

塑性加工による集合組織形成に関する分子動力学解析

山形大学 大学院理工学研究科 機械システム工学分野

教授 上原 拓也

(平成 26 年度一般研究開発助成 AF-2014018)

キーワード：微視組織，分子動力学法，大変形

1. 研究の目的と背景

圧延などの大きな塑性変形を伴う加工中には集合組織が形成され、このような集合組織を含む微視組織が材料の加工性や力学特性などに大きく影響することが知られている。そのため、逆に微視組織を制御することによって所望の特性を得ることが可能であり、形成される微視組織を制御する様々な技術が開発されつつある。また、加工プロセスや機械構造物の変形・強度予測には、計算機シミュレーションが不可欠となっており、計算精度の向上のためには、詳細な材料データが必要である。このような材料データが微視組織に依存し、さらに材料組成や温度、応力、ひずみ速度など、様々な条件にも依存するため、これらのデータを収集するには、膨大な実験が必要となる。微視組織の影響を考慮した力学解析としては、結晶塑性論などを用いて加工中の変形と微視組織の関係を考慮した数値解析手法の構築が進められているが、これらを用いた計算精度の向上に必要なだけの十分なデータを実験によって収集するのは困難であるのが現状である。そのため、材料データそのものを計算機シミュレーションで求めようとする研究が進められている。例えばフェーズフィールドモデルを用いると、凝固組織や多結晶体などの微視組織が再現でき、そこから材料特性の微視組織依存性を推測することが可能である。しかしながら、力学特性に大きく影響する結晶方位変化や粒界挙動は、本質的には結晶構造や原子配列の変化を伴う現象であり、これらを明らかにするためには、原子スケールの解析が不可欠である。

そこで本研究では、塑性加工中に生じる集合組織の形成過程を原子スケールのシミュレーションによって再現し、集合組織形成のメカニズムを明らかにすることを目的とする。将来的には、既に存在する集合組織が加工特性に与える影響についても原子スケールのシミュレーションから明らかにすることが可能とすることを目的とするが、本研究では、その基本的な計算モデルの提案とその妥当性の検討を行う。さらに将来的には、所望の加工性や強度特性をもつ材料を得るための微視組織形態を計算力学モデルから推定し、その組織を得るための加工条件を逆解析的に求める手法を構築することを目指した研究を推進する。

2. 解析方法とシミュレーションモデル

2・1 解析手法

本研究では、古典的分子動力学法を利用する。基礎式は以下に示す Newton の運動方程式であり、これを Verlet 法

を用いて数値積分することによって、すべての原子の運動を解く。

$$\ddot{\mathbf{r}}_i = \frac{1}{m_i} \mathbf{F}_i, \quad \mathbf{F}_i = \sum_{j \neq i} \mathbf{f}_{ij} = \sum_{j \neq i} \frac{d\phi_{ij}}{d\mathbf{r}_{ij}} \quad (1)$$

ここで、 \mathbf{r}_i は原子 i の位置ベクトル、 m_i は原子 i の質量、 \mathbf{F}_i は原子 i に働く力であり、これは周囲の原子 j から働く原子間力 \mathbf{f}_{ij} の和で表されるとする。また、 \mathbf{f}_{ij} は二体間ポテンシャル関数 ϕ_{ij} で表されるとものとし、このポテンシャル関数としては、以下で表される Lennard-Jones 型を用いる。

$$\phi_{ij} = 4D \{ (R/r_{ij})^{12} - (R/r_{ij})^6 \} \quad (2)$$

ここで、 D と R は材料パラメータであるが、無次元化した解析を行うことによって、これらの数値は定性的には影響しない。

2・2 解析モデル

研究で用いた計算モデルを図 1 に示す。計算モデルは 3 次元であるが、図のような 2 次元的な領域パターンを作成する。すなわち、 x - y 平面において正方形の計算領域を 4 つの領域に分割し、互い違いになるように、2 列ずつ配置する。これらの領域が結晶粒に相当し、それぞれに I~IV の識別記号を付す。このとき、負荷方向 (y 軸方向) に対して I と II、および III と IV が直角方向に並ぶモデル (Model A) と、平行に並ぶモデル (Model B) を作成する。今回用いるポテンシャル関数では、結晶構造として fcc 構造が安定であることから、初期配置として、すべての原子を fcc の

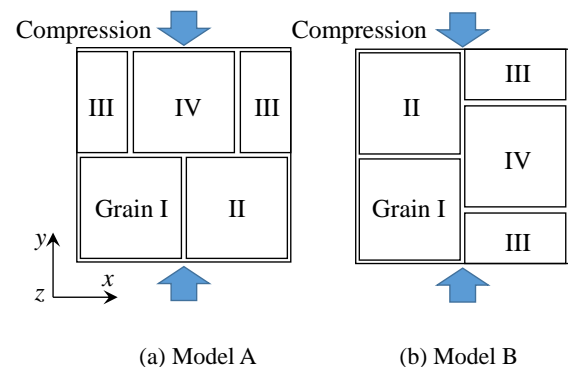


図 1. 計算モデル

格子点に置いた後、図の領域ごとに異なる方位となるように回転して初期配置とする。境界条件は周期境界条件とし、図の奥行き方向（z軸方向）にも周期境界条件を与える。モデルサイズは、x, y, z方向にそれぞれ 50, 50, 5 単位セルとする。初期配置の作成において、領域の境界、すなわち結晶粒界付近では、極端に近すぎる原子ペアが生じた場合には、片方の原子を削除することで、大きな反発力によって計算が不安定となることを避けている。この操作のため、原子数はモデルによってわずかに異なるが、いずれのモデルでもおよそ 50000 である。

2・3 解析条件

負荷条件としては、15000 ステップの間、無負荷状態で緩和計算をした後、y軸方向の長さを一定速度で変化させる。本報では、 $\Delta L_y = 25.0$ だけの圧縮を 50000 ステップの間に負荷する。緩和状態での y 軸方向の長さが $L_y = 73.0$ 程度であるので、およそ $\epsilon_y = 0.34$ の圧縮ひずみに相当する。この間、x, z 方向には、直方体形状を保ったまま、辺の長さを変化させることによって、応力の各方向の垂直成分が 0 となるように制御する。圧縮過程の終了後、序か過程として、5000 ステップの間、y 軸方向の応力成分が 0 となるように制御した計算を行う。

図 1 に示した結晶粒 I~IV の初期方位としては、表 1 に示す 3 通りについて計算した結果を示す。ここで、 26.6° は $\tan^{-1} 1/2$ 、 18.4° は $\tan^{-1} 1/3$ に相当し、規則的な対応粒界が得られる方位として設定した。

表 1. 初期結晶方位

ID	Grain No			
	I	II	III	IV
A1/B1	+26.6°	-26.6°	+18.4°	-18.4°
A2/B2	+26.6°	-18.4°	+18.4°	-26.6°
A3/B3	+26.6°	+18.4°	-26.6°	-18.4°

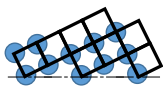


Illustration of the case for 26.6°

3. 計算結果と考察

3・1 圧縮変形

まず、モデル A1 での計算結果を示す。図 2 は、圧縮変形過程における変形と原子配列の変化を表している。個々の原子のポテンシャルエネルギーによって色分けをして表示しており、青が低く、緑、黄、赤となるにつれて高いエネルギーを表している。結晶粒内では、原子は fcc 構造の格子点に規則的に配置しており、安定な状態であるのに対し、結晶粒界では原子配置が不規則となり、エネルギーが高まるため、この図では、青以外の原子を見ることで結晶粒界が表現されている。図 2 (a) は、圧縮負荷を加える前の緩和状態であり、初期配置をして与えた 4 つの結晶粒が、ほぼ正方形形状を保っていることがわかる。このモデルに対し、y 軸（図の上下方向）に圧縮負荷を加えると、y 軸方向の長さ L_y が短くなるが、20000 ステップでは、原子配列に大きな変化は見られない（図 2 (b)）。しかしなが

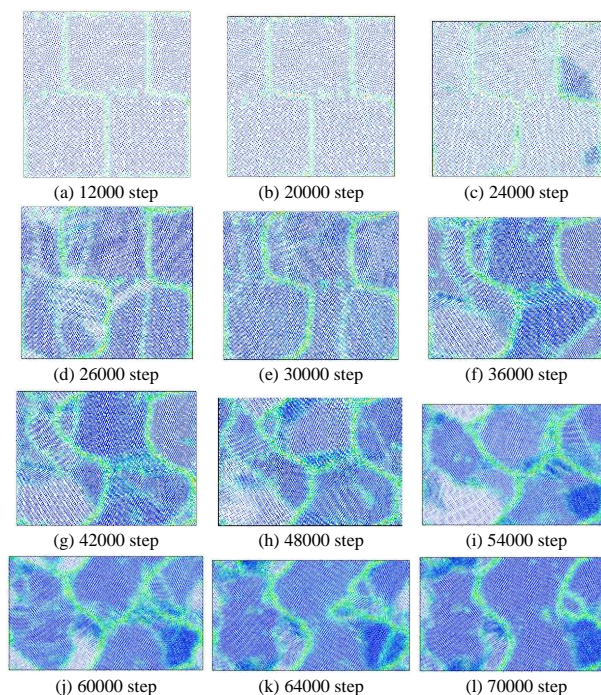


図 2. 原子配列の変化（モデル A1）

ら、図 2 (c) に示す 24000 ステップでは、右上と右下の結晶粒界付近に、濃い青色で示される領域が形成される。この濃淡は、初期配置では [001] 方向を z 軸にとっていたため、奥行き方向の原子がすべて重なって投影されていたのに対し、この領域ではずれが生じたことを表している。つまり、この領域で結晶方位の変化がおきたことを示している。この方位変化の領域は速やかに結晶粒内に広がることも、他の結晶粒でも方位変化が生じ、図 2 (d) に示す 26000 ステップではすべての結晶粒で方位変化が見られる。この方位変化は、図 2(c) で見られたように、結晶粒界、とくに粒界 3 重点が起点となることから、同じ結晶粒でも異なる起点からの領域が発生し、それらが衝突する面が形成される。その結果、もともとの結晶粒内に、複数の結晶方位領域が存在し、いわゆるサブグレイン領域が形成されたとみなすことができる。ただし、このとき形成される新しい粒界は、初期に設定した大計画粒界とは異なり、安定ではなく、一時的に形成しただけの場合もあり、図 2 (e) に示す 30000 ステップでは、左下の結晶粒 (Grain I) では、再び粒内が均一な方位にそろっている。それに対し、右下の結晶粒 (Grain II) では、2 つのサブグレインが残留している。

さらに圧縮変形を加えていくと、図 2 (f) に示す 36000 ステップでは、もともとは縦方向（y 軸方向）であった結晶粒界が、押しつぶされるように斜め方向に傾き、結晶粒の形状が大きく変化することがわかる。その後は、変形が進むにつれ、結晶粒内での方位変化および新たな結晶粒界の形成が断続的に発生し、細かい結晶粒も観察されるようになり、図 2 (j) に示す 60000 ステップになると、もはや

初期の結晶粒はほとんど判別できなくなっている。なお、圧縮変形が進み、y軸方向の長さがかなり短くなるこのあたりから、y軸方向で隣接する（上下に並んでいる）結晶粒の結合がみられる。これは、y軸方向にも周期境界条件をかけているため、周期性を満たす方位として、制限が強くなるのが影響している。

図2(k)に示す64000ステップの後、65000ステップからは除荷し、y軸方向の圧縮応力を0にする。その結果、弾性ひずみ分の回復が起こるが、微視組織については、除荷によってはほとんど変化せず、最終状態の70000ステップ(図2(l))で計算を終了する。

3・2 応力変化

図2に示した過程における負荷方向の応力成分 σ_y の変化を表したのが図3である。ただし、圧縮を正としており、図中にはy軸方向の辺の長さも示している。横軸は時間ステップであるが、辺の長さの変化率は一定であるため、圧縮負荷中となる15000~65000ステップにおいては、横軸を公称ひずみと読み替えることができ、定性的には応力ひずみ線図と等価である。

圧縮負荷を開始した15000ステップから24000ステップ付近までは、応力は単調に増加する。傾きはやや鈍る傾向にあるが、ほぼ直線的な増加とみなすことができる。前節で説明したとおり、この期間には原子配置や結晶粒形状にはほとんど変化が見られなかったことも踏まえ、この段階が弾性変形領域であるとみなされる。その後、応力は24000ステップあたりで急激に減少する。図2(c), (d)に示したとおり、ここで原子配列が大きく乱れており、非弾性変形が起こったといえる。マクロな応力ひずみ線図という降伏点や降伏応力との対応についての詳細な検討は避けるが、本報ではこの点を「降伏点」とよぶこととする。

降伏によって急激に低下した応力は、再び上昇をはじめ。このときの上昇率は、降伏前と同じ程度であり、弾性変形的な特徴を示している。図2(d), (e)に示した26000および30000ステップの原子配列では、結晶粒内で

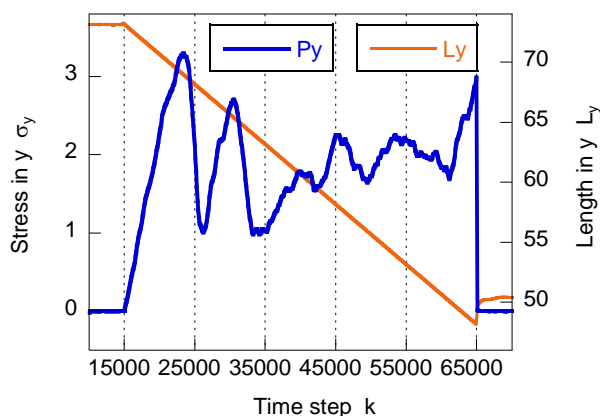


図3. 応力変化 (Model A1)

の方位変化が見られるものの、大きな変化はないことから、降伏による原子配列の乱れが完了した後、原子配列は一旦安定化し、再び弾性的に変形しているとみなすことができる。

その後、30000ステップを過ぎたあたりで、応力は再びピークを示し、急激な応力低下が見られるが、このときの応力値は、一度目のピーク値より小さな値である。原子配列では、図2(f)のように、ピーク前から大きな変化を示していることが確認できる。その後、応力はやや上昇傾向は見られるものの、最初の降伏前や、2度目のピーク前に見られたような弾性的な応力上昇はみられず、明確な応力ピークや急激な応力低下も見られなくなる。これは、図2(f)~(k)で確認できるとおり、この段階では結晶方位の変化や、新たな粒界の形成が断続的にあちこちで発生することに起因する。なお、65000ステップで除荷する際には、ほぼ瞬間的に弾性分のひずみが回復して、応力が0になっていることがわかる。

3・3 結晶方位の影響

次に、結晶粒の配置はそのままにして、各結晶粒の方位を変えたモデル (Model A2) での計算結果を示す。図4は原子配置の変化を表しており、応力負荷前の緩和計算では、モデル A1 のときと同様に、正方形の結晶粒が保持されている (図4(a))。この状態に圧縮負荷を加えていくと、はじめは弾性変形を生じるのみで、結晶粒や原子配置に変化は見られない (図4(b)) が、24000ステップになると1つの結晶粒 (Grain III) 内に、方位変化を起こした領域が形成される。この変化の起点となったのは右下の粒界3重点であり、ただちに結晶粒内の全領域に広がっていく

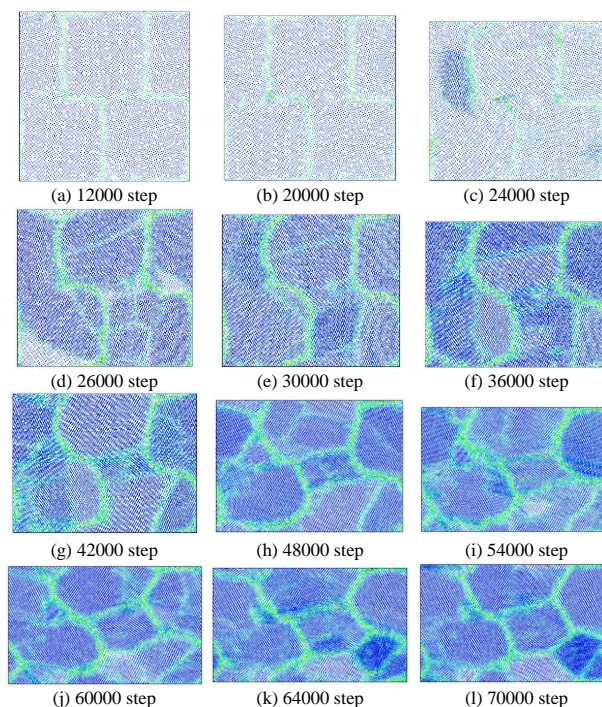


図4. 原子配列の変化 (Model A2)

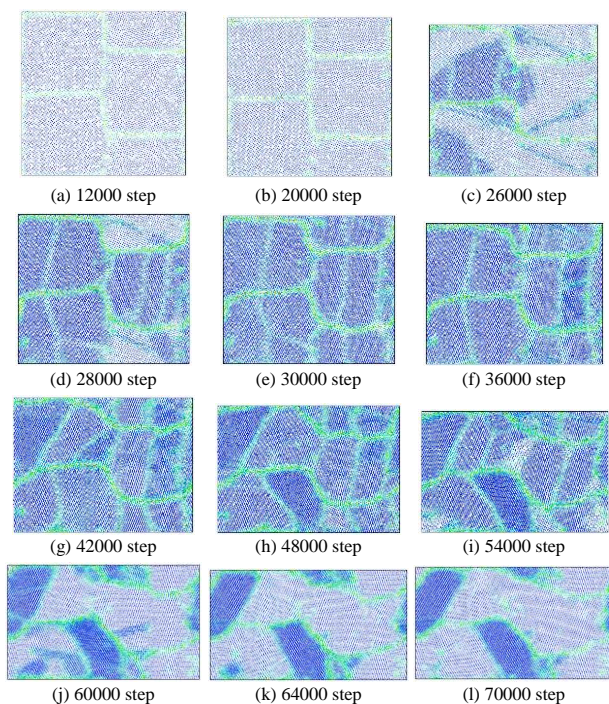


図 5. 原子配列の変化 (モデル B1)

(図 4 (d)). この状態では、他の結晶粒内にも、新たな結晶粒界が形成され、サブグレインとよべるような領域が見られる。このような一連の大きな変化は、一旦、収束し、26000 ステップから 30000 ステップの間にはあまり変化が見られない。その後、36000 ステップまでには再び結晶粒の分布が大きく変化し、微細な結晶粒も形成されていく。このように、定性的にみれば、結晶方位の相違にはよらず、前節に示した Model A1 の結果と同様な挙動を示すことが確認できる。

3・4 結晶粒配置の影響

次に、3.1, 3.2 節に示したモデル (Model A1) に対し、各結晶粒の結晶方位はそのままにして、結晶粒の配置を変えたモデル (Model B1) に対する計算結果を図 5 示す。応力を付加しない状態 (図 5 (a)) では、この場合も正方形形状の結晶粒が保たれており、20000 ステップあたりの弾性変形範囲では、結晶粒分布に変化は見られない (図 5 (b)) が、図 5 (c) に示す 26000 ステップになると、結晶方位が変化した領域が現れ、28000 ステップにかけて、結晶粒全体に広がっていく (図 5 (d))。ここで、図 3 に比べて特徴的な点は、負荷方向 (y 軸) に対して垂直な方向の粒界はそのままの方向を保持しているのに対し、負荷方向に平行な粒界が斜めに傾く点である。また、その傾く角度が、互い違いになるため、正方形であった結晶粒が、六角形状に変形している点である。また、結晶粒内に新たに形成するサブグレインの粒界は、総じて、縦方向に現れる傾向が見られる。

その後、圧縮ひずみが大きくなるにつれ、微細な結晶粒が現れていく傾向は、これまでのモデルと同様である。な

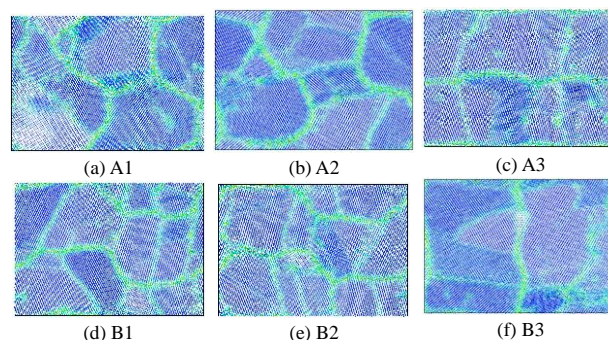


図 6. 結晶粒分布の比較 (48000 step)

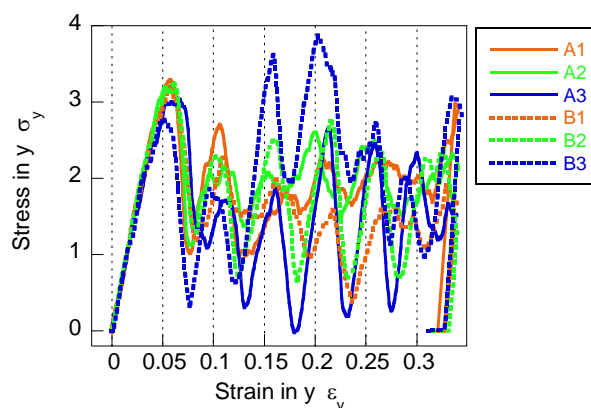


図 7. 応力ひずみ線図の比較

お、60000 ステップ以降を表す図 5 (j)~(l) において、結晶粒ごとに濃淡が違って見えるのは、3.1 節で説明したとおり、z 軸方向への原子の重なりの影響であり、ここでは偶然的に方位がそろったためである。

3・5 考察

最後に、表 1 に示した 6 モデルのすべてについて、計算結果をまとめて示す。図 6 は、48000 ステップにおける原子配列であり、図 7 は圧縮および除荷過程における応力ひずみ線図である。

原子配列の変化については、どのモデルにおいても、初期の結晶粒界に加え、多くの粒界が形成されることによって、結晶粒の微細化が起こっている。結晶粒の形状や結晶方位に関して、負荷方向との関連性や、新たな結晶粒方位とオリジナルの結晶方位の関係などについて、詳細な検討をする必要がある。塑性加工などの大変形に伴う集合組織としては、このような関係を明らかにする必要があり、今後の継続研究課題としたい。

また、応力ひずみ線図においても、すべての場合において、初期には応力がほぼ線形に上昇した後、応力が急激に低下し、再び応力が線形的に上昇した後、2 度目の応力ピークを迎えて応力が急激に低下、その後は断続的に応力の上昇と低下が見られるという定性的な傾向が共通して見られた。ただし、降伏応力は、最大値は 3.2 程度、最小値

は2.8程度である。また、2度目の応力低下以降の挙動については、図3に示した Model A1とは異なり、Model A3, B3 などでは、明確な応力ピークと急激な応力低下を周期的に繰り返し、Model B3 では4度目のピークが最大の応力を示すなど、特徴的な挙動を示している。このような特徴が現れる要因についても、結晶方位や粒界と負荷方向の関係などと関連づけて考察することによって、今後、明らかにしていく予定である。

4. 結言

本研究では、分子動力学法を用いて、圧縮の大変形を受けるときの微視組織変化をシミュレートし、初期の多結晶体における結晶粒内に結晶方位変化が起き、サブグレイン領域が形成されることを示した。本研究では、詳細な結晶方位や、負荷方向との関連性などについては、十分な解析を行うまでには至らなかったが、今回提案したモデルの有効性を示すことができた。今後は、より詳細な解析を行うとともに、変形負荷前後の力学特性変化を評価することによって、塑性加工による微視組織変化と力学特性変化を統一的に解析できる解析手法の構築に向け、基礎的なモデルを示すことができたといえる。

謝 辞

本研究は、公益財団法人 天田財団の一般研究開発助成 (AF-2014018) の支援を受け実施した。ここに深く感謝申し上げます。

参考文献

- 1) T. Uehara: Molecular dynamics simulation of stick-slip friction on a metal surface, *Appl. Mech. Mater.*, **459** (2014), pp. 26-33.
- 2) T. Uehara: Molecular dynamics simulation of tensile properties of nano-layered materials, *Adv. Mater. Res.*, **741** (2013), pp. 79-83.
- 3) T. Uehara and H. Suzuki: Numerical simulation of homogeneous polycrystalline grain formation using multi-phase-field model, *Appl. Mech. Mater.*, **197** (2012), pp. 2610-2614.
- 4) T. Uehara: An atomistic study on the slip deformation mechanism of crystalline materials using a weak-plane model, *Appl. Mech. Mater.*, **197** (2012), pp. 2070-2075.
- 5) T. Uehara: A phase field modelling for multi-scale deformation mechanics of polycrystalline metals, *Procedia Eng.*, **10** (2011), pp. 1779-1784.
- 6) T. Uehara: Numerical study on the evolution of stress distribution in cellular microstructures, *Int. J. Mater. Res.*, **101** (2010), pp. 486-491.
- 7) T. Uehara, C. Asai, and N. Ohno: Molecular dynamics simulation of shape-memory behaviour using a multi-grain model, *Modell. Simul. Mater. Sci. Eng.*, **17** (2009), #035011.
- 8) T. Uehara: Molecular dynamics simulation of the variation in the microstructure of a polycrystalline material under tensile load, *Key Eng. Mater.*, **748** (2017), pp. 375-380.
- 9) T. Uehara: Change in microstructure of a polycrystalline material under compression, *Proc. XIV Int. Conf. on Comp. Plasticity (COMPLAS XIV)*, (2017), pp. 106-113.