原子レベル構造不安定解析による双晶形成メカニズムの検討

Atomic structural Analysis for Mechanism of Twin

石垣 文彦(東大工)

NOEHRING Wolfram(FAU)

Fumihiko ISHIGAKI, School of Engineering, The University of Tokyo

Friedrich-Alexander-Universitaet Erlangen-Nuernberg

久保 淳(東大工)

梅野 宜崇 (東大生研)

Atsushi KUBO, School of Engineering, The University of Tokyo

Yoshitaka UMENO, IIS, The University of Tokyo

Keywords: instability, twin, atomic structure

1. 序論

塑性変形は、すべりや双晶変形など転位の発生および運動という原子レベルでの不安定変形を本質としている。したがって、塑性変形のメカニズムを明らかにするためには原子レベルでの不安定解析が重要である。不均質構造を持つ系の厳密な原子レベル不安定解析手法としては、系のエネルギーに関するヘッシアン行列の固有値問題を解く不安定解析手法⁽¹⁾⁽²⁾が提案されており、①最小固有値がゼロになるとき、不安定変形が開始し、対応する固有ベクトル(不安定変形モード)の方向に不安定変形が生じる、②不安定変形直前において、熱揺動などにより潜在的なモードが活性化され発現することが示されている。したがって、積層欠陥存在し、その後発生する転位による積層欠陥が双晶となるかどうかを検討する際、上記の不安定解析が有効な手法となる。そこで本研究では薄膜の引張シミュレーションにより、不安定変形モードから双晶形成メカニズムの検討を行った。

2. 計算手法

2.1 解析モデル

解析モデルを図1に示す。fcc構造をとるCu原子1188個のうち表面から35%の原子をランダムに取り除いたモデル(原子数1113)を用いて表面に粗さを持つ銅薄膜のシミュレーションを行った。 x, z 方向は周期境界条件とした。そして、以下のような手順で準静的引張解析と有限温度分子動力学(MD)解析を行った。なお、解析に用いた原子間ポテンシャルは、Mishin⁽³⁾らによるEAM(Embedded Atom Method)である。

1) 準静的な引張 x 方向にひずみを与え、各ひずみにお

いて原子構造の緩和計算を行い原子にかかる力の最大値が 10^{-8} eV/Å 以下になるまで行った。緩和計算には、FIRE(Fast Inertial Relaxation Engine)アルゴリズム⁽⁴⁾を用いた。また、ひずみ増分を $\Delta\epsilon_x = 0.001$ とし、2回目の転位発生付近では $\Delta\epsilon_x = 10^{-8}$ とした。

2) 有限温度 MD 解析 上記の準静的な引張解析で得た $\epsilon_x = 0.078$ の原子配置から、 $T = 5$ Kに相当する初期速度を与え、速度スケール法で系を同温度に保ち(NVTアンサンブル)MD解析を行った。

2.2 不安定解析法

N 個の原子からなる構造体を考える。系の自由度 M は、総原子の自由度は、構造体の並進・回転を除いた $3N-6$ であり、セルの自由度を考慮すると系の全自由度は、 $M=3N+3$ となる。この構造体のポテンシャルエネルギー U は、 M 次元のベクトル $\mathbf{R}$ の関数としてあらわされる。構造体のエネルギー Π は、外部荷重による仕事 W とポテンシャルエネルギー U の和となる。微小変形前後のエネルギー増加量から、外力の仕事を引いたものを考えると

$$\delta I \equiv \Pi(\mathbf{R} + \delta \mathbf{R}) - \Pi(\mathbf{R}) - \delta W$$

$$= \frac{1}{2} \sum_{m=1}^M \sum_{n=1}^M \frac{\partial^2 U}{\partial R_m \partial R_n} \delta R_m \delta R_n \dots \dots \dots (1)$$

となり、これが正ならば系は安定であるが、0または負であるならば不安定となる。ここで、

$$A_{mn} = \frac{\partial^2 U}{\partial R_m \partial R_n} \dots \dots \dots (2)$$

を成分とするヘッシアン行列 $\mathbf{A}$ を導入すると系の安定性は行列 $\mathbf{A}$ の固有値問題に帰着できる。行列 $\mathbf{A}$ の固有値の最小値がゼロになるとき不安定変形が生じ、それに対応する固有ベクトルが不安定変形モードになる。

2.3 潜在的な不安定モードとその活性化

系のヘッシアン行列の固有値がすべて正であるが変形が進むにつれて徐々に低下し、一つの固有値がゼロになったとき不安定変形が開始する。正の固有値を持つ変形モードにおいて、エネルギーカーブは図2のように極大値を持つ場合と持たない場合の2通り考えられる。ある点でエネルギーが極大となり、その後 $\partial E / \partial \mathbf{R} < 0$ となる場合(図2一点鎖線)、ピークを越えるとエネルギーの増加を伴わずに変形が進行するため不安定変形が生じる。すなわち熱揺動などによって、エネルギーのピークを越えることができれば安定であった変形モードが活性化し不安定変形に至ることが推測される。このような微小変形によりエネルギーが極大を取り得るモ

Fig. 1 Simulation cell of a thin film with removing 35% of surface atoms on the (001) and (00-1) surfaces in a random fashion.

Fig. 2 Schematics of energy curves with (dashed line) and without (solid line) a maximum energy.

ードは、潜在的な不安定モードと呼ぶことができる。

3. 結果および考察

3.1 双晶形成

準静的な引張解析の結果、 $\epsilon_{xx} = 0.062$ において、1回目の転位が発生し積層欠陥が生じた。その後 $\epsilon_{xx} = 0.07811770$ における十分な緩和後、 $\epsilon_{xx} = 0.062$ に発生した転位に隣接したすべり面に転位が発生し、双晶を形成した (図3)。

引っ張りに伴う固有値の変化を、不安定変形に関する固有値について図4に示す。ここで、固有値が小さなモードから順に、Mode1, Mode2, ...とした。転位が発生するひずみにおいて、Mode4の固有値がゼロとなっており、系が不安定なっていることと構造変化が対応していることがわかる。

図5は2回目の転位が発生する直前の $\epsilon_{xx} = 0.078$ における、Mode4, Mode10, Mode17, Mode18での固有ベクトルの分布図である。実線は、2回目に発生した転位によるすべり面を表し、破線は活性化していないすべり面を表す。Mode4およびMode10では図3における2回目の転位発生方向を表す実線付近に沿って、固有ベクトルが分布している (図5)。2回目の転位発生は、上記のすべり面で起こっているため、Mode4, Mode10は、双晶転位発生に寄与していることが分かる。一方、Mode17, Mode18では双晶転位が起こるすべり面とは異なる面で、固有ベクトルが局在化している。しかしながら、 $\epsilon_{xx} = 0.07811770$ では、Mode17およびMode18における破線付近で不安定変形は起こっていない。これらから、不安定変形直前では双晶変形を起こす場合と双晶変形を起こさない場合の2つの潜在的な不安定変形モードが存在し、 $\epsilon_{xx} = 0.07811770$ において、双晶変形を起こすモードが現れたと考えられる。

3.2 有限温度下における不安定変形

図6は、系に $T = 5$ Kの有限温度MDで5000 MDstep (5 ps) 行ったときの原子構造である。実線はすでに存在している転

Fig.3 Configuration of atoms after relaxation at $\epsilon_{xx} = 0.07811770$.

Fig.4 Eigenvalue as a function of tensile strain.

Fig.5 Eigenvectors of Mode4, 10, 17 and 18 at strain of 0.078.

Fig. 6 Configuration of atoms at strain of 0.078 at 5 K after nucleation of second dislocation.

位のすべり面、破線が新たに発生した転位によるすべり面である。CaseA (図6左)では、図3と同様に双晶転位が発生しており、前節のMode4およびMode10が熱揺らぎにより活性化されている。一方、CaseB (図6右)で新たに生じた積層欠陥は、図5のMode17, Mode18に見られる活性化されていないすべり面と一致しており、双晶変形を起こさないモードが顕在化している。図4において、 $\epsilon_{xx} = 0.07811770$ での固有値は、Mode4以外非零値をとっている。しかしながら熱揺らぎを与えるとそれらのモードが顕在化することから、不安定変形直前において固有値の高いモードも不安定変形に影響を与えうることがわかる。以上より不安定変形直前において、双晶変形とそうでない可能性が存在し、不安定変形開始点において、一方の変形モードが支配的になることでそれに対応した不安定変形が起こることが言える。

4. 結論

準静的なMD解析による薄膜の引張シミュレーションを行った。双晶転位発生直前の不安定解析結果における固有ベクトルの分布より、双晶を起こすモードおよび、起こさないモードが存在することが予測でき、有限温度MDによりどちらのモードも現れることを確認した。今後は、両モードのエネルギー障壁を定量的に評価し、どちらのモードがより支配的かを予測する予定である。

参考文献

- [1] Kitamura, T., Umeno, Y., Tsuji, N., and Nakatani, A., *Trans. Japan Soc. Mech. Eng.*, A, **69**(2003), 945-951.
- [2] Umeno, Y., Shimada, T., and Kitamura, T., *Trans. Japan Soc. Mech. Eng.*, A, **75**(2009), 119-126.
- [3] Mishin, Y., Mehl, M.J., Papaconstantopolous, D., Voter, A., and Kress, J., *Physical Review B* **63**(2001), 224106.
- [4] Bitzek, E., Koskinen, P., Gähler, F., Moseler, M., and Gumbsh, P., *Physical Review Letters* **97**(2006), 170201.