三次元離散転位力学法と境界要素法のマルチスケール解析と インデンテーション問題への応用*

都 留 智 仁^{*1}, 渋谷 陽 二^{*2}

Multiscale Modeling of Three Dimensional Discrete Dislocation Dynamics and Boundary Element Method and Its Application to Nanoindentation Problem

Tomohito TSURU^{*3} and Yoji SHIBUTANI

^{*3} Japan Atomic Energy Agency,
2-4 Shirakata Shirane, Toukai-mura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1195 Japan

In the nano-plastic deformation, material properties such as yield stress cannot be described by the average rate of whole dislocation behavior, and it becomes increasingly necessary to trace individual motion of dislocations. The relationship between indent load-displacement in nanoindentation test is the typical example of recognizable nano-plasticity. Molecular dynamics (MD) is one of the most effective methodologies to obtain dislocation motion directly. However, MD simulation depends on the computer power so strongly that it is difficult to treat mesoscopic behavior including collective dislocation motion. On the other hand, discrete dislocation mechanics (DD) based on dislocation theory has a unique ability to treat dislocation motion, although boundary value problem in the DD framework would pose considerable difficulties. In the present paper, we construct a combined approach including both DD and the boundary element method (BEM), and succeed in representing the stress field of dislocation in the vicinity of traction free surface. Finally, we apply this model to the nanoindentation problem and found the relationship between displacement burst and collective dislocation motion.

Key Words: Multiscale Modeling, Discrete Dislocation Dynamics, Boundary Element Method, Nanoindentation

1. 緒 論

金属材料は、建築物や橋などの構造材料のみならず、自動車や飛行機の動力伝達の駆動系や整形外科や歯科などの生体材料に挙げられるように、現代社会において我々の身の周りの生活を支える上で重要な役割を担ってきた。一方で、近年の微細化技術の発展により、シリコンデバイスやマイクロな電気機械システムの基板や配線に用いられる金属材料では、その個々の大きさはナノスケールに達しており、微細な材料も広く用いられるようになってきている。このような微細材料では、マクロな構造物では問題とならないような小さな欠陥が材料の破壊を引き起こす直接的な原因となりうるため、材料内部における転位などの欠陥構造の挙動を捉え、系全体に及ぼす影響を明らかにすることは、今後さらに微細化が進むナノテクノロジー全般を支え

る上で非常に重要になると考えられる。

ナノインデンテーション⁽¹⁾⁽²⁾は、nm のオーダーの押込みを行うことで薄膜などの微小材料の強度評価を実験的に行う手法として近年広く用いられている。結晶材料の押込みにおいては、ナノスケールに特有の現象として、押込み荷重-変位関係が弾性変形から押込み荷重一定のまま急激に押込み変位が増大する‘変位バースト’現象が報告されている⁽³⁾。これは、ナノスケールの塑性変形では、基礎メカニズムである転位の振る舞いが平均化されずに、直接的に駆動源とその応答の關係に反映されるためであると考えられている。しかしながら、実験によりこのような内部構造の挙動を動的に捉えることは困難であり、従来から原子論的手法が強力なツールとして広く用いられてきた。一方、原子論的手法では、解析対象が計算機の性能に依存するため現実のスケール問題を扱うことは事実上不可能である。近年、このような問題を解決するためにナノからマクロまでの範囲を取扱うことができるマルチスケールモデルを構築する試みが行われているが、欠陥の挙動とマクロな場を同時に捉えることができるよう

* 原稿受付 2008 年 1 月 21 日。

^{*1} 正員, 日本原子力研究開発機構原子力基礎工学研究部門
(〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2-4)。

^{*2} 正員, 大阪大学大学院工学研究科機械工学専攻(〒565-0871 吹田市山田丘 2-1)。

E-mail: tsuru.tomohito@jaea.go.jp

な統一的方法はいまだ確立されていない。本研究では、古典転位論によって転位の運動を記述する三次元離散転位動力学法 (DD) を導入し、重ね合わせの原理に基づいた境界要素法 (BEM) との連結手法によるマルチスケールモデル (DD-BEM) を構築する。そして、ナノインデンテーションで観察されるナノスケールの塑性現象を解明することを目的とする。

2. 解析方法

2.1 離散転位動力学法 DD は、古典的な転位論に基づいて転位の運動を記述する方法論である。まず、固体中の転位ループはいくつかの転位セグメントに分割される。分割の方法として、Kubin らによる転位ループを完全な刃状成分とらせん成分で表現する方法⁽⁴⁾があるが、本研究では、転位ループを少ない自由度で直線混合転位によって記述する Zbib らによる方法⁽⁵⁾を採用した。各転位セグメントは、図 1 に示すように、すべり面の法線ベクトル $\mathbf{n}$ 、バーガースベクトル $\mathbf{b}$ 、およびセグメント両端の座標 node1, node2 の情報を有している。実際の転位の運動は、温度や速度依存の格子振動との相互作用や慣性力などの影響のために、単純な運動方程式で記述することは困難である。本研究では、速度に対して一定のモビリティをもつと仮定し、個々の転位セグメントの運動は次式で示す線形モデルで記述されるとする。

$$\mathbf{v}_{gi} = \mathbf{M}_{gi} \mathbf{F}_g \quad (1)$$

ここで、 $\mathbf{v}_{gi}$ は転位のすべり方向の速度成分、 $\mathbf{F}_g$ は転位に働くすべり方向の力、 $\mathbf{M}_{gi}$ は転位の運動のモビリティであり、実験などの経験的に得られた値や熱活性を考慮した確率論的手法により求められる⁽⁶⁾。転位に働く力は、次式に示すように転位に働く応力場から得られる Peach-Koehler 力と隣接セグメントから受ける力で定義される。

$$\mathbf{F}_i = \left(\sum \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{b}_i \right) \times \boldsymbol{\xi}_i + (\mathbf{F}_{i,i+1} + \mathbf{F}_{i,i-1}) \quad (2)$$

Fig. 1 Discretization of a dislocation loop.

ここで、第一項の $\boldsymbol{\sigma}$ は負荷応力、他の転位セグメントが生成する応力場、および境界条件の影響などを含んだ応力テンソルである。また、 $\mathbf{b}_i$ は burgers ベクトル、 $\boldsymbol{\xi}_i$ は転位の line-sense ベクトル、 $\mathbf{F}_{i,i+1}$ と $\mathbf{F}_{i,i-1}$ は隣接転位セグメントから受ける力⁽⁶⁾である。なお、他の転位から受ける応力場は DD の基礎となる部分であり、本解析では Devincres⁽⁷⁾によって導かれた表式を用いて評価している。

2.2 DD と BEM の連結手法

一般の DD シミュレーションでは、転位は常に無限体中存在することが仮定されて相互作用が評価されるため、任意の境界条件を考える際にはさらなる工夫が必要となる。自由境界を含んだ問題に関して、図 2 に示すように、材料内部に存在する転位が表面に及ぼす影響に対して、反対方向のイメージフォースを負荷し、無限体を仮定して計算される場と重ね合わせることより実現される。二次元の場合、このイメージフォースは転位論で示されるように、自由表面に対して鏡像転位を置くことで与えられることが知られているが⁽⁶⁾、三次元の場合は、鏡像転位を置くだけでは自由境界上でせん断成分をキャンセルすることができない。そのため、境界上にプリズマティック型の転位網を仮想的に与えるものや、平面の境界では、Boussinesq の点荷重の解を用いた方法が考えられているが⁽⁸⁾、複雑な形状の表面に対しては適用することができない。そのため、連続的な数値解析と組み合わせたモデルとして、有限要素法 (FEM) を用いた方法が広く考えられている⁽⁸⁾⁽⁹⁾。本研究では、連続体的手法との連結に BEM を用いることで、DD-BEM によるマルチスケールモデルを構築した。FEM と BEM のマルチスケールモデルにおいて、それぞれの特徴を引き継いだ解析が行われるが、DD と連結する上では BEM が非常に大きな利点を持つ。まず、DD では転位の運動を記述する際に必要な応力場を全てのセグメントの midpoint で評価する必要がある。連結に FEM を用いた場合、任意の点の応力場は積分点でしか得られず、補間を用いる必要があるが、BEM ではセグメント中心を内点として入力することで、境界積分方程式の解を用いて内点公式から直接計算することができる。また、各々の境界接点上におけるイメージフォースは、全ての転位セグメントが表面に生成する応力場は、Devincres の表式⁽⁷⁾を用いて直接計算できる。解析手順を以下に示す。

- I. Devincres の表式⁽⁷⁾を用いて、全ての転位が及ぼす境界接点上の応力を計算し表面力を求める。
- II. 全ての境界接点について、表面力の反作用としてのイメージフォースを負荷する。

Fig. 2 Implementation of traction free surface by principle of superposition.

- III. 与えられた条件の下で、境界積分方程式を解く。
- IV. 各転位セグメントの中点を内点として、個々の転位セグメントに働く応力を計算する。
- V. 各転位セグメントに対し、式 (2) から Peach-Koehler 力を求め、式 (1) から転位の速度を求める。
- VI. 与えられた時間ステップの下で式 (1) の数値積分を行う。

以上の I~VI の手順を繰り返す行い、刻々の転位の配置に応じて生成される応力場の下での転位の運動が記述される。

3. DD-BEM モデルによる自由表面の評価

構築された DD-BEM モデルの検証として、図 3 に示すような自由表面近傍にある転位が生成する応力場を考える。転位は十分長い直線の刃状転位を仮定し、自由表面からの距離が $50b$ のときの応力場を評価する。このとき、前述の鏡像転位の概念を導入することで二次元の弾性解を用いた解析解が得られ、DD-BEM モデルとの比較を行った。高積層欠陥エネルギーのためほぼ完全転位の形で結晶中に存在するアルミニウム (Al) を対象に、材料特性を、Burgers ベクトルを $b = 2.86 \text{ \AA}$ 、せん断弾性係数を $G = 27.6 \text{ GPa}$ 、ポアソン比を $\nu = 0.345$ とし、すべり面法線ベクトルが $[111]$ 方向、Burgers ベクトルが $[\bar{1}10]$ 方向の転位が生成する

Fig. 3 Analytical model of perfect edge dislocation located near free surface.

応力場を図 4 に示す。ここで、DD-BEM モデルと弾性解それぞれのせん断応力 τ_{zx} を、(i) 無限体を仮定した応力場、(ii) 自由表面での表面力をキャンセルするためのイメージ力による応力場、(iii) 重ね合わせの応力場を $0b \sim 100b$ の範囲で示している。図の (i)~(iii) において、応力のオーダーと分布の様子ともに、DD-BEM モデルは弾性解と非常によく一致しており、(a), (b) いずれも (iii) の $x = 0$ では無限体の応力場とイメージ力の応力場の重ね合わせにより、応力が 0 に減衰していく様子が観察される。よって、自由表面近傍の転位の応力状態は DD-BEM モデルを用いてよく再現できるといえる。ただし、図 4(b)(ii) の場合では、応力分布は自由表面から $2b$ 以内の距離になると大きく乱れており、これは、内点公式の精度が境界近傍で特異積分の影響を受けるという BEM の特徴によるものである。この領域の誤差が転位の運動に与える影響について検討するため、転位が存在する位置に関して、自由表面からの距離を $5b \sim 400b$ まで変化させた場合の転位が受けるせん断応力を図 5 に示す。自由表面からの距離が $100b$ 以内になるとせん断応力は、急激に上昇し始め、 $25b$ では 100 MPa 以上もの大きな値になることがわかる。一方、距離が $200b$ では 3.0 MPa 、 $300b$ 以上になると応力は 1 MPa 以下になり、これは Al バルク内を転位が運動するときの Peierls 応力 ($10^{-4}G$)⁽¹⁰⁾ よりも小さい値である。また転位に働く Peach-Koehler 力の方向は常に表面の法線ベクトルに対して 90° 以下になり、表面に抜けようとする力が働く。すなわち、転位に表面によるイメージ力以外の負荷がかかっていない場合は、 $200b$ よりも小さくなると転位は自発的に表面に運動し、それよりも大きくなると静止した状態を保つことがわかる。以上のことから、十分細かい境界要素を考え、自由表面からの距離が $50b$ 以下になる場合には転位は表面に抜けて消滅するという局所ルールを導入することで、転位の運動特性を損なうことなく BEM の欠点を解消することができる。

4. DD-BEM モデルによる押込み解析

DD の方法論としての基礎は、与えられた転位の運動を記述することであり、転位はあらかじめ与えられなければならない。そのため、単結晶材料の押込み解析を行うために以下の基準を与えて転位の生成を仮想的に扱った。まず、MD の結果から、球圧子を用いたときの転位が射出される臨界圧力 p_c は、圧子半径によらない材料固有の値であることがわかっている⁽¹¹⁾⁽¹²⁾。また、MD シミュレーションの変位制御に対して、DD-BEM シミュレーションでは後述のように圧力制御で

Fig. 4 Stress field calculated by DD-BEM model and analytical solution.

Fig. 5 Relationship between effective shear stress and distance from the free surface.

実行される。そこで、MD で得られた p_c の値を用いて、平均圧力がこの値に達したときに、押込み面に平行な Burgers ベクトルをもつすべり系を除いた 8 つのすべり系をランダムに選択するような転位セグメントを導入し、(001) 面に対する押込みの転位の射出を表現した。さらに、MD から押込み下では転位は圧子下の内部領域から射出され、観察される転位の双極子が表面に抜けることがわかっているが、配置された転位セグメントとして Frank-Read 源を考えると、次々に起こる射出を転位の増殖として再現するとともに表面方向に運動する転位双極子を再現する。

また、押込み問題は圧子と材料の接触問題であるた

め、本来押込みステップ毎に接触領域を決定する収束計算が必要となる。しかしながら、本研究の目的は接触問題を厳密に解くものではなく、さらに計算の効率化のため、与えられた平均圧力において圧子を剛体としたときの Hertz の線形弾性解⁽¹³⁾を用いて押込みによる負荷を記述する。まず、次式のように接触半径 a と圧力分布 $p(r)$ を仮定する。

$$a = \frac{\pi p_0 R}{2E^*} \quad (3)$$

$$p(r) = p_0 \left\{ 1 - \left(\frac{r}{a} \right)^2 \right\}^{1/2} \quad (4)$$

ここで、 p_0 は最大圧力、 R は球圧子の半径、 E^* は押込み弾性係数である。また、最大圧力 p_0 と平均圧力 p_m は、式 (4) を接触領域にわたって積分し接触面積で除することにより、次式の関係で表せることがわかる。

$$p_m = \frac{\int_0^a p(r) \cdot 2\pi r dr}{\pi a^2} = \frac{2}{3} p_0 \quad (5)$$

以上のように、式 (3) ~ 式 (5) の Hertz の解を用いて、平均圧力制御の押込み解析を行うことができる。具体的には、図 6 の押込みモデルの模式図が示すように、接触半径 a 内の領域には押込み負荷を、外側の領域にはイメージフォースを考え、DD-BEM モデルの境界条件とする。なお、 a 内の領域は、実際には圧子と材料の異相境界となるため、両者の材料特性を考慮して変位

Fig. 6 Combined model of DD and BEM for nanoindentation.

の連続条件を満たすようなイメージフォースを考えなければならないが、圧子による荷重が支配的であるため無視できるものとする。以上の方法を用いて、一辺 $2.8 \mu\text{m}$ の解析領域に半径 $0.4 \mu\text{m}$ の球圧子を用いて押込み解析を行った。解析対象は Al 単結晶とし、 $x[100]$, $y[010]$, $z[001]$ の座標系を考え、押込み軸を z 方向とする。また、材料特性は自由表面の評価で用いたものと同様の値を用い、パイエルス応力を $\tau_{\text{PN}} = 2.0 \text{ MPa}$ 、転位のモビリティを $M_g = 1000 (\text{Pa} \cdot \text{s})^{-1(14)}$ とした。押込み深さが $h = 90 \text{ nm}$ のときの境界積分方程式から得られた表面上の変位場の分布とそのときの転位の描像をあわせて図 7(a) に、同じ深さにおける xz 面上 ($y = 0$) の応力分布を図 7(b) に示す。図の (a) では、押込み面の境界接点と転位セグメントを可視化しているが、MD による解析領域と比べて 1.3×10^{12} 個もの原子を含んだ領域に相当し、DD-BEM では少ない自由度で多数の転位の運動を記述できることがわかる。また、図の (b) では、応力分布はセグメント中心とは別に格子状の代表点を設定し、BEM によって計算される境界値問題の解として得られる応力場と、すべての転位が代表点に及ぼす影響との重ね合わせによって計算している。 xz 面上 ($y = 0$) の分布は、(i) σ_{zz} と (iv) τ_{zx} では押込みの影響が支配的であり、圧子直下に大きな圧縮応力とほぼ対称なせん断応力が分布することがわかる。(ii) τ_{xy} と (iii) τ_{yz} は、押込みによる応力分布は存在しないため、転位の影響が支配的となると考えられる。図では、転位の存在により不均質な場を形成することが観察されるが、そのオーダーは押込みの場と比べて非常に小さいことがわかる。これは、押込み試験において内部に存在する転位は押込み荷重に対して大きな影響を与えないことを示唆している。次に、変位バーストと転位挙動の関係を調べるため、DD-BEM モデルに

(a) Overview of dislocation and displacement field ($h = 90 \text{ nm}$)

(b) Stress distribution under nanoindentation ($h = 90 \text{ nm}$)

Fig. 7 Overview of dislocations under nanoindentation and stress distribution by DD-BEM model.

によって得られた荷重-変位を図 8 に示す。ここで、図には転位が存在しない場合の BEM のみから得られる解と、転位は存在するが表面に運動する転位双極子によって表面ステップを形成するものとし、ないものの 3 つの場合を示している。図から、内部に転位が存在していても表面にステップを形成しない場合は、転位が存在しないものと同様の結果を示しており、内部に存在する転位が荷重-変位関係に与える影響が小さいことを裏付けている。一方、表面にステップを形成する場合は弾性変形後のある点で急激に変位が増大する現象が観察されることから、ナノスケールの押込みにおいて、転位による表面ステップが非常に大きな影響を及ぼしていることがわかる。また、前報の押込みのエネルギーと転位のエネルギーのつり合いによる数理モデルにより、射出する転位数とバースト幅の関係がよく説明されている⁽¹⁵⁾⁽¹⁶⁾。以上の結果から、実験のナノインデンテーションで観察される変位バース

Fig. 8 Relationship between indent load and depth on the several different conditions.

トは、転位の生成と同時に表面側に射出される転位双極子による表面ステップによって引き起こされると結論づけられる。

5. 結 論

重ね合わせの原理に基づき、離散転位力学法と境界要素法との連結によるマルチスケールモデル (DD-BEM) の構築を行った。その結果、DD-BEM モデルによって自由表面近傍にある転位の応力場は、鏡像転位を用いて得られる応力場と非常によく一致することを確認した。また、自由表面近傍にある転位は引力を受け、その影響は表面からの距離が $200b$ 以下になると顕著になる一方、 $300b$ 程度になると Peierls 応力よりも小さくなることを示した。同時に、 $50b$ 以下になると表面で消滅する局所ルールを導入することで、境界近傍での精度が落ちる BEM の欠点が解消できることを示した。さらに、この DD-BEM モデルに Hertz の解を応用し、ナノインデンテーション下の転位の生成と運動を記述した。そして、ナノインデンテーション下では内部に存在する転位が系全体に与える影響は非常に小さく、変位バーストは転位の生成と同時に生成される転位双極子による表面ステップによって引き起こされることを説明した。

謝 辞

本研究は、科学研究費補助金 (特別研究員奨励費 (179504)、若手研究 (スタートアップ) (19860088)、基盤研究 (S) (20226004)) の援助を得た。ここに謝意を表す。

文 献

- (1) Pharr, G. M., et al., On the Generality of the Relationship among Contact Stiffness, Contact Area, and

Elastic Modulus during Indentation, *Journal of Materials Research*, Vol. 7, No. 3 (1992), pp. 613–617.

- (2) Oliver, W. C. and Pharr, G. M., An Improved Technique for Determination Hardness and Elastic Modulus Using Load and Displacement Sensing Indentation Experiments, *Journal of Materials Research*, Vol. 7, No. 6 (1992), pp. 1564–1583.
- (3) Suresh, S., et al., Nano-indentation of Copper Thin Films on Silicon Substrates, *Scripta Materialia*, Vol. 41, No. 9 (1999), pp. 951–957.
- (4) Kubin, L. P., et al., Mesoscopic Modelling and Simulation of Plasticity in fcc and bcc Crystals: Dislocation Intersections and Mobility, *Journal of Computer-Aided Materials Design*, Vol. 5, No. 1 (1998), pp. 31–54.
- (5) Zbib, H. M., et al., On Plastic Deformation and the Dynamics of 3D Dislocations, *International Journal of Mechanical Science*, Vol. 40, No. 2 (1998), pp. 113–127.
- (6) Hirth, J. P. and Lothe, J., *Theory of Dislocations*, 2nd edition, Wiley, New York, 1982.
- (7) Devincere, B., Three Dimensional Stress Field Expressions for Straight Dislocation Segment, *Solid State Communications*, Vol. 93, No. 11 (1995), pp. 875–878.
- (8) Fivel, M. C., et al., Implementing Image Stresses in a 3D Dislocation Simulation, *Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering*, Vol. 4, No. 6 (1996), pp. 581–596.
- (9) Giessen, E. v. d. and Needleman, A., Discrete Dislocation Plasticity: A Simple Planar Model, *Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering*, Vol. 3, No. 5 (1995), pp. 689–735.
- (10) Lu, G. and Kaxiras, E., Can Vacancies Lubricate Dislocation Motion in Aluminum?, *Physical Review Letters*, Vol. 89, No. 10 (2002), pp. 105501.
- (11) Tsuru, T. and Shibutani, Y., Atomistic simulations of elastic deformation and dislocation nucleation in Al under indentation-induced stress distribution, *Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering*, Vol. 14, No. 5 (2006), pp. S55–S62.
- (12) Tsuru, T. and Shibutani, Y., Anisotropic effects in elastic and incipient plastic deformation under (001), (110), and (111) nanoindentation of Al and Cu, *Physical Review B*, Vol. 75, No. 3 (2007), pp. 035415.
- (13) Johnson, K. L., *Contacts Mechanics*, Cambridge University Press, Cambridge, 2003 (First published 1985).
- (14) Zbib, H. M. and Rubia, de la T. D., A Multiscale Model of Plasticity, *International Journal of Plasticity*, Vol. 18, No. 9 (2002), pp. 1133–1163.
- (15) Shibutani, Y., et al., Nanoplastic deformation of nanoindentation: crystallographic dependence of displacement bursts, *Acta Materialia*, Vol. 55, No. 5 (2007), pp. 1813–1822.
- (16) Tsuru, T. and Shibutani, Y., Theoretical Investigation of the Displacement Burst observed in Nanoindentation by Collective Dislocation Loops Nucleation Model, *Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series A*, Vol. 73, No. 732 (2007), pp. 877–882.