アルミニウム結晶中の熱活性による粒界すべり-粒界移動
の分子動力学シミュレーション*岩崎 富生^{*1}, 佐々木 直哉^{*1}
千葉 矩正^{*1}, 阿部 康夫^{*2}Molecular Dynamics Simulation of Grain-Boundary Sliding
and Migration Induced by Thermal Activation in AluminumTomio IWASAKI, Naoya SASAKI,
Norimasa CHIBA and Yasuo ABE

We investigate the grain-boundary behavior of coupled sliding and migration induced by thermal activation, using a molecular dynamics simulation. The two $[001]-(310)$ $\Sigma=5$ tilt grain boundaries are simulated in aluminum, where Morse potential and periodic boundary conditions are used. The simulations show that when the temperature is low, or when the distance between the two boundaries is long, the boundary structure is likely to be preserved, and the sliding and migration of one grain boundary tends to be accompanied by sliding and migration of the other grain boundary. When the temperature is high, or when the distance is short, these tendencies are weakened. Boundary sliding and migration is unlikely in crystals where the boundary structure is disordered, because dislocation generation and mobility are difficult in such crystals.

Key Words: Molecular Dynamics, Grain-Boundary Sliding, Grain-Boundary Migration, Thermal Activation, Dislocation Generation, Dislocation Mobility

1. 緒 言

結晶粒界の構造や挙動を原子レベルで解明することは、材料の性質を把握し、材料設計の指針を確立するための重要課題の一つといえる。例えば、金属材料の高温変形を理解するためには、本報で取上げる粒界すべり-粒界移動現象の温度依存性と粒界間距離依存性をミクロなレベルで調べる必要がある。また、最近結晶粒径がナノメータサイズである金属の力学的性質を調べる研究が行われており^{(1)~(3)}、この金属が、マイクロメータサイズ粒径の金属と比較して、降伏強さや引張強さが大きいなどの特有の性質を持つことが指摘されている。こうした点から見ても、粒界挙動の粒界間距離依存性を調べることは興味深い。

これまで、対応粒界に見られる粒界すべり-粒界移動をDSC転位モデル^{(4)~(6)}によって説明しようとする試みが行われており^{(7)~(10)}、これに関する実験的研究

も進められている^{(11)~(14)}。また、Bishopら^{(15), (16)}は分子動力学シミュレーションによって、DSC格子によって説明し得る粒界すべり-粒界移動現象を観測している。彼らは、文献16において、ある時間ステップ数のシミュレーションに対して、ある温度以下では粒界すべり-粒界移動が起こらないというしきい値が存在することを確認しており、これによってこの現象が熱活性により起こされることを示した。しかしながら、これらの研究においては、粒界挙動の温度依存性や粒界間距離依存性といった点についてはほとんど調べられていない。

この他、粒界を扱った分子動力学研究として、北村ら^{(17), (18)}はアルミニウム2次元結晶を用いた粒界溝形成シミュレーションを行っている。

本研究では、分子動力学法を用い、アルミニウム粒界 $[001](310)\Sigma=5$ の熱活性による粒界すべり-粒界移動現象を取上げ、その挙動の温度依存性と粒界間距離依存性を調べた。

2. 計算方法

2.1 分子動力学法 アルミニウム粒界 $\Sigma=5$

* 平成4年11月12日 第5回計算力学講演会において講演、原稿受付 平成5年2月23日。

*¹ 正員、(株)日立製作所機械研究所(〒300 土浦市神立町502)。

*² (株)日立製作所機械研究所。

の挙動を原子レベルで調べるために、次のようなNewtonの運動方程式を解く。

$$m \frac{d^2 \mathbf{r}_i}{dt^2} = \mathbf{F}_i = - \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}_i} \sum_{j < k} u(|\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_k|) \quad \dots\dots\dots (1)$$

ここで、 $\mathbf{r}_i$ は*i*番目の原子の位置であり、*m*はアルミニウム原子の質量 4.482×10^{-26} kgである。また、*u*(*r*)としてMorse型ポテンシャル⁽¹⁹⁾を用いた。式(1)を解くための初期条件として、原子位置は面心立方格子点上に置き、原子速度は20KのMaxwell分布に従うように与えた。格子定数は300Kでの格子定数 $4.05 \text{ \AA}$ と線膨張率 $2.3 \times 10^{-5} / \text{K}$ を考慮して与えた。このあとは、Verletのアルゴリズム⁽²⁰⁾に従って式(1)を解いて各原子の位置と速度の時間発展を調べる。ここで、時間刻みは、 $h = 3.0 \times 10^{-15} \text{ s}$ とした。また、系の温度を設定したい値に落ち着かせるため、速度スケール法⁽²⁰⁾を用いた。この際の設定温度は、1,000ステップまでは $T = 20 \text{ K}$ とし、1,001ステップ以降は $T = T_f$ とした。ここでは T_f として650K, 700K, 750K, 850Kの4通りについて調べた。

2.2 試料および座標系 本研究では、粒界間距離の異なる2つの試料として、図1(試料1)および図2(試料2)に示す2種類のモデルを扱う。原子数は、試料1、試料2についてそれぞれ936個、456個である。これらのカイト構造をもつ粒界は $[001](310)\Sigma=5$ であり、(*x*, *y*)面は(001)面、*z*方向は $[001]$ 方向となるような座標系となっている。*x*, *z*方向に対してだけでなく、*y*方向に対しても周期的境界条件を用いているため、図1, 2に示すようにMDセルの中には2つの粒界(中央部の粒界と下部の粒界)が存在する。粒界間距離は、図1, 2においてそれぞれ格子定数の $2\sqrt{10}$ 倍、 $\sqrt{10}$ 倍である。これらの試料は z 方向に8個の原子面を含んでおり、これらの面番号*J*を*z*の正の向きに、各原子面に対して $J=1, 2, \dots, 8$ と割当てた。後に示す結果は、原子面 $J=4$ に含まれる原子の(*x*, *y*)座標を描いたものである。

2.3 計算条件 2.1節で述べた T_f として、ここでは650K, 700K, 750K, 850Kの4通りについて調べた。本研究では外力によるものではなく、熱活性による粒界すべり-粒界移動を調べた。また、計算ステップ数は、試料1、試料2に対してそれぞれ48,000ステップ、96,000ステップとした。

3. 結果および考察

3.1 試料1を用いた場合の計算結果 試料1を用いたシミュレーション結果を温度の低い方か

図1 試料1および座標系

図2 試料2および座標系

ら示す。まず、 $T_f = 650 \text{ K}$ の場合、48,000ステップまでに粒界すべり-粒界移動は見られなかった。次に700Kの結果(図3)を見ると、2つの粒界は*y*の負の向きに1列移動するという結果が得られた。ただし、周期的境界条件を用いているので、下部の粒界は、*y*の負の向きに1列移動したことによって上部に現れている。つづいて750Kの結果(図4)を見ると、2つの粒界は、始め6,000ステップまでに*y*の負の向きに1列移動し、次に30,800ステップまでに*y*の正の向きに3列移動した後、さらに34,000ステップまでに*y*の負の向きに1列移動している。以上の結果(図3, 4)を見ると、2つの粒界は連動し、粒界間距離を一定に保つように移動している。また、原子配列はほとんど乱されずに保存されている。

さらに温度の高い $T_f = 850 \text{ K}$ の結果(図5)を見ると、2つの粒界は、始め40,000ステップまでに*y*の正の向きに4列移動し、次に42,000ステップまでに*y*の負の向きに1列移動している。ここまでは2つの粒界が連動して移動している。この後45,000ステップまでに

図3 試料1を用いた粒界すべり-粒界移動 ($T_f=700\text{K}$)

図4 試料1を用いた粒界すべり-粒界移動 ($T_f=750\text{K}$)

図5 試料1を用いた粒界すべり-粒界移動 ($T_f=850\text{K}$)

中央部の粒界が y の正の向きに1列移動しているのに対し、下部の粒界は移動しなかった。また、この後45,200ステップまでに中央部の粒界が y の負の向きに1列移動しているのに対し、下部の粒界はやはり移動

図6 $T_f=700\text{K}$ の場合の温度変化

しなかった。この結果(図5)には図3, 4には見られなかった原子配列の乱れが見られる。

これらの結果(図3, 4, 5)に示されるように, y 方向の粒界移動には x 方向の粒界すべりが伴っている。この現象が粒界すべり-粒界移動と呼ばれるものであり, 実験^{(11)~(14)}やシミュレーション^{(15), (16)}で既に確認されている。

粒界が y 方向に1列移動したときに粒界すべり-粒界移動が1回起きたとして, この回数(頻度)を数えると, 上記の結果から, 温度が高いほど頻度が高いといえる。これは, ここで観測した粒界すべり-粒界移動が熱により活性化されることを示している。

この節の最後に $T_f=700\text{K}$ の場合の温度変化を図6に示す。系がほぼ 700K に保たれていることがわかる。他の場合も同様な温度変化を示す。

3.2 試料2を用いた場合の計算結果 この節では, 試料2を用いたシミュレーション結果を温度の低い方から示す。まず, $T_f=650\text{K}$ の結果(図7)を見ると, 2つの粒界は連動し, 始め40,000ステップまでに y の正の向きに2列移動した後, 52,000ステップまでに y の負の向きに1列移動している。つづいて $T_f=700\text{K}$ の結果(図8)を見ると, 2つの粒界は, 32,000ステップまでに y の正の向きに2列移動している。その後94,000ステップまでに中央部の粒界付近で原子配列が乱れてくる。これらの結果(図7, 8)を見ると, 3.1節でも見られたように, 2つの粒界は連動して粒界間距離を一定に保つように移動している。

次に, $T_f=750\text{K}$ の結果(図9)をみると, 中央部の粒界は, 始め84,000ステップまでに y の負の向きに1列移動した後, 92,000ステップまでに y の正の向きに1列移動している。これに対し, 下部の粒界付近の原子配列は乱れている。つづいて $T_f=850\text{K}$ の結果(図10)をみると, 中央部の粒界は, 始め16,000ステップまで

図7 試料2を用いた粒界すべり-粒界移動 ($T_f=650\text{K}$) 図8 試料2を用いた粒界すべり-粒界移動 ($T_f=700\text{K}$)

に y の正の向きに1列移動した後, 16,800ステップまでに y の負の向きに1列移動しているが, 下部の粒界は移動しなかった。また, この後に図9の結果と同様に下部の粒界付近に原子配列の乱れが見られる。

これらの結果(図7, 8, 9, 10)から, 粒界すべり-粒界移動の頻度は, 温度が高いほど高いとはいえない。この結果は試料1の場合と異なるものである。この原因は, 粒界間距離の小さい試料2のほうが試料1に比べて原子配列が乱れやすく, 熱が原子配列を乱すことに使われてしまうためであると考えられる。

図9 試料2を用いた粒界すべり-粒界移動 ($T_f=750\text{K}$)

図10 試料2を用いた粒界すべり-粒界移動 ($T_f=850\text{K}$)

3.3 結果のまとめ 3.1節および3.2節の結果から、次のようなことがいえる。

- (1) 試料1, 2の双方とも比較的低い温度においては原子配列を保つ傾向が強く、2つの粒界は連動して粒界間距離を一定に保つように移動する。
- (2) 試料1, 2の双方とも温度が高くなると原子配列を保つ傾向が弱くなり、2つの粒界が連動する傾向も弱くなる。
- (3) 同じ温度で比較すると、粒界間距離の小さい試料2のほうが試料1に比べて粒界すべり-粒界移動を起こす際に原子配列を保つ傾向が弱く、2つの粒界が連動する傾向も弱い。
- (4) 試料2の原子配列に顕著な乱れが生ずる程度の高温($T_f=750\text{K}$, 850K)では、同じ温度で比較すると、粒界間距離の小さい試料2のほうが試料1に比べて粒界すべり-粒界移動の頻度が低い。
- (5) 試料1については温度が高いほど粒界すべり-粒界移動の頻度が高い。

図11 Region IIのRegion Iに対するすべり

3.4 結果の考察 3.3節の(1)のメカニズムは次のようなものであると考える。図11のRegion IおよびIIの内部は単結晶であり、比較的温度が低い場合、それぞれの原子配列を保つ傾向が強い。そして、熱活性によってRegion IIの原子がその原子配列を保ったままRegion Iの原子に対してベクトル $\mathbf{n}$ だけ移動すると、2つの粒界は連動して y の正の向きに1列移動する(ここで、ベクトル $\mathbf{n}$ は、 a を格子定数とし、 $\mathbf{i}$ を x の正の向きの単位ベクトルとして $\mathbf{n}=(a/\sqrt{10})\mathbf{i}$ と定義される)。このメカニズムでは、原子配列を保つ傾向と2つの粒界が連動する傾向は一致する。

このメカニズムに従って3.3節の(2)を説明すると、温度が高い場合には図11のRegion IおよびIIの内部において原子配列を保存する傾向が弱くなるため、2つの粒界が連動する傾向は弱くなるものと考えられる。

同様に、3.3節の(3)を上記のメカニズムに基づいて説明すると、粒界間距離の小さい試料では図11のRegion IおよびIIの原子配列を構成している原子数が少なく、その原子配列を保つ傾向が弱いいため、2つの粒界が連動する傾向も弱いと考えられる。

上記の説明に用いたベクトル $\mathbf{n}$ は、DSC (Displacement Shift Complete^{(4)~(6)}) 転位のバーガスベクトルそのものであり、本研究のシミュレーションで観測した粒界すべり-粒界移動はDSC転位の発生・移動によって生ずるものと考えられる。3.3節の(3)で述べたように粒界間距離の小さい試料は原子配列が乱れやすい。したがって、DSC転位の発生・移動が抑制されると考えられる。このために、3.3節の(4)で述べたような結果が得られたと考えられる。

4. 結 論

粒界間距離の大きな試料1と小さな試料2を用いて、アルミニウム粒界 $\Sigma=5$ の熱活性による粒界すべり-粒界移動現象を分子動力学法で調べ、以下の結論を得た。

- (1) 試料1, 2の双方とも、比較的低い温度では原子配列が保存され、2つの粒界は連動して粒界間距離を一定に保つように移動する。
- (2) 試料1, 2の双方とも、温度が高いほど原子配列を保つ傾向が弱く、2つの粒界が連動する傾向も弱い。
- (3) 同じ温度で比較すると、粒界間距離の小さい試料2のほうが試料1に比べて粒界すべり-粒界移動を起こす際に原子配列を保つ傾向が弱く、2つの粒界が連動する傾向も弱い。
- (4) 試料2の原子配列に顕著な乱れが生ずる程度的高温では、同じ温度で比較すると、粒界間距離の小さい試料2のほうが試料1に比べて粒界すべり-粒界移動を起こしにくい。これは、原子配列の乱れた試料2においては、DSC転位の発生・移動が抑制されるためであると考えられる。
- (5) 原子配列を保つ傾向の強い試料1については、温度が高いほど粒界すべり-粒界移動を起こす頻度が高く、この現象が熱により活性化されることを示している。

文 献

- (1) H. Gleiter, *Phase Transitions*, **24/26** (1990), 15.
- (2) Nieman, G. W., Weertman, J. R. and Siegel, R. W., US DOE Rep. CONF-901105-73, (1990), 7.
- (3) Nieman, G. W., Weertman, J. R. and Siegel, R. W., *J. Mater. Res.* **6** (1991), 1012.
- (4) Ishida, Y., *Trans. JIM*, **11** (1970), 107.
- (5) Bollman, W., *Phil. Mag.*, **16** (1967), 383.
- (6) 堀内・栗原, 日本金属学会会報, **22** (1983), 90.
- (7) Pond, R. C., Smith, D. C. and Southerden, P. W., *Phil. Mag.*, **A37** (1978), 27.
- (8) Rae, C. M. F. and Smith, D. A., *Phil. Mag.*, **A41** (1980), 477.
- (9) Smith, D. A., *Dislocation Modelling of Physical Systems*, Ed. by Ashby, M. F., Bullough, R., Hartley, C. S. and Hirth, J. P., (1981), 569, Pergamon Press.
- (10) Smith, D. A. and King, A. H., *Phil. Mag.*, **A44** (1981), 333.
- (11) 福富・ほか3名, 日本金属学会会誌, **48** (1984), 1133.
- (12) 福富・田中, 日本金属学会会誌, **49** (1985), 607.
- (13) Takahashi, T. and Horiuchi, R., *Proc. 4th JIM Int. Symp. on Grain Boundary Structure and Related Phenomena*, Supplement to *Trans. JIM*, (1986), 707, The Japan Institute of Metals.
- (14) Sheikh-Ali, A. D. and Variev, R. Z., *Phys. Status Solidi (a)*, **117** (1990), 429.
- (15) Bishop, G. H., Harrison, R. J., Kwok, T. and Yip, S., *J. Appl. Phys.*, **53** (1982), 5596.
- (16) Bishop, G. H., Harrison, R. J., Kwok, T. and Yip, S., *J. Appl. Phys.*, **53** (1982), 5609.
- (17) 北村・ほか2名, 第36回日本学術会議材料研究連合講演会前刷集, (1992), 165.
- (18) 北村・ほか2名, 機械学会第70期全国大会講演論文集, No. 920-78, B (1992), 552.
- (19) Stohrham, A. M. and Taylor, R., *Handbook of Interatomic Potentials*, Vol. 2 Metals, (1981).
- (20) Heermann, D. W., *Computer Simulation Methods in Theoretical Physics*, (1990), 28, Springer-Verlag.