174118-1-7.
DOI: 10.1103/PhysRevB.92.174118
- ⑧ M. Wakeda, J. Saida, J. Li, and S. Ogata, Controlled Rejuvenation of Amorphous Metals with Thermal Processing, *Scientific Reports*, Vol. 5, (2015) pp. 10545-1-8.
DOI: 10.1038/srep10545
- ⑨ W. Z. Han, L. Huang, S. Ogata, H. Kimizuka, Z. C. Yang, C. Weinberger, Q. J. Li, B. Y. Liu, X. X. Zhang, J. Li, E. Ma, and Z. W. Shan, From “smaller is stronger” to “size-independent strength plateau”: towards measuring the ideal strength of iron, *Advanced Materials*, Vol. 27, (2015), pp. 3385–3390.
DOI: 10.1002/adma.201500377
- ⑩ M. Fronzi, H. Kimizuka, and S. Ogata, Atomistic investigation of the vacancy-assisted diffusion mechanism in Mg ternary (Mg-RE-M) alloys, *Computational Materials Science*, Vol. 98, (2015), pp. 76-82
DOI: 10.1016/j.commatsci.2014.10.053
- ⑪ H. Kimizuka, S. Kurokawa, A. Yamaguchi, A. Sakai, and S. Ogata, Two-Dimensional Ordering of Solute Nanoclusters at a Close-Packed Stacking Fault: Modeling and Experimental Analysis, *Scientific Reports*, Vol. 4, (2014), pp. 7318-1-9
DOI: 10.1038/srep07318
- ⑫ S. Takebayashi, K. Ushioda, N. Yoshinaga, S. Ogata, Impact toughness of 0.3 mass % carbon tempered martensitic steels evaluated by instrumented Charpy test, *Materials Science Forum*, Vol. 783-786, (2014), pp. 1033-1038
- ⑬ G. J. Gao, Y. J. Wang, and S. Ogata, Studying the elastic properties of nanocrystalline copper using a model of randomly packed uniform grains, *Computational Materials Science*, Vol.79, (2013), pp. 56-62
DOI: 10.1016/j.commatsci.2013.05.053
- ⑭ 松原和輝, 君塚肇, 尾方成信, 構造異方性を考慮した準調和近似に基づく Mg の熱膨張挙動の第一原理解析, *材料*, Vol.63, (2013), pp.188-193
- ⑮ H. Kimizuka, M. Fronzi, and S. Ogata, Effect of alloying elements on in-plane ordering and disordering of solute

- clusters in Mg-based long-period stacking ordered structures: A first-principles analysis, *Scripta Materialia*, Vol. 69, (2013), pp.594-597
DOI: 10.1016/j.scriptamat.2013.07.003
- ⑩ 譯田真人, 君塚肇, 尾方成信, 原子論に基づく Fe-Si 合金中のらせん転位と Si 原子の相互作用の評価, *日本金属学会誌*, Vol. 77, (2013), pp.409-414
DOI: 10.2320/jinstmet.JAW201311
- ⑪ Y. J. Wang, G. J. Gao, and S. Ogata, Entropic effect on creep in nanocrystalline metals, *Acta Materialia*, Vol. 61, (2013), pp. 3866-3871
DOI: 10.1016/j.actamat.2013.03.026
- ⑫ S. Yamamoto, Y. J. Wang, A. Ishii, and S. Ogata, Atomistic design of high strength crystalline – amorphous nanocomposites, *Materials Transactions*, Vol. 54, (2013), pp.1592-1596
DOI: 10.2320/matertrans.MH201316
- ⑬ A. Ishii, J. Li, and S. Ogata, "Conjugate Channeling" Effect in Dislocation Core Diffusion: Carbon Transport in Dislocated BCC Iron, *PLoS ONE*, Vol. 8 (2013), pp.e60586-1-7
DOI: 10.1371/journal.pone.0060586
- ⑭ Y. J. Wang, G. J. Gao, and S. Ogata, Atomistic understanding of diffusion kinetics in nanocrystals from molecular dynamics simulations, *Physical Review B*, Vol. 88, (2013), pp.115413-1-7
DOI: 10.1103/PhysRevB.88.115413
- ⑮ Y. J. Wang, G. J. Gao, and S. Ogata, Size-dependent Transition of Deformation Mechanism and Nonlinear Elasticity in Ni₃Al Nanowires, *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 102, (2013), pp.041902-1-5
DOI: 10.1063/1.4789528
- ⑯ 宮崎成正, 譯田真人, 尾方成信, 分子動力学法による Cu-Zr 二元系アモルファス金属の過冷却液体における粘性係数の温度依存性の解析, *材料*, Vol. 62, (2013), 172-178
- ⑰ Y. J. Wang, A. Ishii and S. Ogata, Grain Size Dependence of Creep in Nanocrystalline Copper by Molecular Dynamics, *Materials Transactions*, Vol. 53, (2012), pp. 156-160
DOI: 10.2320/matertrans.MD201122
- ⑱ A. Ishii, S. Ogata, H. Kimizuka and J. Li, Adaptive boost molecular dynamics simulation of carbon diffusion in iron: *Physical Review B*, Vol. 85, (2012), pp. 064303-1-7
DOI: 10.1103/PhysRevB.85.064303
- ⑲ A. Ishii, H. Kimizuka and S. Ogata, Multi-replica molecular dynamics modeling: *Computational Materials Science*, Vol. 54, (2012), pp. 240-248
DOI: 10.1016/j.commatsci.2011.10.013
- ⑳ Y. J. Wang, A. Ishii and S. Ogata, Transition of creep mechanism in nanocrystalline metals: *Physical Review B*, Vol. 84, (2011), pp. 224102-1-7
DOI: 10.1103/PhysRevB.84.224102
- ㉑ H. Kimizuka and S. Ogata, Slow diffusion of hydrogen at a screw dislocation core in alpha-iron: *Physical Review B*, Vol. 84, (2011), pp. 024116-1-6
DOI: 10.1103/PhysRevB.84.024116
- [学会発表] (計 25 件)
- ① S. Ogata, Multiscale modeling of deformation and strength of structural materials, *Computational Science Workshop 2017 (CSW2017)* (招待講演), 2017.3.7, 湘南国際村センター (神奈川県・三浦郡)
- ② S. Ogata, N. Miyazaki, and M. Wakeda, Atomistic study on pressure promoted thermal rejuvenation of metallic glass, *TMS 2017 Annual Meeting & Exhibition* (招待講演), 2017.2.27, San Diego(United States)
- ③ S. Ogata and J. P. Du, Atomistic study of temperature and stress dependent dislocation nucleation from grain boundary, *Dislocations 2016* (招待講演), 2016.9.21, Purdue, Lafayette (USA)
- ④ S. Ogata, Atomistic modeling of deformation and strength of ultrafine-grained metals, *The 9th Pacific Rim International Conference on Advanced Materials and Processing (PRICM9)* (基調講演), 2016.8.4, ICC Kyoto (京都府・京都市)
- ⑤ S. Ogata, Atomistic modeling of diffusive and displacive deformation processes in plasticity, *8th International Conference on Materials Structure & Micromechanics of Fracture (MSMF8)* (招待講演), 2016.6.28, Brno(Czech Republic)
- ⑥ S. Ogata, N. Tsuji, J. P. Du, and Y. Wang, Modeling of deformation of HCP titanium and magnesium, *International workshop on materails behavior at the micro- and nano-scale* (招待講演), 2015.6.2, Xian(China)
- ⑦ S. Ogata, Atomistic understanding and prediction of mechanical properties of structural materials, *Institute of*

- Mechanics, Chinese Academy of Sciences (招待講演), 2015. 5. 30, Beijing (China)
- ⑧ S. Ogata, A. Ishii, Y. J. Wan, Adaptive-boost molecular dynamics simulation of thermally activated motions of crystal imperfections, The 9th General Meeting of ACCMS-VO (招待講演), 2014.12.19, 沖縄科学技術大学院大学 (沖縄県・恩納村)
- ⑨ A. Ishii, S. Ogata, Density functional theory analysis of stability of Mg{10-12} <10-1-1> twin embryo and energetic of twin boundary migration, Materials Research Society (MRS) 2014 Fall Meeting, 2014.11.30, ボストン (米国)
- ⑩ A. Ishii, J. Li, S. Ogata, Fast solute-atom diffusion channel in dislocation core, Materials Research Society (MRS) 2014 Spring Meeting, 2014.4.21, サンフランシスコ (米国)
- ⑪ S. Ogata, Molecular dynamics simulation of infrequent events for plastic deformation, 2nd Elements Strategy Initiative for Structural Materials International Workshop (招待講演), 2014.3.11, 京都大学 (京都府・京都市)
- ⑫ 尾方成信, 塑性変形の素過程の電子・原子論による解析, 材料の微細組織と機能性第133委員会第219回研究会 (招待講演), 2014.1.25, 京都テルサ (京都府・京都市)
- ⑬ H. Kimizuka, M. Fronzi, and S. Ogata, Prediction of solute-atom clusters segregated in Mg-based ternary alloys from first-principles, International Conference on Processing & Manufacturing of Advanced Materials (THERMEC' 2013) (招待講演), 2013.12.2, Las Vegas (USA)
- ⑭ Y. J. Wang, A. Ishii, G. J. Gao, and S. Ogata, How Nanostructured Metals Creep at Conditions of Extreme Stress and Temperature, Materials Research Society (MRS) 2013 Fall Meeting (招待講演), 2013.12.1, Boston (USA)
- ⑮ S. Ogata and Y. J. Wang, Atomistic Modeling of creep of nanocrystalline metals, Materials Science and Technology 2013 (MS&T'13) (招待講演), 2013.10.27, Montreal (Canada)
- ⑯ S. Ogata, Atomistic understanding of mechanical properties of structural materials, KIM-JIM Symposium (招待講演), 2013.9.17, 金沢大学 (石川県・金沢市)
- ⑰ 尾方成信, 力学計算から見た変形の素過程, 日本金属学会 2013 年秋期講演大会 (招待講演), 2013.9.17, 金沢大学 (石川県・金沢市)
- ⑱ S. Ogata, Atomistic Modeling of Solute Atom Effect on Mechanical Properties of Steel, 8th Pacific Rim International Congress on Advanced Materials and Processing Registration (PRICM-8) (招待講演), 2013.8.9, Hawaii(USA)
- ⑲ H. Kimizuka, M. Fronzi, and S. Ogata, Atomistic Monte Carlo modeling of concentrated Mg-TM-RE alloys based on first-principles, 8th Pacific Rim International Congress on Advanced Materials and Processing Registration (PRICM-8) (招待講演), 2013.8.4, Hawaii(USA)
- ⑳ S. Ogata, Molecular Dynamics Study on a Thermal Rejuvenation of Amorphous Metals, ICF13 International Conference on Fracture 13 (招待講演), 2013.6.16, Beijing(China)
- ㉑ 尾方成信, 格子欠陥における原子拡散と材料変形のモデリング, 日本物理学会春季大会 (招待講演), 2013.3.26, 広島大学 (広島県・東広島市)
- ㉒ S. Ogata, Atomistic modeling of diffusion dynamics, Nuclear Materials Conference (招待講演), 2012.10.21, 大阪国際交流センター (大阪府・大阪市)
- ㉓ S. Ogata, H. Kimizuka, Y. J. Wang, G. J. Gao, A. Ishii, Atomistic modeling of diffusion dynamics in metals, 6th International Conference on Multiscale Materials Modeling (招待講演), 2012.10.15, Biopolis (Singapore)
- ㉔ S. Ogata, Y. J. Wang and A. Ishii, Modeling and simulation of atomic diffusion and creep deformation, IUMRS-International conference on Electronic Materials (招待講演), 2012.9.23, パシフィコ横浜 (神奈川県・横浜市)
- ㉕ S. Ogata, Y. J. Wang, G. J. Gao, A. Ishii, Atomistic modeling of slow dynamics in nanocrystalline metals, International workshop on bulk nanostructured metals (招待講演), 2012.6.26, 京都大学 (京都府・京都市)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

尾方 成信 (OGATA SHIGENOBU)
 大阪大学・基礎工学研究科・教授
 研究者番号：20273584

(2) 研究分担者

君塚 肇 (KIMIZUKA HAJIME)
 大阪大学・基礎工学研究科・准教授
 研究者番号：60467511