

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 29 年 6 月 7 日現在

機関番号：13701

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26420014

研究課題名(和文)モードIき裂における局所格子不安定領域の定量評価

研究課題名(英文)Quantitative evaluation of local lattice instability in mode I crack tip

研究代表者

屋代 如月(YASHIRO, Kisaragi)

岐阜大学・工学部・教授

研究者番号：50311775

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,900,000円

研究成果の概要(和文)：原子レベルでの破壊基準を、局所格子不安定の視点から議論するため、bcc鉄、ダイヤモンド構造シリコン、hcpマグネシウムなど様々な結晶中のモードIき裂の分子動力学シミュレーションを行うとともに、原子弾性剛性係数の正值性・負の固有値の固有ベクトルなどからき裂進展挙動を議論した。鉄に比べて脆性材料のシリコンは進展時の不安定領域が小さいこと、マグネシウムもき裂先端からの転位射出を生じない場合は不安定領域が局所化し、変形モードが固有ベクトルで評価できることなどを明らかにした。

研究成果の概要(英文)：Toward the new fracture mechanics in the atomic scale, we performed various molecular dynamics simulations on mode I crack in bcc-Fe, diamond-Si and hcp-Mg and discussed their different behavior from the original viewpoint of local lattice instability. The atomic elastic stiffness (AES) is defined as the second order derivatives of the energy of each atom and the negative eigenvalue of the AES means the existence of unstable deformation path. The unstable area of Si is very localized to single lattice, compare to that in bcc-Fe which is wide butterfly shape of a few atomic lines around the crack tip. The area of hcp Mg is also localized for the brittle cracking in the basal plane while it is also widely spread in the butterfly shape for the ductile dislocation emission in the prismatic plane. We've succeeded to visualize the unstable deformation mode by the principal axis of the strain tensor  $[e_{ij}]$ , of which components are the eigenvector of the negative eigenvalue atoms.

研究分野：計算材料科学, 固体力学

キーワード：局所格子不安定 き裂 シリコン マグネシウム 応力拡大係数 不安定変形モード

## 1. 研究開始当初の背景

申請者は、転位の発生・移動時や微視的へき開の発生時に生じる原子結合の切断・組み換えを局所の結晶格子の不安定崩壊と捉え、格子力学における不安定解析を元にした様々な検討を行ってきた。閾値ではなく、「安定か不安定か」という基準を用いて局所変形の開始を議論することで、用いた原子間ポテンシャルによらない普遍的なメカニズムを抽出することを目指してきた。具体的には、原子弾性剛性係数すなわち各原子位置における局所変形抵抗  $B_{ij}^{\alpha}$  を評価し、その正值性を基準として転位や粒界、アモルファス構造等の変形メカニズムを議論してきた。6x6 マトリックスとなる  $B_{ij}^{\alpha}$  の正值性を、行列式  $\det B_{ij}^{\alpha}$  の正負で判断することで、Ni ナノワイヤの引張で発生した部分転位は、前縁の原子の  $B_{ij}^{\alpha}$  が不安定となっていること、また、bcc 鉄中のらせん転位に関する検討では、転位芯原子は、無負荷平衡状態では不安定ではなく、外力を受けて転位が移動し始めるときに初めて転位芯に負の原子が現れることも分かっている。このように、 $\det B_{ij}^{\alpha}$  が局所変形開始の有力な基準となりうることを示してきた。さらに、表面や粒界等の力学特性を局所格子不安定性の観点から統一的に評価する研究を展開し、表面エネルギーと  $\det B_{ij}^{\alpha}$  分布の関係など、結晶欠陥と局所格子不安定性の対応を精力的に追求してきた。しかしながら、ナノ材料の変形破壊に重点を置いていたために、従来材料の破壊において最も重要視されるき裂への適用は積極的には進めていなかった。

## 2. 研究の目的

き裂を対象とした原子シミュレーションは古くから行われており、応力拡大係数やエネルギー開放率等との議論もなされている。計算機能力が十分でなかった 1970 年代には、き裂開口時の原子結合切断を簡略化してモデル化することで、格子力学的な視点からき裂の進展を議論した検討がすでになされている。一方、その後の計算機能力の発展によって、より実際に近い条件でのシミュレーションが多数行われるようになったが、複雑な条件下でのき裂の進展や転位発生によるき裂の鈍化等、き裂近傍の微視的現象の観察にシフトしており、破壊力学との懸け橋となるような知見を得るには至っていないと考える。本研究では、fcc, bcc, hcp 金属、ダイヤモンド構造のシリコン等のき裂について、分子動力学シミュレーションによりき裂進展挙動を観察するだけでなく、各原子の原子弾性剛性係数の値を評価し、き裂進展や転位の射出等のイベント発生時の臨界寸法について定量的な検討を行う。また、連続体に対する線形破壊力学では、き裂先端の応力分布は応力拡大係数によって表されるが、その適用限界についても議論する。

## 3. 研究の方法

無限薄板の貫通き裂をモデル化した分子動力学シミュレーションを行い、各原子位置における原子弾性剛性係数を評価し、無負荷平衡時の局所不安定領域をまず測定する。原子弾性剛性係数は、各原子のエネルギー寄与の一回微分である原子応力、二回微分である原子弾性係数から評価される。先行研究の Ni や Fe で広く用いられている EAM ポテンシャルでは導出実績があるが、三体間の角度項がある Si の Tersoff ポテンシャルは導出が複雑だったため、瞬間瞬間の原子配置にひずみ摂動を与えて数値的に計算していた。今回の研究で効率的かつ正確に局所不安定モードを評価するために Tersoff ポテンシャルにおける原子弾性係数の定式化およびコーディングを行っている。無負荷平衡時の局所不安定領域を議論した後、き裂垂直方向の外力を与えてき裂進展・転位射出等をシミュレーションにより観察するが、それらの非弾性的なイベント発生に至るまでの局所不安定領域の変化を逐次観察し、局所不安定領域の臨界寸法を定量的に評価する。この臨界寸法は、材料はもとより結晶方位やき裂表面等の構造的な要因、および、熱的ゆらぎによって変化すると考えられるので、まず熱揺動の影響を排除した極低温で検討する。さらに、これまで行列式で評価していた不安定基準をより正確なものとするため、負の固有値を示す (=不安定な) 原子の固有ベクトルを評価する手法を開発し、き裂進展や先端からの転位射出等の不安定変形モードを議論する。

## 4. 研究成果

(1) bcc-Fe とダイヤモンド構造の Si の違い  
まず EAM ポテンシャルでの実績のあった bcc-Fe について、[001](010)、[001](110)、[112](111)き裂 ([き裂前縁方向][き裂面)の表記) の 3 通りを対象として検討した。き裂長さや、セルの寸法・縦横比を変えた検討など様々なケースで局所格子不安定性を  $\det B_{ij}^{\alpha}$  の正值性で議論している。[001](010)き裂では、き裂先端から転位が射出し鈍化するため、先の Ni の検討などで報告済みのように、転位部分の原子は  $\det B_{ij}^{\alpha}$  が負になっている、ということを追認するだけの結果となった。一方、脆性的にき裂進展した [001](110) および [112](111)き裂では、き裂の寸法や配置等に関わらず、き裂が進展する直前では  $\det B_{ij}^{\alpha}$  が負の原子数がほぼ一定であることを見出している。[001](110)き裂は貫通き裂の先端でバタフライ形状に分布し、[001]方向に平行なおよそ 40 原子列が負の  $\det B_{ij}^{\alpha}$  がき裂進展時に発生している。一方、[112](111)き裂ではその分布は非常に小さくなり、[112]方向に平行方向に、およそ 13 原子列が負になっていることが確認された (図 1)。一方、脆性材料であるシリコンでもダイヤモンド構造ではあるが同じ結晶方位で検討した。行列式による不安定性評価からの発展として、弾性剛性係数マ

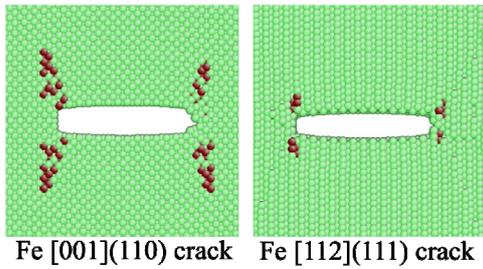


図 1 bcc-Fe の不安定原子列

トリクスの固有値(固有方程式  $B_{ij}^{\alpha} \Delta \epsilon_j = \eta^{\alpha} \Delta \epsilon_i$  の解)と固有ベクトルによる議論を行っている. Fe の場合と異なり, き裂進展前に負の原子群が多数現れるのではなく, 先端の一格子分の固有値が前駆的に大きな負値をパルス状に示しはじめ, その後急激に負の方向に不安定挙動を示した結果, き裂の不安定成長につながることを見出している. また, bcc-Fe や後述の Mg など, 金属に見られない Si 特有の現象として,  $\det B_{ij}^{\alpha}$  が完全結晶バルクの値よりも 1000 倍も高い正の値を持つ原子が, 引っ張り後期にき裂の前方に出現することを報告している (図 2, 青色の原子, 完全結晶の値を 1 として規格化). このようなき裂先端の安定原子の出現が, き裂先端からの転位射出を妨げ, シリコンの脆性的な特徴をもたらしている可能性がある. また, 急激に負となった原子の固有ベクトル  $\Delta \epsilon_i = (\Delta \epsilon_{xx}, \Delta \epsilon_{yy}, \Delta \epsilon_{zz}, \Delta \epsilon_{yz}, \Delta \epsilon_{zx}, \Delta \epsilon_{xy})$  を調べた結果, [001](010), [001](110), [112](111) き裂の不安定変形モードはそれぞれ  $\Delta \epsilon_{yy}$  (モード I),  $\Delta \epsilon_{xx}$  (入り込み・突き出し変形に対応, モード II),  $\Delta \epsilon_{xx}$  (モード III) が支配的になっていることを明らかにしている.

(2) き裂先端の応力分布・線形破壊力学からのずれ

hcp-Mg についても同様に底面, 柱面, 錘面き裂に関する検討を行い, 不安定原子の出現・分布・固有値を議論するとともに, 線形破壊力学との関連付けを試みた. 用いた EAM ポテンシャルにおいて, 結晶異方性を平均化して等方弾性体を仮定するとヤング率, ポアソン比はそれぞれ  $E=53.0\text{GPa}$ ,  $\nu=0.254$  となる. 底面, 柱面, 錘面の各表面エネルギー  $\gamma_s$  を求めて線形破壊力学から破壊靱性を

$$K_{IC} = \sqrt{2E\gamma_s/(1-\nu^2)}$$

により評価し, き裂が進展または先端から転位射出する直前の応力分布を線形破壊力学による予測

$$\sigma_{yy} = K_{IC}/\sqrt{2\pi r}$$

と比較した. 図 3 は転位射出直前の, 柱面き裂のき裂面上の原子の応力 (下図○プロット) と固有値  $\eta^{\alpha}$  の分布である. 下図の破線が無限体中のき裂先端の応力分布予測, 青線は今回提案した周期き裂を考慮した補正をした予測である. 脆性的に破断した底面き裂の場合, 負の固有値はき裂先端に限られており, また

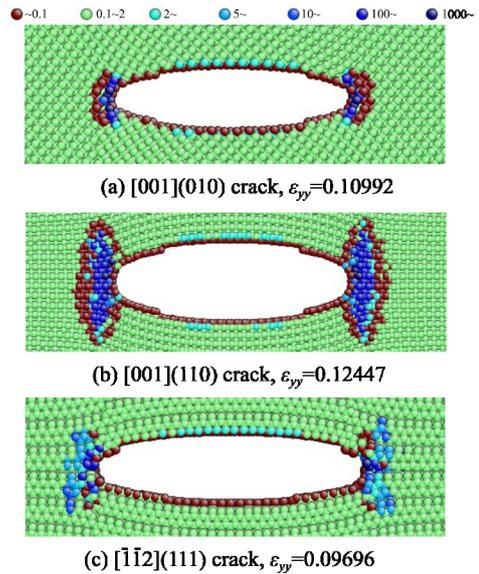


図 2 シリコンにおける「極めて安定な」原子の出現

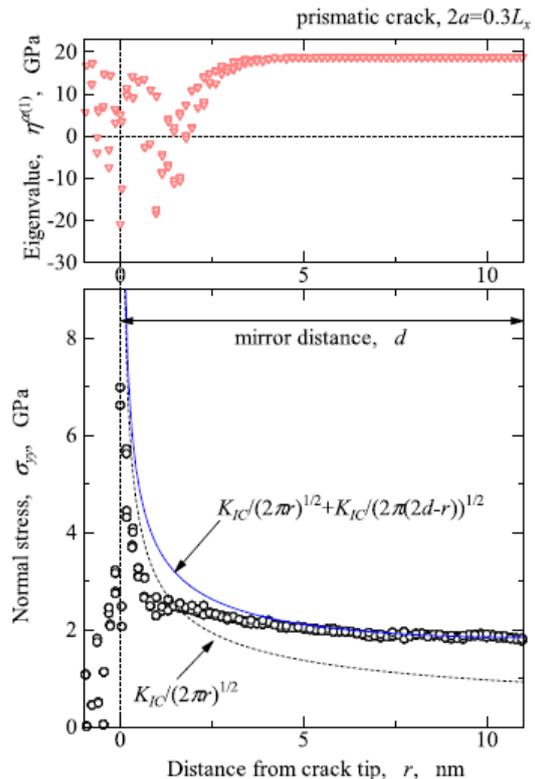


図 3 き裂面上の固有値の分布と線形破壊力学からのずれ (Mg 柱面き裂)

き裂不安定成長時の応力分布は線形破壊力学による予測と非常に一致を示した. 一方, 柱面き裂では先に示した図 1 の Fe(110) き裂のバタフライ形状がさらに拡大したような負の原子分布が認められた. これらの負の原子は後で述べるように不安定モードと結晶方位が一致していないため, 結晶構造に大きな変化はないが, 図 3 の上の固有値からわかるように個々の原子位置における弾性特性は連続体のそれと大きく変わっている

(連続体なら弾性特性は不変). このため、き裂先端の応力値は青線と○プロットで近い値を示しているものの、応力分布は線形破壊力学による予測から大きく異なるものとなることを明らかにした.

### (3)負の固有ベクトルの主軸方向によるモード解析

シリコンの解析では固有ベクトルの成分で変形モードを想定したが、当然 $\Delta\epsilon_{yy}$ ,  $\Delta\epsilon_{xx}$ ,  $\Delta\epsilon_{zx}$ などの代表的な変形モード以外の成分も生じており、変形モードを一般的に議論することが困難であった. そこで負の固有値を生じた原子について、固有ベクトルを成分とする3x3のひずみテンソルの主軸を固有値の大きさに応じてプロットすることで不安定モードを可視化する手法を開発した. 図4は極めて脆性的にき裂成長・破断するMg底面き裂の主軸を表したものである.  $x_3 > x_2 > x_1$ の順にひずみテンソルの主値は小さくなっている. 主軸の土の任意性を考慮すると、き裂先端の矢印群を180°回転させた、き裂面に対して完全に対称な変形モードが自然である. すなわち、大きな変形方向である $x_3, x_2$ には差がなく、もっとも小さな変形方向 $x_1$ はき裂面に平行な原子移動である. このように、hcp底面でへき開する場合は不安定モードが明確に可視化できる一方、柱面き裂での転位射出や、ジグザグに成長する錘面き裂では局所変形モードが極めて複雑になることもわかった. 図5は、柱面き裂で負の固有値を持つ原子の位置(緑色の点)と主軸(煩雑になるため $x_3$ のみ)をプロットしたもので、右上拡大図に★印をつけた原子のみ、き裂の表面に属し、柱面すべり方向の不安定モードを生じている. バタフライ形状に広く発生している不安定原子の不安定モードは引張軸に対して45°方向で、柱面すべり方向と一致していない. このような結晶構造と不安定モードの差が、実際の局所変形の発生の可否に重要であると考えられる.

### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計7件)

1. K. Yashiro, Local lattice instability analysis on mode I crack tip in hcp-Mg: Unstable mode for crack propagation vs. dislocation emission, Computational Materials Science, Vol.131, pp.220-229 (2017), 査読有
2. K. Naito, T. Tsutsumi, T. Yamada and K. Yashiro, Processing method utilizing stick-slip phenomenon for forming periodic micro/nano-structure, Journal of Materials Processing Technology, 238 (2016) 267-273, 査読有
3. K. Yamaguchi, K. Obata, S. Nakata, K. Sugano, K. Yashiro and Y. Isono, Electrical

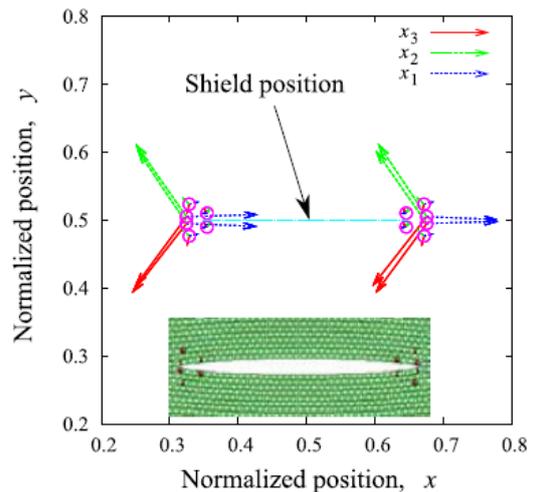


図4 Mg底面き裂のへき開不安定モード

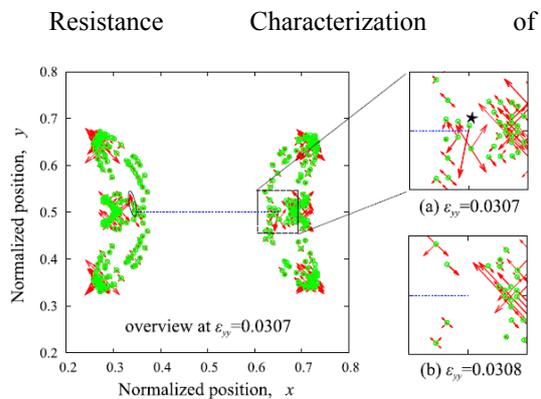


図5 Mg柱面き裂の転位不安定モード

Strain-Induced Multiwalled Carbon Nanotubes Using MEMS-Based Engineering Device, Sensors and Materials, Vol.28, No.2 (2016) pp.75-88, 査読有

4. K. Yashiro, Molecular Dynamics Study on Atomic Elastic Stiffness at Mode I Crack Tip in Si: Precursor Instability in Their Eigenvalue before Crack Propagation, Computational Materials Science, Vol.112, pp.120-127 (2016), 査読有
5. 屋代如月, 片山寛, 西川涼一郎, 吉原大志, Fe単結晶におけるモードI貫通き裂の局所格子不安定性解析(周期境界下のき裂配置の影響), 日本機械学会論文集, Vol.81, No.829, 15-00271(2015), 査読有
6. Y.Tomita, S. Nakata, T. Honma and K. Yashiro, Deformation Behavior of Silica-Filled Rubber with Coupling Agents under Monotonic and Cyclic Straining, International Journal of Mechanical Sciences, Vol.86, pp.7-17 (2014), 査読有
7. 屋代如月, 西村英晃, 分子動力学シミュレーションによるフラーレン・OLCの摩擦特性評価, 材料, Vol. 63, No. 2, pp.155-162 (2014), 査読有

[学会発表] (計 16 件)

1. 西川涼一郎, 内藤圭史, 屋代如月, 「bcc-Fe のねじれ粒界の引張シミュレーションとへき開き裂発生の局所格子不安定性解析」, 機械学会東海支部 第 66 期総会・講演会 (2017.3.13 静岡大学)
2. 寺田稜, 内藤圭史, 屋代如月, 「bcc-Fe の高圧下摩擦で発生する相変態の局所不安定解析」, 機械学会東海支部 第 66 期総会・講演会 (2017.3.13 静岡大学)
3. 屋代如月, 「Mg 中のモード I き裂の局所格子不安定性解析: 原子弾性剛性係数の固有ベクトルと変形主軸」, 機械学会東海支部 第 66 期総会・講演会 (2017.3.13 静岡大学)
4. 屋代如月, hcp-Mg におけるき裂発生と進展時の局所格子不安定性, 日本機会学会 第 29 回計算力学講演会 (CMD2016) (2016.9.22 名古屋大学)
5. 寺田稜, 内藤圭史, 屋代如月, 局所格子不安定性を用いた bcc-Fe の摩擦メカニズム解明, 日本機会学会 第 29 回計算力学講演会 (CMD2016) (2016.9.22 名古屋大学)
6. 西川涼一郎, 内藤圭史, 屋代如月, 局所格子不安定性による bcc-Fe のき裂発生および進展の評価, 日本機会学会 第 29 回計算力学講演会 (CMD2016) (2016.9.22 名古屋大学)
7. Local Lattice Instability at Mode I Crack Tip: Emergence of High Stiffness Zone in Si, K. Yashiro, International Symposium on Atomistic Modeling for Mechanics and Mutiphysics of Materials, ISAM4, 2016/06 (invited lecture)
8. 西川涼一郎, 屋代如月, 内藤圭史, bcc-Fe 中のき裂先端の局所格子不安定性: 原子弾性剛性係数の固有値, マルチスケール材料力学シンポジウム (第 21 回分子動力学シンポジウム・第 9 回マイクロマテリアルシンポジウム) (2016.5.27 富山大学)
9. 寺田稜, 屋代如月, 内藤圭史, 表面凹凸をつけた Fe の摩擦シミュレーション: 摩擦表面から離れたところに発生する不安定領域, マルチスケール材料力学シンポジウム (第 21 回分子動力学シンポジウム・第 9 回マイクロマテリアルシンポジウム) (2016.5.27 富山大学)
10. 屋代如月, 堀広志, 内藤圭史, ポリエチレン/グラファイト界面のはく離強度: 界面凹凸の影響, マルチスケール材料力学シンポジウム (第 21 回分子動力学シンポジウム・第 9 回マイクロマテリアルシンポジウム) (2016.5.27 富山大学)
11. 屋代如月, 吉原大志, 内藤圭史, マグネシウムにおけるモード I き裂先端の局所格子不安定性解析, マルチスケール材料力学シンポジウム (第 21 回分子動力学シンポジウム・第 9 回マイクロマテリアル

シンポジウム) (2016.5.27 富山大学)

12. 高分子材料の変形・破壊の分子動力学シミュレーション: 顕在化する境界条件の問題, 屋代如月, 15-1 高分子計算機科学研究会(東工大), 2015/11 【招待講演】
13. 単結晶 Si 中のモード I 貫通き裂の局所格子不安定性解析, 屋代如月, 第 28 回計算力学講演会 (横浜国立大学), 2015/10
14. モード I き裂先端の局所格子不安定性解析: Si 単結晶での検討, 屋代如月, 片山寛, 第 20 回計算工学講演会 (つくば国際会議場), 2015/06
15. アモルファスポリエチレンの押し込みで発現する粘弾性挙動, 屋代如月, 藤麻成貴, 日本材料学会 第 20 回分子動力学シンポジウム (山形大学), 2015/05
16. bcc 鉄モード I 型き裂先端における局所格子不安定性の分子動力学シミュレーション, 屋代如月, 片山寛, 第 27 回計算力学講演会 (岩手大学), 2014/11
17. Global vs. Local Instabilities of Pure Bcc Iron, K. Yashiro and T. Yamane, ICCM2014, Cambridge, England, 2014/07
18. BCC 鉄の転位, 表面, 粒界の力学特性と原子弾性剛性係数, 屋代如月, 永田祥一郎, 山根堯, 日本材料学会第 19 回分子動力学シンポジウム (福岡大学), 2014/05

[図書] (計 1 件)

1. 高分子架橋の反応・構造制御 事例集著者: 屋代如月, 技術情報協会, 単著, 鎖状高分子の reptation と架橋による内部構造変化, アモルファス高分子の変形シミュレーションにおける境界条件の検証, 2014

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

[その他]

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

屋代 如月 (YASHIRO, Kisaragi)

岐阜大学・工学部・教授

研究者番号: 50311775