

原子構造体の強度シミュレーション

Atomic Simulation on Deformation and Fracture of Small Component

北村隆行, 梅野宜崇, 平方寛之

Takayuki Kitamura, Yoshitaka Umeno and Hiroyuki Hirakata

京都大学大学院 工学研究科

(京都市左京区吉田本町 E-mail: kitamura@kues.kyoto-u.ac.jp)

The focus in this paper is put on the local behavior of deformation and fracture in small components. The distributions of stress and elastic constants are investigated using the atomic simulation technique. Moreover, the local fracture criterion is discussed on the basis of energy balance.

Key words : Atomic simulation, Stress, Elastic coefficient, Fracture, Deformation, Small component, Instability

1. 緒言

ナノテクノロジーの言葉に象徴されるように, 微小な材料についての関心が高まっている. とくに, 複雑な構造をもった電子デバイスや微小機械等, ナノメートル・オーダーの要素を組み合わせた構造の開発が活発になってきている. 一方, 構造体開発の歴史は, 「破損」, 「破壊」の歴史でもある. すなわち, 構造体の開発には, その材料の強度(変形と破壊)についての深い理解が不可欠であることを教えている. このようなナノメートル・オーダーの原子構造体の強度特性理解には, 原子レベルに立ち返って考えることが必要である. そこで, 著者らのグループにおいては, 第一原理解析から連続体解析までを行って, 原子構造体の変形・破壊特性について研究を行っている.

原子構造体の変形は, 弾性変形のように原子配置が変化しないもの(“きれいな”変形)と塑性変形のようにそれが変化するもの(“汚い”変形)に分けられる. 本稿では, 微小材料の強度特性を“きれいな”特性と“汚い”特性に分けて, 原子構造体の興味ある挙動について, 整理を試みる.

2. “きれいな”変形と連続体力学

2.1 応力拡大と破壊力学

Fig.1 に示すように, 基板上に付着している薄膜が端部よりはく離する場合について考える. 基板/膜の異材接合材料に負荷すると, 両材の変形ミスマッチによって界面端近

傍に応力特異場が現れることがある⁽¹⁾(Free edge 効果). 連続体力学では, このような応力拡大は膜厚に依存しない. しかし, 膜厚が原子数層~十数層であるナノメートル・オーダーの薄膜の場合に,

(A) 応力拡大が現れるのか?

(B) 連続体解析が適用できるのか?

(C) それらが破壊を支配することがあるのか?

については, 微小材料の界面強度を考える場合の基礎として明らかにしておく必要がある. そこで, 基板/ナノ薄膜の界面端近傍の応力分布について, 原子モデルと連続体モ

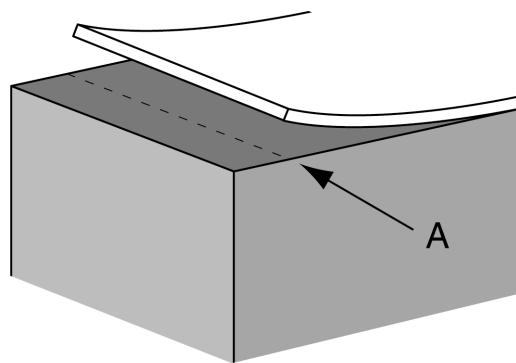


Fig.1 Illustration explaining delamination of thin film.

デルの比較を行った．ここでは，とくに(A)と(B)に着目して議論する．

Fig.2 は，原子モデルである．各原子間の相互作用は，

$$\Phi = D[\exp\{-2\kappa(r - r_0)\} - 2\exp\{-\kappa(r - r_0)\}] \quad (1)$$

の Morse ポテンシャルを用いて表した．このポテンシャル Φ は，ポテンシャルの中でもっとも簡単なものであり，原子 α と原子 β による相互作用(ポテンシャルエネルギー)が，それらの距離 r のみによって表される(2 体間ポテンシャル)．また，式(1)中の定数 D, κ, r_0 を調整することによって容易に弾性特性を制御することができる．本解析で用いた値を Table 1 に示す．予備的な検討より，このポテンシャルによるバルク材料の弾性的特性を明らかにしている．基本的な現象を解析するために，性質の良くわかった単純化したポテンシャルを用いたシミュレーションを行うことがあり，そのポテンシャルをモデルポテンシャルという．ここで用いている Morse ポテンシャルはそれに相当し，個々の原子間相互作用の厳密性より，本質を解析することを重視するシミュレーションとなっている．両材料の弾性特性は異なるが，格子間隔は同じである．なお，別途⁽²⁾，格子間隔にミスマッチがある場合(界面転位がある場合)についても検討を行っている．

Fig.2 に示すような，原子モデルによる薄膜(材料 1)と基板(材料 2)を作成した．基板下側 2 層の原子変位を拘束し，膜の端近傍の原子(図中の矢印)に引張り荷重増分(0.1nN 以下)を負荷した後に緩和計算を行った．負荷・緩和を繰り返して，薄膜がはく離するまで荷重を増加させた．

Fig.3 に，薄膜 / 基板界面の応力分布変化を示す．図中の破線は，本材を連続体と見なして有限要素法によって求めた応力分布である．Free edge 効果によって界面端近傍で，応力が発散する傾向が認められる．一方，印で示したものは原子シミュレーション(Fig.2)より得られた界面上の原子応力の分布である．ここで，原子応力とは，各原子における応力相当量である．すなわち，系全体のポテンシャルエネルギー Φ_{tot} が各原子のエネルギーの総和

$$\Phi_{tot} = \sum_{\alpha} \Phi^{\alpha} \quad (2)$$

として表されるとき(よく用いられている 2 体間ポテンシャルや多体ポテンシャルは，これに適合する)，系の応力 σ_{tot} が

$$(\sigma_{tot})_{ij} = \frac{1}{N} \sum_{\alpha} \sigma_{ij}^{\alpha} \quad (3)$$

$$\sigma_{ij}^{\alpha} = \frac{N}{V} \frac{\partial \Phi^{\alpha}}{\partial \varepsilon_{ij}} \quad (4)$$

となることより， σ^{α} を原子 α の応力とする考え方である⁽³⁾．ここで， N は原子数， V は体積， ε_{ij} は均質ひずみ(セルのひずみ)である．

Fig.3 より，原子応力にも界面端に向かって応力の拡大が認められる．さらに，多少のばらつきはあるものの，原子応力は破線で示した連続体の解と比較的に良く一致している．このように，“きれいな”変形においては，連続体力学の解は原子オーダーでも充分な適用性を有している．ナノ材料の特徴として，欠陥が少なく高強度(例えば，カーボンナノチューブ)であることがあげられる．これらで構成された微小材料の強度解析には，連続体力学解析が有効であることを示している．

Table 1 Parameters in Morse potential function.

	D, eV	$\kappa, 1/\text{nm}$	r_0, nm
Material 1	0.3429	13.59	0.2866
Material 2	0.7395	15.63	0.2751
Material 1-2	0.05036	14.61	0.2806

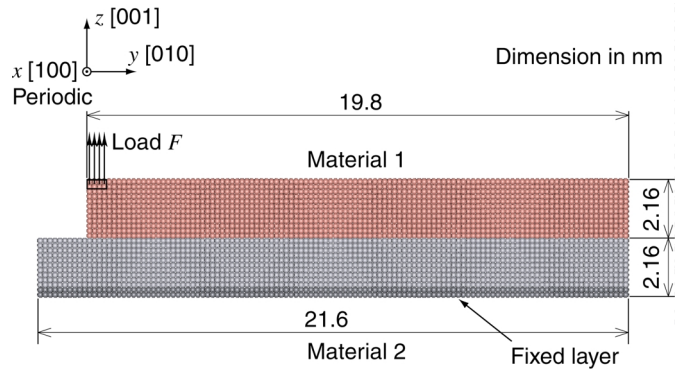


Fig.2 Atomic arrangement of thin film and substrate for the simulation.

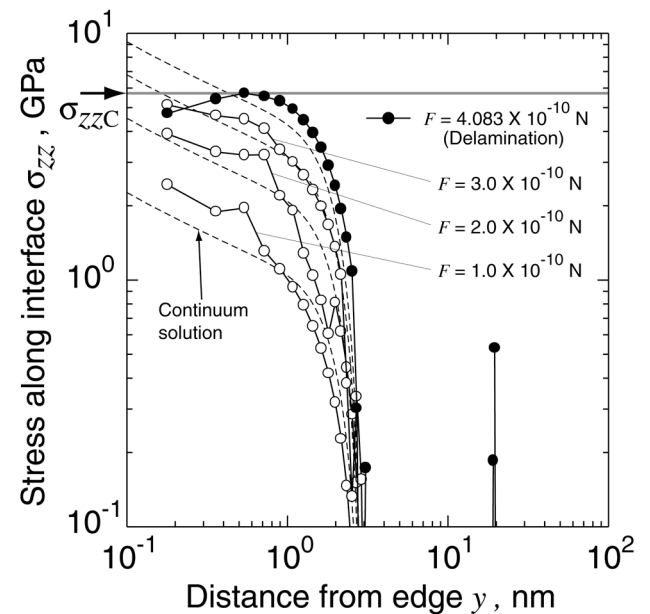


Fig. 3 Stress distribution along the interface between thin film and substrate. The broken lines indicate the result obtained by FEM analysis.

なお、ここで示した薄膜はく離について、応力拡大を表す破壊力学量のはく離開始クライテリオンとしての適用可能性は、別報⁽²⁾において詳細に検討している。

2.2 ミクロな材料特性と原子配置

式(4)からわかるように、原子レベルの応力は原子配置に依存している。すなわち、構造の乱れは応力の発生を意味している。単一材料でも、配置が乱れた部分に大きな応力が発生すると考えられる。また、後述のように、原子の乱れは局所的な変形特性(弾性係数)の変化にも結びついていると考えられる。本節では、原子シミュレーションによってこれらの原子構造体の局所における材料強度特性について検討する。

対象は、Fig.4 に示す粒界を含むセルである⁽⁴⁾。左右の結晶粒の結晶方位を変えて、セル中央にΣ5(013) tilt 粒界を配置した。また、周期境界条件としたため、セルの左右端にも同じ粒界が存在する。Fig.4(b)に、本シミュレーションに用いた原子配置を示す。材料はアルミニウムとし、有効媒質法 EMT(Effective Medium Theory)⁽⁶⁾によるポテンシャルを用いた。なお、このポテンシャルによってアルミニウムの変形挙動等が良好に再現できることを、第一原理解析との比較によって確認している⁽⁶⁾。すなわち、これはモデルポテンシャルとしての取扱いではない。

Fig.5 は、外部応力を 0GPa に制御した状態(温度 0K)における原子応力の分布である。図の両端が、粒界である。

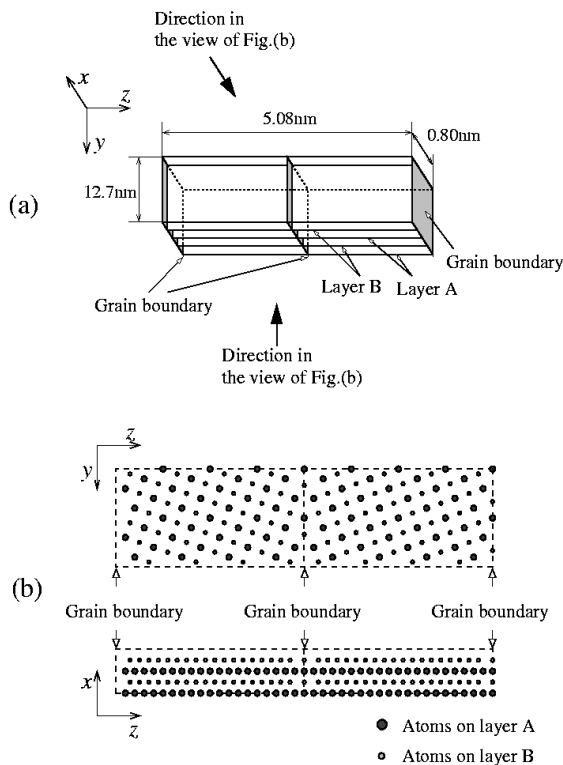


Fig.4 Simulation cell of Σ5 tilt grain boundary in aluminum.

ここで対象とした粒界は、Fig.4(b)に示すように、原子配置が異なる 2 層(A 層と B 層)が交互に積み重なった微視構造をしている。そこで、Fig.5 では、層を分けて応力を評価している。いずれの層においても、粒界から 0.7nm 以上離れた部分では、原子応力は 0GPa であり、マクロ応力と一致している。すなわち、粒界の影響が及ばない結晶粒内領域である。一方、粒界面上では、10GPa を越える応力が認められる。また、A 層では圧縮応力となっているのに対して、B 層では引張応力となっている。セル全体では無応力であることから、両者が相殺する内部応力(残留応力)が働いている。すなわち、粒界近傍では、初期寸法の異なる 2 層(原子面)に双方の寸法が同じになるような予ひずみを与えた上で、2 層を張り合わせたような内部(残留)応力分布となっている。

原子レベルの弾性係数は少し複雑であり、不均質ひずみの影響を考慮する必要がある^(7,8)。ただし、定性的には原子αの弾性係数は、応力と同様に下式で評価できる。

$$C_{ijkl}^{\alpha} = \frac{N}{V} \frac{\partial^2 \Phi^{\alpha}}{\partial \epsilon_{ij} \partial \epsilon_{kl}} \quad (5)$$

粒界近傍の局所弾性係数の分布を Fig.6 に示す。応力と同様に、粒界面から 0.7nm 以上はなれた粒内では、弾性係数は一定となっている。また、A 層と B 層の差もない。逆に、粒界面から 0.7nm 以内では、弾性係数が異なり、A 層の弾性係数が大きく、B 層のそれは小さい。すなわち、

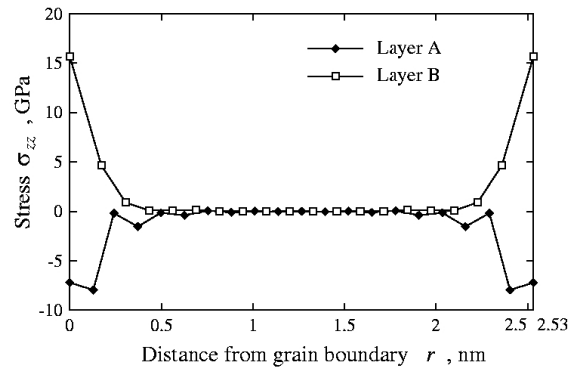


Fig.5 Distribution of atomic stress near the grain boundary.

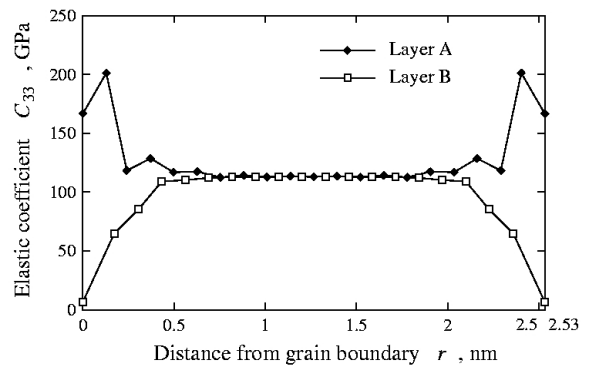


Fig.6 Distribution of local elastic coefficient near the grain boundary.

粒界近傍では各層があたかも異なる材料のような特性を示している．粒界はアルミニウム原子のみによって構成されているにもかかわらず、局所的には、剛層(A 層)と柔層(B 層)からなる複合板のような材料特性(Fig.7)を有している．

なお、このセルに外部応力を負荷したシミュレーションより、複合板の場合と同様に、外部荷重が主に剛層によって受け持たれることを明らかにしている⁽⁴⁾．

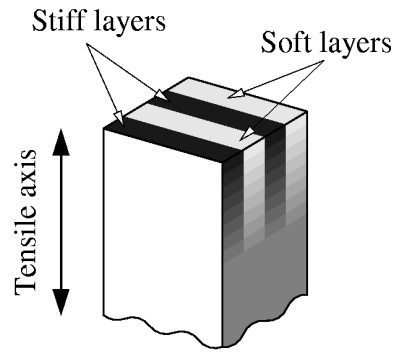


Fig.7 Schematic illustration of composite.

3. “きれいな”破壊と“汚い”変形の始まり

分子動力学法によって、原子配置の変化(“汚い”変形)を逐一シミュレーションして、現象を観察することはできる．しかし、力学的にこれらを統一して理解することは難しい．一方、汚い変形は、局所的に見れば、転位の増殖・射出のように、離散的現象の積み重ねであることが多い．我々は、その現象の発生を力学的に捉えようと考えた．

シミュレーション対象は、Fig.8 に示した片側き裂材である．解析の負荷を低くするため、モースポテンシャルを用いた(モデルポテンシャル)2次元解析とした．もちろん、現実的なポテンシャルを用いた3次元でも同様の解析ができる．き裂材の上下端に引張りを負荷するが、境界条件を少し変えた2種類のシミュレーションを行う．

(A)上下端原子に y 方向荷重を与える．

(B)上下端原子に y 方向変位を与える．

微小変位(荷重)負荷と緩和のステップを、き裂先端で原子配置変化が起きるまで繰り返す．

Fig.9 に解析結果を示す．条件(A)ではき裂先端からへき開破壊が生じているのに対して、条件(B)ではき裂先端から

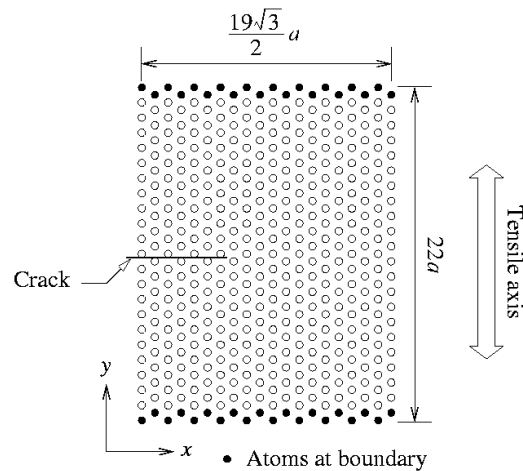


Fig.8 Simulation cell of cracked material.

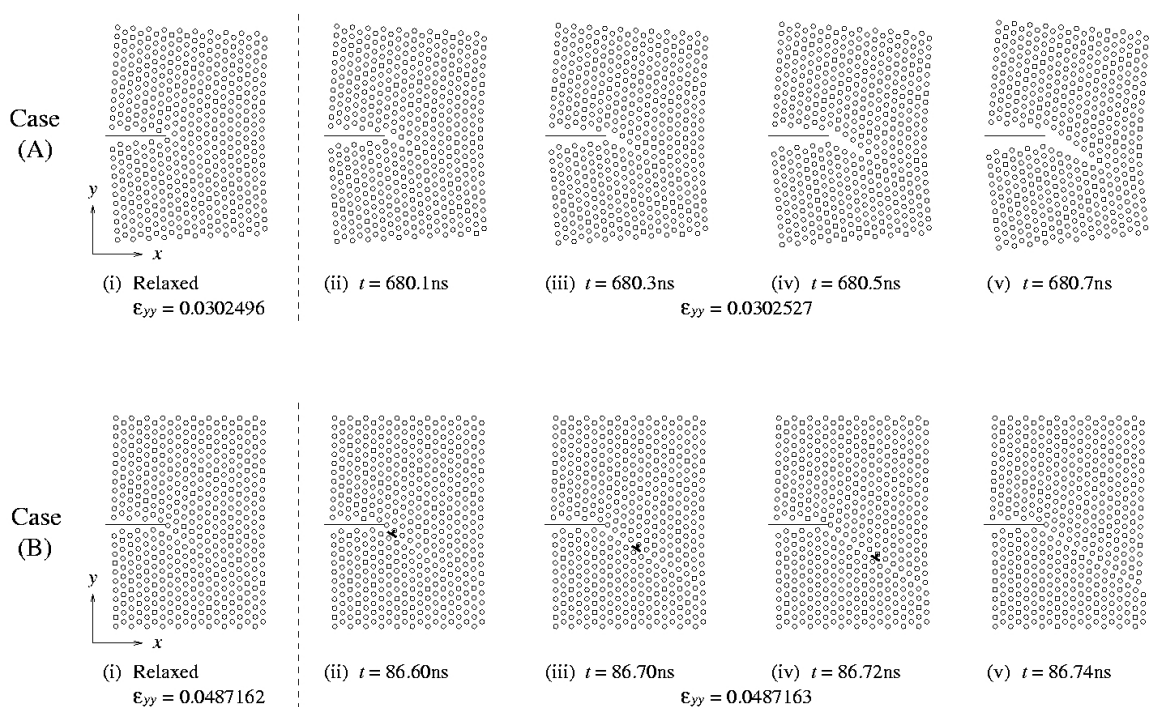


Fig.9 Snapshots of atoms during the unstable deformation of cracked material under different boundary conditions.

転位が射出される延性的挙動を示している。境界がき裂先端から近い場合には、このように破壊形態が境界条件の影響を強く受ける。初期の原子シミュレーションによる延性・脆性シミュレーションでは、これが問題となってバルク材料の正しい物性が確認されないことがあった。また、前者が原子配置変化を起こさずに破壊に至る“きれいな”破壊であるのに対して、後者は原子配置変化によって変形が進行する“汚い”変形のはじまりと考えてよい。

詳細⁽⁹⁾は省略するが、原子構造の安定性は

$$A_{mn} = \frac{\partial^2 \Phi}{\partial R_m \partial R_n} \quad (6)$$

を要素とする $M \times M$ のマトリックス A の最小固有値 η の正値性によって表されることを見出した。ここで、 M は原子系の自由度、 R_m と R_n は原子変位である。Fig.10 は、 η の変化(初期値で標準化)を示している。条件(A)(B)ともに、 $\eta=0$ においてき裂進展または転位射出が生じている。すなわち、“きれいな”破壊と“汚い”変形の開始は、両方とも同様のエネルギーバランスの喪失(不安定変形)と捉えることができる。

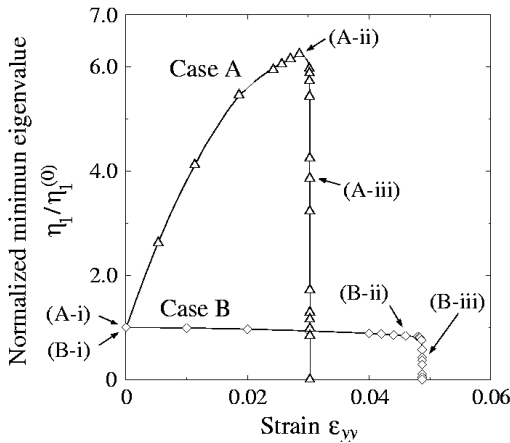


Fig.10 Change in normalized minimum eigenvalue during tension.

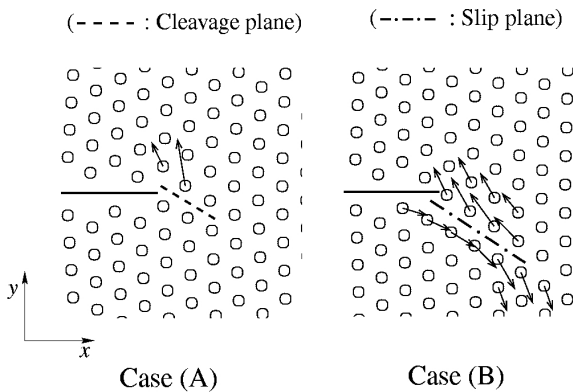


Fig.11 Eigenvectors at the beginning of the unstable deformation.

なお、不安定による原子の変位方向は、最小固有値 η に対応する固有ベクトルで与えられる(Fig.11)⁽¹⁰⁾。(A)(B)における破壊様相(へき開と転位射出)が原子変位モードの相異として、その固有ベクトルによって良好に示されている。

4. 結言

原子レベルの力学解析には、微小構造体の設計に必要な課題がたくさん残されている。例えば、我々は第一原理解析によってシリコンのせん断変形による電気的特性と機械的強度の変化(相関)について調べている⁽¹¹⁾。とくに、実験観察の困難さを考慮すれば、数値計算によるシミュレーションが大いに活躍する場であると考えており、今後の発展を期待している。

参考文献

- (1) 例えば、結城良治, 界面の力学, 培風館(1993)
- (2) 北村, 平方, 佐竹, 日本機械学会論文集, A, 掲載予定
- (3) 例えば, H.Kitagawa, A.Nakatani and Y.Shibutani, Mater. Sci. Eng., 176(1994), 263-269.
- (4) 北村, 梅野, 辻, 日本機械学会論文集, A, 68(2002), 866-872
- (5) K.W.Jacobsen, J.K.Norskov and M.J.Puska, Phys. Rev., B, 35(1987), 743-7442.
- (6) 梅野, 北村, 材料, 51(2002), 249-254
- (7) J.W.Martin, J.Phys., C, 8(1975), 2858-2868
- (8) 泉, 東京大学学位論文(1999)
- (9) 北村, 梅野, 辻, 日本機械学会論文集, A, 68(2002), 104-110
- (10) 北村, 梅野, 辻, 中谷, 日本機械学会論文集, A, 投稿中
- (11) Y.Umeno and T.Kitamura, Materials Science and Engineering, B88(2002), 79-84