間欠的な塑性変形の原子スケールダイナミクスと その統計的性質に対する変形負荷条件の影響†

新山 友暁* 下川 智嗣**

Effect of Loading Condition on Statistics of Intermittent Plasticity in Metallic Crystals

by

Tomoaki NIITYAMA* and Tomotsugu SHIMOKAWA**

Intermittent crystalline plasticity with power-law behaviors, which is reminiscent of self-organized criticality, has been reported in recent experimental and numerical studies. In this study, we show that the compressive loading condition can provide different statistical features of intermittent plasticity in metals from those under tensile loading. Employing an embedded atom method potential for aluminum we performed molecular dynamics simulations for uniaxial tensile and compressive deformation. It is shown that the power spectra of tensile stress have power-law decay region. Power-law distribution of stress drop and waiting time of plastic deformation events are also observed. However, under the compressive loading large-scale deformation events which result in a plateau and larger cutoff on the stress drop distribution are observed. This difference is originated from the geometrical feature of slip systems that dominate interaction between dislocations in crystals.

Key words:

Molecular dynamics, Plastic deformation, Dislocation, Self-organized criticality, Intermittent plasticity, Power-law distribution, Non-equilibrium critical phenomena

1 緒 言

結晶材料の強さは、一般に転位の運動に対する障害物の抵抗性によって説明されるため、個々の転位挙動に基づいた材料強度設計が学術・産業の両側面において多くの成果を挙げってきた。一方で、せん断帯の伝播などを始めとした突発的な大規模変形挙動は結晶材料の力学特性にしばしば強い影響を与えるが、このような挙動を個別の転位挙動の枠組みで理解することは難しく、現在においてもその発現機構の解明は課題となっている。近年、非平衡物理の観点からこの問題に関連した興味深い現象が報告されている。すなわち、合金材料やマイクロ・ナノピラーなどに対する変形実験において、塑性変形の素過程（転位など）の集团的・協同的な運動が、間欠塑性（*intermittent plasticity*）と呼ばれる突発的な大規模変形を生み出し、さらにその変形規模がベキ乗則あるいはベキ分布（*power-law distribution*）と呼ばれる特異な確率分布に従うことが報告されている^{1)~4)}（実際には、非破壊検査の文脈でのアコースティック・エミッション測定から、その振幅がベキ乗則に従っていることが1970年代に報告されている^{5),6)}）

ベキ分布とは、規模 s のイベントが発生する確率 $P(s)$ が、ある定数 α （ベキ指数）を用いて $P(s) \propto s^{-\alpha}$ のように代数関数的に減衰する特徴を持った確率分布である。こ

の確率分布は地震の規模がしたがう統計則（Gutenberg-Richter 則）などとして知られており⁷⁾、数けたのオーダーにわたる規模のイベントが統計的に無視できない確率で発生し、極まれな大規模事象が平均値や分散に決定的な影響を及ぼすといった特徴（まれなイベントを無視することができない）を持っている。指数 α は、系の対称性や自由度によってのみ決まる普遍的な定数とされており、後述する非平衡臨界挙動を特徴付ける重要な指数として知られている。発生するイベントへの影響に注目するならば、この指数はイベントの平均値や分散を左右する因子のひとつであり、より単純化すれば、より小さな指数は相対的に大きな揺らぎを生み出すことになる。

このベキ乗則に従う散逸挙動は、あるクラスの非平衡散逸系が自身を臨界状態に自己形成し、そこでのエネルギー解放プロセスが雪崩的に連鎖することによって生み出される。このような臨界的な状態の生成と崩壊を自発的に繰り返す挙動は、自己組織化臨界（*self-organized criticality*）と呼ばれており、ベキ乗則はこのような非平衡臨界挙動の存在を示唆する分布であるとされている^{8),9)}。自己組織化臨界が発現するためには、外部からのゆっくりとしたエネルギー注入、しきい値を越えることで初めて起動する複数のエネルギー解放プロセスの存在、そしてそれらのプロセス同士の相互作用が必要とされて

† 原稿受理 平成 27 年 7 月 10 日 Received July 10, 2015 ©2016 The Society of Materials Science, Japan

* 正会員 金沢大学 理工研究域 機械工学系 〒920-1192 金沢市角間町
School of Mechanical Engineering, College of Science and Engineering, Kanazawa University, Kakuma-machi, Kanazawa 920-1192.

** 正会員 金沢大学 理工研究域 機械工学系 〒920-1192 金沢市角間町
School of Mechanical Engineering, College of Science and Engineering, Kanazawa University, Kakuma-machi, Kanazawa 920-1192.

いる⁹⁾。実際に、地震現象、森林火災、量子渦糸のダイナミクス、株式市場の変動や太陽フレアなどを始めとする自然現象・社会現象など、この条件を満たす多くの散逸系においてベキ乗則をとまう突発的なエネルギー解放現象が観測されている^{9), 10)}。この文脈に沿うならば、結晶塑性現象において、このような非平衡臨界挙動が観察されることは自然な帰結といえる（結晶塑性のエネルギー解放の素過程は転位運動であり、これは弾性相互作用を持ち、障害物などの存在がしきい値ダイナミクスを与える）。

このようなベキ的な間欠性を持つ塑性現象を説明する描像として、複数の障害物にピン止めされた転位が連鎖的にピン止めから解放される挙動をランダムポテンシャル上での弾性多様体の運動としてモデル化した depinning 転移 (depinning transition)¹¹⁾ と、多数の転位による協同的な集団運動描像（転位雪崩, *dislocation avalanches*）が提案されており¹⁾、両者の関係性・妥当性について議論が続いている¹²⁾。

ここで転位雪崩運動について説明する。転位雪崩運動は離散転位力学シミュレーションによる解析に基づいて提案された描像で、定性的には以下に述べるような、転位の集団構造の生成・崩壊挙動の繰り返しとして記述される^{1), 13)}。まず、(i) 外部応力によって運動する転位集団が、長距離弾性相互作用を介して互いの運動を阻害する構造 (jamming structures) を自己組織化することで、連続的・流動的な塑性変形が自発的に抑制される。この転位構造は、フラクタル的な構造を有する複雑なセル・ウォール構造の複合体であるとされている（すなわち、多様なサイズを取り得る）。この構造は、それを構成する転位集団の弾性相互作用がバランスすることによって成り立っている。このため、(ii) 外部からの転位伝ばや内部の転位対生成または消滅、さらに外部応力の増加などをきっかけにしてこのバランスが崩れ、jamming 構造は崩壊することになる。この崩壊は、構造の一部にとどまる小規模な場合もあれば、崩壊が雪崩のように連鎖し構造全体の崩壊に至る場合もある。したがって、小さな摂動がトリガーとなって多数の転位が解放されることで、突発的に大規模な塑性変形が発生し得る。(iii) この崩壊の後に、転位が外部応力に従って移動することで再び jamming 構造を自己形成することができ、上述の挙動が自発的に繰り返される。塑性変形は長距離相互作用をもつ転位の運動によって進行するため、このような転位の雪崩運動によって引き起こされる間欠的な変形は、結晶塑性において不可避かつ本来的な挙動であると考えられており、非平衡臨界挙動の一例として非平衡物理学の観点から注目されている。

一方で、転位間相互作用には、先述した間接的な相互作用（弾性相互作用）に加えて、異なる転位線ベクトルを有する転位同士の切り合いで現れる直接的な相互作用も存在しており、その直接的相互作用に応じて形成され

る格子欠陥群は、転位運動に対するピン止めサイトとなる可能性がある。特に、この格子欠陥群の形成には、材料物性値（積層欠陥エネルギーや空孔形成エネルギーなど）、結晶方位（起動するすべり系の相互関係）、負荷条件（引張り・圧縮変形に起因した静水圧、解析温度、ひずみ速度）が強く影響を与えると予想される。つまり、間欠的な塑性を理解するためには、このような各種条件を反映した転位間の直接・間接相互作用を表現可能な数値モデルの枠組が必要不可欠である。これに対して、分子動力学法 (molecular dynamics, MD) を用いた原子シミュレーションは、結晶方位・負荷条件依存性だけでなく、材料物性値に対する依存性や転位交差による格子欠陥群形成を表現できる数値モデルである。

これまでに著者らは、MD 法を用いて積層欠陥・空孔形成エネルギーの異なる金属種に対して、同一結晶方位の単結晶モデルに対する引張変形解析を行ってきた。その結果から、材料物性値に応じて形成された3次元的な転位組織や欠陥構造にモバイル転位がピン止めされ、その結果としてベキ的な応力変動が生まれていることを初めて明らかにしてきたが¹⁴⁾、他の条件が間欠的な塑性挙動に及ぼす影響については明らかになっていない。

そこで本研究では、間欠的な結晶塑性における結晶方位・負荷条件依存性を検討する。具体的には、共役な2つの主すべり系を有する単結晶アルミニウムに対して、ひずみ速度一定の単軸引張および圧縮変形の MD シミュレーションを実施した。このとき、単軸引張もしくは圧縮変形に応じて転位すべり変形により生じる結晶回転の方向が異なることは結晶学的に自明であるため、起動するすべり系の相互関係が引張りと圧縮変形で異なることになる。そこで、負荷応力の時間変動に内在する特徴と、塑性変形規模を特徴付ける応力降下量および変形イベントの待ち時間に注目し、その周波数空間および統計分布にあらわれるスケール不変性に変形条件の影響があらわれることを示す。この引張りと圧縮変形過程における応答特性の違いが、変形条件に起因する結晶方位の変化によって生み出されることを、すべり系および原子構造に対する解析から議論する。

2 数値計算手法

本研究では、以下で詳述するように、アルミニウム (Al) 単結晶を対象とし、周期セル長が一辺およそ 10 nm の立方体に相当するモデルにおける単軸引張・圧縮の MD シミュレーションを、ひずみ速度、温度および側方圧力一定の条件下で実行した。

2.1 シミュレーションモデル

本研究では、Al の塑性変形挙動に注目し、原子間相互作用として Mishin らによる埋め込み原子法による多体ポテンシャルモデルを使用した¹⁵⁾。

モデルの初期配置構造としては、先行研究と同じように以下のような傾いた結晶配置を用いた¹⁴⁾。まず、空間の x, y, z 軸方向にそれぞれ $[11\bar{1}]$, $[112]$, $[1\bar{1}0]$ 軸が向い

ている fcc 格子系を基準の配置として、これを y 軸（すなわち $\langle 112 \rangle$ 軸）周りに $\theta = \tan^{-1}(3/2\sqrt{6}) \simeq 31.48^\circ$ 回転させた結晶構造を初期配置として選んだ。この配置に対して、 z 軸方向を引張り・圧縮方向として取った。このとき、引張り・圧縮軸は $\langle 311 \rangle$ 方向をとり、結果として主すべり系は 2 つ存在することになる。後節で述べるように、負荷条件によってこのすべり系の幾何特性が変化し、そのことが間欠的な塑性応答の統計性に影響を与えることになる。このような回転操作をほどした fcc 結晶格子系は、空間の x, y, z 軸方向に対してそれぞれ $\Delta L_x = \sqrt{33/2}d$, $\Delta L_y = \sqrt{3/2}d$, $\Delta L_z = \sqrt{11}d$ の基本周期長を持つ。ここで、 d は格子定数である。これより、この基本セルを x, y, z 方向に整数倍した長さに対して周期境界条件を課すことで、結晶格子の並進対称性を保った結晶配置を得ることができる。

本研究では、モデルの初期周期セルサイズとして、50 % の引張りおよび圧縮変形を与えることによって周期セルの一辺の長さ L がおよそ 10 nm になるような寸法を選んだ。このため、引張りおよび圧縮モデルに対して、 x, y, z 方向の一辺をそれぞれ $(L_x, L_y, L_z) = (8\Delta L_x, 25\Delta L_y, 5\Delta L_z)$ および $(5\Delta L_x, 14\Delta L_y, 15\Delta L_z)$ とした。このとき、引張りおよび圧縮モデルの周期セル内に含まれる原子の個数はそれぞれ 66,000 および 69,320 個となる。

2.2 数値積分法および数値計算手順

原子および周期セルの運動には運動方程式

$$m_i \ddot{q}_\alpha^{(i)} = F_\alpha^{(i)}(\mathbf{q}) - m_i \gamma \dot{q}_\alpha^{(i)}(t) + \sqrt{2m_i \gamma k_B T} \eta_\alpha^{(i)}(t) \quad (1)$$

で記述される Langevin ダイナミクスを採用した。ここで、 m_i は原子 i の質量、 $q_\alpha^{(i)}$ および $F_\alpha^{(i)}(\mathbf{q})$ はそれぞれ原子 i の位置および受ける力の α 方向成分、 k_B および T はそれぞれ Boltzmann 定数および温度である。 $\eta_\alpha^{(i)}(t)$ は原子 i が時刻 t で受ける揺動力因子の α 方向成分で、 $\langle \eta_\alpha^{(i)}(0) \cdot \eta_\alpha^{(i)}(t) \rangle = \delta(t)$ となる無相関の確率変数である。本研究では、減衰定数を $\gamma = 1 \text{ ps}^{-1}$ とし、設定温度は 10 K とした。周期セルの運動に対しても、同様のダイナミクスを適用した。数値計算スキームは Vanden-Eijnden and Ciccotti による 2 次の数値積分法を用い^{16), 17)}、揺動力の生成には Gauss 分布とメルセンヌ・ツイスター (Mersenne Twister)¹⁸⁾ を使用した。このダイナミクスを採用することで、温度を一定に保つとともに大規模変形後に発生するフォノン伝ばに起因する規則的な応力変動を、設定した緩和時間 $1/\gamma$ に応じて取り除くことができる。大規模な塑性変形が発生した直後には、温度（全運動エネルギー）の突発的な上昇が観察されるが、このような温度上昇もまた緩和時間の時間スケールで設定温度に緩和されることを確認している。

上述した結晶配置の原子に対してランダムな初期速度を与え、これに速度スケール法を適用することで設定値である 10 K まで温度を上昇させた後、10 ps の間 L_z 一定の条件下で緩和した。その後、 z 方向に単軸引張りおよび圧縮変形を与えた。本研究では塑性域での断続的

な変形挙動に注目するので、完全結晶である初期構造が最初に降伏するまでの挙動は重視しない。これより、計算時間短縮のために、弾性域に含まれるひずみ 10 % までの間はひずみ速度 $1 \times 10^{10} \text{ 1/s}$ で変形を与え ($t = 10 - 20 \text{ ps}$)、その後の塑性域を含む 10 % から 50 % までの間はひずみ速度 $5 \times 10^8 \text{ 1/s}$ で変形を加えた ($t = 20 - 810 \text{ ps}$)。また、異なる初期速度を原子に与えて同様のシミュレーションを繰り返すことで、引張り・圧縮変形それぞれに対して 20 個の独立した結果をえた。この変形過程において、Parrinello-Rahman 法¹⁹⁾を用いることで、負荷方向に垂直な x および y 方向の応力をゼロに保った。

3 数値計算結果

3.1 流動応力の時間変動特性

シミュレーションの結果より得られた引張方向応力の時系列 $\sigma_z(t)$ の典型例を Fig. 1 に示した。ここで、黒色および灰色の線は、それぞれ引張りおよび圧縮変形過程での結果に対応する。また、塑性変形と無関係な熱振動に由来する応力の揺らぎを除去するために、時系列を 0.2 ps 間隔で平均化している。

この図より、50 ps 前後での初期降伏は完全結晶からのものであるため、極めて高い応力状態からの降下が見られるが、その後の塑性域では塑性変形に起因する応力の急激な減少（応力降下）が大小様々な規模で断続的・間欠的に現れている。Fig. 1(b) は 150–500 ps の時間領域を拡大したものであるが、このような部分領域においてはより小規模な応力降下イベントが見出され、長時間スケールでのものと相似した時間変化が現れている。同様の特徴は、Fig. 1(c) に示されたスケールまで残存しており、応力時間曲線が自己相似的な特徴を内包していることが想起される。このことについては次節で検証する。

Fig. 1 (a) Typical examples of stress-time curves obtained from the present MD simulations. (b, c) The enlarged curves in the range 150–500 and 280–400 ps.

このような挙動は引張りと圧縮変形過程で共通して見られるが、圧縮変形過程ではこれに加えて、相対的に高い応力まで上昇した後に大規模な応力降下を伴う変形イベントがしばしば発生していた（例えば、Fig. 1(a) にお

ける 600–700 ps での圧縮変形の結果)。以下で議論するように, この特徴的な大規模応力降下を伴う変形挙動が, 引張りと圧縮変形シミュレーションにおける間欠塑性の挙動の顕著な違いである。

3.2 パワースペクトル

Fig. 1 で見られた引張応力の自己相似性を検証するために, ここでは応力時系列のパワースペクトルを計算して周波数解析を行う。パワースペクトル $S(\omega)$ は, ある時系列 $g(t)$ の Fourier 変換

$$G(\omega) = \int g(t) e^{-i\omega t} dt \quad (2)$$

を用いて, $S(\omega) = |G(\omega)|^2$ として与えられる。本研究では, hann window 関数を用いた離散高速 Fourier 変換を施すことでパワースペクトルを計算した²⁰⁾。

Fig. 2 内の挿入図には, あるひとつの時系列のパワースペクトルを示したが, このスペクトルは大きな揺らぎを有している。この揺らぎを取り除くため, まず 20 回の MD シミュレーションで得られた応力の時系列 $\sigma_z(t)$ に対して 0.2 ps の時間間隔でそれぞれ時間平均し, その平均化曲線のパワースペクトルを求め, 得られた 20 個のパワースペクトルを用いて集団平均を取った。この結果を両対数表示で Fig. 2 に示している。ただし, 同図ではスペクトルを角振動数 ω ではなく, 振動数 f の関数として示している。また, スペクトル計算の時間範囲は, 平均化時系列に対しては 400–810 ps, もとの時系列に対しては 284–810 ps を対象としている。

Fig. 2 より, この平均化スペクトルは, 特徴的なピーク構造を持たず, $f \simeq 0.01 - 1 \text{ ps}^{-1}$ の範囲で直線的に減少しており, $S(\omega) \propto \omega^{-4}$ のべき的な減衰を示している。これは, この振動数領域において, 応力の時系列を構成する任意の振動数成分が, 自身の a 倍の成分に対して常に a^4 倍の強度を持つという関係が成立することを意味しており, 応力時間曲線を一定のスケールで拡大しても同じ比率の振動数成分で構成された曲線形状 (すなわち相似的な形状) が常に現れることになる。これが, 前節の Fig. 1 から言及された自己相似性に他ならない。言い換えれば, 応力の時間変動の特徴が, あるスケール変換に対して不変であること (スケール不変性) を意味している。このスケール性は $f > 1 \text{ ps}^{-1}$ で失われており, さらに平均化処理前のスペクトルではこの領域に 2 つの特徴的なピークが確認できるが (Fig. 2 挿入図), これは原子の熱振動と同じかそれ以下の時間スケールに対応しており, 塑性変形由来の応力変動とは無関係である。

このようなパワースペクトルにおけるべき的なスケールリング領域の出現は, 平均場理論モデルおよび 2 次元離散転位動力学シミュレーションの計算から提示されているが^{21), 22)}, MD シミュレーションによる報告は存在しない。これらの先行研究では, 応力の変動速度 $d\sigma/dt$ のパワースペクトルに指数 2 のスケールリング性 $S'(\omega) \propto \omega^{-2}$ が現れるとされている。本シミュレーション結果で得られた指数は 4 であるから, 一見すると平均場モデル

の予想とは一致していないが, 本研究では応力そのもののパワースペクトルに注目していたことに注意する必要がある。フーリエ変換のよく知られた関係として, $i\omega G(\omega) = \int dg/dt e^{-i\omega t} dt$ が成立することから, パワースペクトルにおいては $S'(\omega) = \omega^2 S(\omega)$ の関係が成立する。これを用いると, 本研究でえられた指数を $d\sigma/dt$ のパワースペクトルにおける指数に変換することができ, べき指数 2 を得ることができる。このことから, MD シミュレーションにおいて, 平均場モデルの予測と整合するべき的な時間変動挙動が得られたことが結論できる。

一方で, 圧縮変形過程のパワースペクトルは, 引張変形と同様に単調な減少を示しているが, わずかに上向きに湾曲しており, 予想される結果から外れる傾向にある。これは, 特定の範囲の周波数成分が増加することで上述した応力時間曲線のスケール不変性が崩れ, 直線状であったスペクトルが変形したと解釈できる。ここでは長時間周期の成分が増加しているが, このことは圧縮変形過程でみられた大規模な応力変動の存在 (Fig. 1) と整合している。

Fig. 2 The ensemble average power spectra of stress-time curves $\sigma_z(t)$. The power spectra of stress-time curves without time and ensemble averaging procedure are imposed.

3.3 塑性変形規模の統計性

間欠的な塑性挙動の統計性を調べるために, 塑性変形によって生じる応力降下量 (stress drop), および待ち時間すなわち応力降下イベントの発生時間間隔 (waiting time) の統計分布に注目した。

流動応力 $\sigma_z(t)$ の絶対値が単調に減少する時間領域を塑性変形イベントとみなし, このときに解放された応力を応力降下量 $\Delta\sigma_z$ と定義した (Fig. 1(c) 参照)。さらに, 時間的に連続する変形イベントの発生時間間隔を待ち時間 τ とした。これら 2 つの量をシミュレーションから得られた 20 個の時系列から抽出し, その統計分布を計算した。ただし, 自明な初期降伏の影響を受けないように, 200 ps 以降の時系列に対して抽出を行った。また, 対象とした時系列は, 熱ゆらぎの影響を取り除くために 0.2 ps で平均化したものを用いた。

Fig. 3 に, 応力降下量の確率密度分布 $P(\Delta\sigma_z)$ を両対数スケールで示した。ここで, 四角印は引張変形での結

果を、丸印は圧縮変形での結果を示している。

この図より、応力降下分布は $\Delta\sigma_z = 10^{-3} - 1$ GPa の3けたに渡る範囲ではっきりと直線的な減少を示している。これは、応力降下を伴う塑性変形規模がベキ乗則に従っていることを意味しており、そのベキ指数はおおよそ1.2でフィットできる (Fig. 3)。この指数は時系列に対して施した平均化処理の時間間隔に依存して変化し得るが、定性的な特徴は保存される。実際、Langevin ダイナミクスではなく速度スケリング法によって温度制御を行い、さらに異なるひずみ速度 (1×10^9 /s) を用いたシミュレーションにおいても、同じ指数1.2をもつベキ分布が確認されている¹⁴⁾。

このようなスケリング領域は $\Delta\sigma_z < 10^{-3}$ GPa の範囲ではもはや確認できないが、これはこの領域は本シミュレーションのスケールで再現しえる塑性変形規模の下限を下回っており、熱振動由来の応力揺らぎの範囲となっているからである。また、 $\Delta\sigma_z > 1$ GPa の範囲でもスケリングは破綻しているが、これは取りうる応力降下量の上限に達しているためである。この上限は完全結晶の降伏強度で決まる。

引張変形と圧縮変形から得られた応力降下量分布は、一見するとともにほぼ同じ指数をもつベキ分布に従っているが、Fig. 3内の挿入図からわかるように、圧縮変形では0.3–1 GPaの範囲に特徴的なプラトー (plateau) が現れており、この範囲の規模のイベント発生確率が相対的に高くなっていることがわかる。また、引張変形においては、2 GPaを境にイベントの発生確率は指数関数的に減少しており、これは塑性変形の最大規模 (cutoff) に対応する。これに対して、圧縮変形ではカットオフは4 GPaまで増大しており、同規模のイベント発生確率は引張変形に比べて2けた近く大きくなっている。

Fig. 4には、塑性変形イベントの待ち時間 τ の確率分布 $P(\tau)$ を両対数スケールで示した。待ち時間分布は $\tau = 1 - 40$ ps の範囲で直線的な減少を示しており、応力降下量分布と同様に塑性変形イベントの発生時間間隔がベキ分布 (ベキ指数はおおよそ1.4) に従っていることがわかる。

引張りと圧縮変形での塑性挙動の違いは、待ち時間分布においても認められる。待ち時間分布は応力降下量分布に比べて乱れが大きくその差を見極めることは難しいが、引張変形の結果が比較的是っきりと直線状の減衰を示しているのに対して、圧縮変形過程で得られる分布には10 ps前後にわずかにプラトーが現れていることが確認できる (Fig. 4内の挿入図)。これは圧縮変形の応力降下量分布に現れたものに対応すると考えられる (Fig. 3)。応力降下量分布に現れたプラトーは、圧縮変形においては特定規模の応力降下を伴う変形の発生確率が大きくなることを示しているが、このような大規模な応力降下を発生させるためには十分な応力の蓄積が必要となる。このような応力蓄積をする過程が、待ち時間分布における

プラトーを生み出すと考えられる。ただし、待ち時間分布においてはカットオフの増大は確認できない。

Fig. 3 Log-log plots of the probability distribution of stress drops $\Delta\sigma_z$ under tensile (squares) and compressive (circles) deformation. The enlarged distributions are imposed.

Fig. 4 Log-log plots of the probability distribution of waiting time τ of plastic deformation events. The enlarged distributions are imposed.

3.4 転位の運動と欠陥構造の形成

前節までで、引張りおよび圧縮変形における間欠塑性の統計性に違いが現れることを示したが、本節では変形過程での原子ダイナミクスを直接的に観察することで、両者の変形過程における原子構造および転位の運動挙動の違いについて述べる。

Figs. 5(a) および (b) には、引張りおよび圧縮変形過程における典型的な原子配置のスナップショットを示した。ただし、ここでは転位の挙動に注目するため、fcc 構造を取る原子を取り除き、欠陥および積層欠陥構造 (hcp 構造) を取る原子のみをそれぞれ薄灰色と黒色で表示した。さらに、両欠陥原子の個数 (数密度) の時間変化を、20 個のシミュレーション結果について平均化したものを Fig. 5(c) に示した。原子の構造判定は common neighbor analysis (CNA) を用いた^{23), 24)}。

引張変形においては、結晶内部に多数の欠陥構造がクラスター状に発達し、転位はそれら欠陥クラスターによるピン止めや転位同士の交差によってその運動が支配されていた。転位はこの欠陥クラスターにピン止めされ

ることによって応力降下を伴う塑性変形の進行が停止し(塑性変形イベントの終了), 引張変形による弾性ひずみエネルギーおよび流動応力の増大が始まる。その後, 増大した応力によって転位はこれらのピン止めから解放され, 別の欠陥クラスターや転位によって再びトラップされるまで結晶内部を運動し, 弾性ひずみエネルギーを解放する。これは, これまでの MD シミュレーションによって観察された欠陥クラスターによるピン止め描像(defect cluster pinning)¹⁴⁾ および 3 次元離散転位動力学シミュレーションで観察された転位雪崩運動¹³⁾ に整合する。このことは, Fig. 5(a) において薄灰色で示された欠陥原子が多数形成されていることや, 黒色の積層欠陥構造原子によって特徴付けられた転位が欠陥クラスターにピン止めされ, 外部応力によって弧状に張り出している様子からも伺える。

一方で, 圧縮変形過程では, 転位伝播の障害物となりえるような欠陥クラスターの発達は目立たず, 転位が欠陥構造にトラップされる頻度は相対的に低かった。さらに, 転位集団はしばしば平行に発達し, その結果として転位同士は交差せず, 弾性相互作用のみによって運動が規定される傾向がみられた。このことは, Fig. 5(b) において薄灰色の欠陥原子が相対的に少ないことや, 黒色原子で示される転位の形状からも確認できる。また, 欠陥密度の低さについては, Fig. 5(c) の平均欠陥数密度の時間変化からも明らかである。

Fig. 5 Snapshots of defect atoms during (a) tensile and (b) compressive deformation. (c) Time-series of average number density of defect atoms.

3.5 Schmid 因子

前節での原子ダイナミクスの解析から, 引張変形と圧縮変形においては転位伝播挙動に違いがみられた。この原因を調べるために, 結晶の幾何的特徴とりわけ活動するすべり系の数に注目した。引張りおよび圧縮変形過程

では, 変形によって発生する結晶回転の方向が異なるため, 両過程において活動するすべり系の個数が異なることが予想される。これを確かめるために, 本シミュレーションで再現された間欠塑性における結晶方位に注目し, その Schmid 因子の時間変化を以下の手順で計算した。

MD シミュレーションによって得られたある時刻での原子配置に対して, CNA^{23), 24)} を用いて fcc 構造を取る原子を抽出した。ただし, このときの原子配置は 1 ps 間隔でそれぞれ時間平均しているものとする。このようにしてえた原子集団から, 互いに最近接に位置する 4 個の原子を適当な位置から抽出した。このとき, これらの原子位置は Thompson の四面体の各頂点に対応することになる。このことから, この四面体の各辺方向を向くベクトルおよび 4 面の法線ベクトルを求めることで, 取り得る 4 つのすべり面方位と 12 個のすべり方向が決定できる。これによって得られる 12 個の Schmid 因子を大きいものから順に $S_1, S_2, \dots, S_{12}$ と呼ぶこととし, 時刻 t での S_i を連続した時系列 $S_i(t)$ とみなす。本研究では, 最大および 2 番目に大きな Schmid 因子の系列 $S_1(t), S_2(t)$ の関係のみに注目する。

Figs. 6(a) および (b) に, 引張変形および圧縮変形過程での Schmid 因子の時間変化 $S_i(t)$ の典型例を示した。引張変形においては 1 次および 2 次すべり系がほぼ等しい値をとっており, 2 つのすべり系が等価に活動しながら変形が進行していることがわかる。対照的に圧縮変形過程では, 1 次すべり系のみが最大値 0.5 に近い値に収束する一方で, 2 次すべり系は低下する傾向にあり, 単一のすべり系が支配的となっている (単すべり系)。

Fig. 6 Typical examples of time-series of Schmid factors, $S_i(t)$, during (a) tensile and (b) compressive deformation. (c) Scatter plot of the primary and secondary Schmid factors, S_1 and S_2 , calculated from the 20 time-series.

さらに, すべてのシミュレーションの結果を総合的に検討するために, 20 回行ったシミュレーションで得られたすべての Schmid 因子に対して, $S_1(t)$ および $S_2(t)$ をそれぞれ x および y 座標としてプロットしたものを Fig. 6(c) に示した。引張変形および圧縮変形過程の結果は, それぞれ黒色および灰色の点で示されている。また, 200 ps

からの値を 10 ps おきにプロットしている。もし変形が、多すべり系のもとで進行しているならば、 S_1 と S_2 はほぼ同じ値をとり、この表示の上では対角線付近に点がプロットされる。結晶すべりが単すべり系となっている場合は、プロットは対角線から外れることになる。

Fig. 6(c) より明らかなように、引張変形過程では S_1 , S_2 はともに 0.43 前後に集中しており、ほぼすべてのケースにおいて多すべり系の状態をとっていることが示唆される。圧縮過程においては対照的に、 S_1 , S_2 は初期段階ではともに 0.45 近傍に集中するが、変形の進行とともに S_1 は 0.5 に漸近する一方で S_2 は 0.35–0.5 の範囲に散らばる傾向が現れている。このことから、本シミュレーションで用いた初期結晶配置のもとでは、結晶学的に予測される通り、引張変形過程では多すべり系に、圧縮変形過程では単すべり系に漸近する傾向が強いことが示された。

4 議論

以上の結果から、引張り・圧縮変形における間欠挙動の違いを以下のように説明することができる。

引張変形では多すべり系下で塑性変形が進行するため、転位運動に際して転位同士の直接的な相互作用が頻繁に発生し、これによって欠陥構造が形成されると考えられる。例えば、転位間の交差はジョグを生み出し、そのジョグの移動によって空孔欠陥（列）が形成される。さらに塑性変形の進行に伴い、このような欠陥構造はクラスター状に発達し、この欠陥クラスターが転位運動のピン止めサイトとなる。著者らは先行研究において欠陥クラスターのサイズ分布、すなわちピン止め応力の分布がスケール不変性に従っていることを確認しており、このスケール不変性が Al におけるべき的な間欠塑性の発現機構であると考えられる¹⁴⁾。この挙動には depinning 転移への類似も認められるが、これとの関連性については今後の課題としたい。

一方で、圧縮変形においては、単すべり系下の転位の伝ばで塑性変形が進行するため、Fig. 5(c) で示したように、転位の交差自体は確認されるもののその頻度は相対的に少なく、結晶内の欠陥構造の密度は引張変形過程と比較して低くなっている。さらに、圧縮静水圧場による空孔形成の抑制が、この欠陥密度の低下を促進していると考えられる。また、転位運動がひとつのすべり系に集約されるため、転位群はしばしば平行に形成され、互いに弾性相互作用によってピン止めされることになる。この現象は前述の転位雪崩運動描像によく対応している¹⁾。このピン止め応力は平行な転位間距離が非常に小さいときには、欠陥クラスターや転位間の直接相互作用による転位の張出に必要な応力よりも顕著に大きくなりうる。これが、Fig. 1 で示されたように、圧縮変形過程において負荷応力が相対的に高い値まで上昇しうる理由であると考えられる。

また、上記のように直接的相互作用による障害物（欠

陥構造や転位交差）が少ないことから、平行に形成された転位対が弾性相互作用から解放されて運動する場合には、再び弾性相互作用によりトラップされるまで結晶内を伝ばすることになる。このとき、周期境界条件を適用していることから、この転位は周期境界を介して再び同じペアの転位によってトラップされるまで結晶内を伝ばする可能性が高くなる。この結果、転位の伝ば距離には周期境界長によって規定される特徴的なスケールがあらわれることになる。このような特徴スケールを持つ運動の発生が、応力降下量のスケールリングを崩し、プラトー領域の出現やカットオフの増大をもたらしていると予想される (Fig. 3)。

ここで、このような周期境界長を反映した転位伝ばによって解放される応力量を見積もる。大きさ b のバーガスベクトルを持つ転位が周期セル領域を角度 θ で斜めに横断したとすると、 $\varepsilon_z \simeq b \sin \theta / L_z$ の塑性ひずみが生まれる。Hook's law から、このひずみは Young 率 E を用いて $\Delta \sigma_z \simeq E \varepsilon_z$ 程度の応力を解放しうる。ここで、本シミュレーションで用いた Mishin の EAM ポテンシャルにおいては $E \simeq 75$ GPa であり（応力ひずみ曲線から評価した）、転位は長さ $L_z \simeq 10$ nm の周期セル内部を斜め 45° 方向に移動したとすると、バーガスベクトルは Al の格子定数 $d = 4.05$ Å を用いて $b \simeq d / \sqrt{2}$ と表せるので、生み出されうる応力降下量は $\Delta \sigma_z \simeq 1$ GPa と評価できる。この見積もりは、圧縮変形の応力降下量分布 (Fig. 3) に現れたプラトー領域に近い値である。さらに、転位伝ばが転位群との弾性相互作用によって停止するまでに、シミュレーションセルの横断を複数回要した場合、この数倍の応力解放が発生しうる。これは同分布のカットオフが引張変形に比べて大きな値を示すことに対応する。この定量的な整合性は、上述の推論に妥当性を与えることが理解できる。

5 結言

本研究では、結晶塑性の非平衡臨界挙動に対する結晶方位・負荷条件の影響を検討するために、アルミニウム単結晶モデルに対する単軸引張および圧縮変形の分子動力学シミュレーションを実行した。

シミュレーションは間欠的な塑性変形を再現し、応力時間変動のパワースペクトルおよび応力降下量・待ち時間の確率分布は、先行研究と整合的なべき乗則に従っていた。しかしながら、圧縮変形過程では大規模な変形イベントの発生確率が相対的に高く、確率分布およびパワースペクトルにおいてプラトーの形成とカットオフの増大が現れた。

変形過程における原子配置を観察したところ、引張変形では、転位同士の交差や欠陥クラスターへの転位のピン止めによって変形が律速されていた。対照的に圧縮変形では、欠陥構造の形成は抑制されており、さらに転位集団はしばしば平行に形成され、転位間の弾性相互作用によって運動が支配される傾向にあった。その結果、同

一の転位対が分離集合する挙動が、周期境界を横断するスケールで観察された。

さらに、Schmid 因子の解析から、引張変形過程では複数のすべり系が等価な活性を示したが、圧縮変形過程では単すべり系になる傾向がみられた。

このように、同じ結晶方位を有する単結晶モデルに対して引張り・圧縮変形を加えた場合においても、その静水圧や起動するすべり系の相互関係に依じて、運動する転位に対する障害物群の自己形成機構が異なることが理解できた。このことから、多すべり系で生じた転位間の直接的な相互作用に比べ、単すべり系での間接的相互作用は、より大規模な塑性変形を生み出しうることが確認できた。

この傾向は、実験的に観察される単結晶材料の加工硬化率と活動するすべり系の関係によく対応している（単一すべりによる低い加工硬化率のステージ I と共役すべりによる高い加工硬化率のステージ II）。つまり、本研究で述べた間欠塑性の統計性という新しい視点は、転位の集団挙動を取り扱うことによって、ミクロスケールの格子欠陥群の相互作用とマクロスケールの力学特性を繋ぎ、高強度・高延性の両立を実現する材料開発に対する有力な評価手法となる能力を秘めていることが明らかになった。

本研究は文部科学省科学研究費補助金新学術領域研究「バルクナノメタル」（課題番号 22102007）および（独）科学技術振興機構（JST）による産学共創基礎基盤研究「ヘテロ構造制御」の支援を受けて行われたものである。ここに記して謝意を表します。

参 考 文 献

- 1) M. C. Miguel, A. Vespignani, S. Zapperi, J. Weiss, and J.-R. Grasso, "Intermittent dislocation flow in viscoplastic deformation", *Nature*, Vol.410, No.6829, pp.667–671, (2001).
- 2) G. Ananthakrishna, S. J. Noronha, C. Fressengeas, and L. P. Kubin, "Crossover from chaotic to self-organized critical dynamics in jerky flow of single crystals", *Physical Review E*, Vol.60, pp.5455–5462, (1999).
- 3) D. M. Dimiduk, C. Woodward, R. LeSar, and M. D. Uchic, "Scale-free intermittent flow in crystal plasticity", *Science*, Vol.312, No.5777, pp.1188–1190, (2006).
- 4) T. Richeton, J. Weiss, and F. Louchet, "Breakdown of avalanche critical behaviour in polycrystalline plasticity", *Nature Materials*, Vol.4, No.6, pp.465–469, (2005).
- 5) "The 3rd Acoustic Emission Symposium". High pressure institute of japan, The japanese society for non-destructive inspection, Pan pacific committee for non-destructive testing, (1976).
- 6) H. Nakasa, "Theoretical bases and practical applications of acoustic emission", (1994) Chijin Shokan.
- 7) B. Gutenberg and C. F. Richter, "Earthquake magnitude, intensity, energy, and acceleration", *Bulletin of the Seismological Society of America*, Vol.46, No.2, pp.105–145, (1956).
- 8) P. Bak, C. Tang, and K. Wiesenfeld, "Self-organized criticality: An explanation of the $1/f$ noise", *Physical Review Letters*, Vol.59, pp.381–384, (1987).
- 9) H. J. Jensen, "Self-Organized Criticality: Emergent Complex Behavior in Physical and Biological Systems" (1998) Cambridge University Press.
- 10) M. Aschwanden, "Self-organized criticality in astrophysics: The statistics of nonlinear processes in the universe", (2011) Springer.
- 11) M. Zaiser, "Scale invariance in plastic flow of crystalline solids", *Advances in Physics*, Vol.55, No.1-2, pp.185–245, (2006).
- 12) P. D. Ispánovity, L. Laurson, M. Zaiser, I. Groma, S. Zapperi, and M. J. Alava, "Avalanches in 2d dislocation systems: Plastic yielding is not depinning", *Physical Review Letters*, Vol.112, p.235501, (2014).
- 13) F. F. Csikor, C. Motz, D. Weygand, M. Zaiser, and S. Zapperi, "Dislocation avalanches, strain bursts, and the problem of plastic forming at the micrometer scale", *Science*, Vol.318, No.5848, pp.251–254, (2007).
- 14) T. Niiyama and T. Shimokawa, "Atomistic mechanisms of intermittent plasticity in metals: Dislocation avalanches and defect cluster pinning", *Physical Review E*, Vol.91, p.022401, (2015).
- 15) Y. Mishin, D. Farkas, M. J. Mehl, and D. A. Papaconstantopoulos, "Interatomic potentials for monoatomic metals from experimental data and *ab initio* calculations", *Physical Review B*, Vol.59, pp.3393–3407, (1999).
- 16) E. Vanden-Eijnden and G. Ciccotti, "Second-order integrators for langevin equations with holonomic constraints", *Chemical Physics Letters*, Vol.429, No.1–3, pp.310–316, (2006).
- 17) M. Tuckerman, *Statistical mechanics: theory and molecular simulation*, (2010) Oxford Graduate Texts.
- 18) M. Matsumoto and T. Nishimura, "Mersenne twister: A 623-dimensionally equidistributed uniform pseudo-random number generator", *ACM Transactions on Modeling and Computer Simulation*, Vol.8, No.1, pp.3–30, (1998).
- 19) M. Parrinello and A. Rahman, "Crystal Structure and Pair Potentials: A Molecular-Dynamics Study", *Physical Review Letters*, Vol.45, No.14, pp.1196–1199, (1980).
- 20) G. Zelniker and F. J. Taylor, "Advanced digital signal processing: theory and applications", (1993) CRC Press.
- 21) K. A. Dahmen, Y. Ben-Zion, and J. T. Uhl, "Micromechanical model for deformation in solids with universal predictions for stress-strain curves and slip avalanches", *Physical Review Letters*, Vol.102, p.175501, (2009).
- 22) G. Tsekenis, J. T. Uhl, N. Goldenfeld, and K. A. Dahmen, "Determination of the universality class of crystal plasticity", *Europhysics Letters*, Vol.101, No.3, p.36003, (2013).
- 23) H. Jonsson and H. C. Andersen, "Icosahedral ordering in the lennard-jones liquid and glass", *Physical Review Letters*, Vol.60, No.22, pp.2295–2298, (1988).
- 24) A. S. Clarke and H. Jónsson, "Structural changes accompanying densification of random hard-sphere packings", *Physical Review E*, Vol.47, pp.3975–3984, (1993).