

JAERI-M

87-026

BCC タンタル結晶におけるはじき出し
過程の計算機シミュレーション

1987年2月

布施 元正*・田次 邑吉・岩田 忠夫

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

JAERI-M レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の問合せは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division
Department of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura,
Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

©Japan Atomic Energy Research Institute, 1987

編集兼発行 日本原子力研究所
印 刷 機高野高速印刷

B C C タンタル結晶におけるはじき出し過程の
計算機シミュレーション

日本原子力研究所東海研究所物理部
布施元正^{*}・田次邑吉・岩田忠夫

(1987年1月30日受理)

核融合炉材料の照射損傷は固体内原子衝突により生じるが、この現象に関する理論的研究は大型計算機の発達とともに、近年急速な進展をみせている。本報告では、分子動力学コードGRAPEによりbcc金属のTa結晶中でのはじき出し過程を解析した結果をまとめた。原子間相互作用ポテンシャルとしては、弾性定数等にフィッティングして求めるJohnson型を採用した。得られた結論は以下の通りである。

- 1) Ta結晶中で生成する格子間原子は[100]クラウディオン型か、[111]方向への変位が数原子にわたり連続して生じる型の2種類に大別できる。Fe, Moでみられる[110]ダンベル型は生成しない。これは、ポテンシャル形状により説明できる。
- 2) Ta結晶中でのはじき出しエネルギーのしきい値分布は実験結果と比較的良い対応を示す。これから、Johnson型のポテンシャルは現実の原子間相互作用を表すのに適しているといえる。

東海研究所 : 〒319-11 茨城県那珂郡東海村白方字白根2-4

本報告書は昭和60年度における日立製作所㈱への委託調査の成果をまとめたものである。

*) 株式会社 日立製作所エネルギー研究所

Computer Simulations of Knock-on Processes in
BCC Ta Crystal

Motomasa FUSE*, Yukichi TAJI and Tadao IWATA

Department of Physics,
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received January 30, 1987)

Knock-on processes in bcc tantalum crystal have been investigated by using molecular dynamical program GRAPE. Adopted interatomic potential is the Johnson type which is determined by fitting to experimental values such as elastic constants.

The obtained results are summarized as follows.

- 1) Self-interstitials produced by knock-on process in Ta crystal can be classified into two types; one is [100] and [111] crowdion, and the others are their variations. This point is quite different from the case found in bcc Fe and Mo, in which case only [110] split dumbbell configuration is produced.
- 2) Calculated distribution of threshold energy for Frenkel-pair production coincides fairly well with the experimental results.

Keywords: Radiation Damage, Atomic Collisions, Computer Simulation, Molecular Dynamics, BCC Ta Crystal, Knock-on Process

Work supported by JAERI under contract with Hitachi Ltd. in fiscal year 1985.

* Energy Research Laboratory, Hitachi Ltd.

目 次

1. 序 論.....	1
2. 計算手法.....	1
3. 原子間ポテンシャル.....	3
4. はじき出し過程のシミュレーション.....	5
4.1 はじき出し計算の計算点.....	6
4.2 フレンケル対生成状況.....	7
4.3 格子間原子の形態.....	8
4.4 フレンケル対生成しきいエネルギー.....	18
5. 計算結果の検討.....	24
5.1 格子間原子の形態.....	24
5.2 フレンケル対生成しきいエネルギー.....	24
6. まとめ.....	25
参考文献.....	25

Contents

1. Introduction	1
2. Computer simulation methods	2
3. Interatomic potentials	3
4. Knock-on process computer simulations	5
4.1 Computing points for knock-on process calculations	6
4.2 Frenkel-pair production	7
4.3 Self-interstitial configuration	8
4.4 Threshold energies for Frenkel-pair production	18
5. Discussion on calculational results	24
5.1 Self-interstitial configuration	24
5.2 Threshold energies for Frenkel-pair production	24
6. Summary	25
References	25

1. 序論

材料の照射損傷過程は、中性子や荷電粒子によりはじき出された結晶中の格子原子が離合集散する複雑な過程である。まず、中性子等によりはじき出された原子（PKA：Primary Knock-on Atom）は、さらに周囲の原子と衝突しそれらの原子をはじき出す。これはいわゆるカスケード現象と呼ばれるものであり、この結果、結晶格子中に、空格子点と格子間原子からなる多数のフレンケル対が生成する。このように生成した点欠陥は熱運動を通じて、消滅したり、シンクへ吸収されたり、あるいはクラスターを形成したりすることになる。このような欠陥の生成が材料の特性を劣化させる原因となる。

以上のように、照射損傷過程は多数の原子が関与しているため、純粹な理論解析は不可能である。これに対し、大型計算機の進歩に伴い、結晶格子での原子過程を直接シミュレートすることが可能となり、多くの知見が得られつつある。¹⁾ 中でも、固体材料中の原子衝突過程については、米国、Brookhaven 国立研究所の Vineyardらが最初の大規模計算を実施して以来、²⁾ 同様の計算が繰り返され、現象の理解が深まってきた。計算機による損傷過程の解析で特に重要なのは原子間相互作用ポテンシャルの妥当性である。原子間相互作用ポテンシャルに関しては、従来、種々の形が提案されている。最も良く使われているのは結晶格子の弾性定数等にフィッティングさせて求めた Johnson 型の³⁾ ポテンシャルである。

今回の研究の目的は、多体原子衝突過程を解析する場合に重要となる原子間ポテンシャルなどの効果を評価することである。具体的には分子動力学コードGRAPEを用い、多体原子衝突過程の計算を実施し、他の計算結果あるいは実験結果と比較した。対象としたのは体心立方金属（bcc）のタンタル（Ta）であり、原子間相互作用ポテンシャルは Johnson and Wilson により決められたものを用いた。⁴⁾ 解析した項目は、1)はじき出しで発生する格子間原子およびフレンケル対の形態、2)はじき出しの閾エネルギー、である。格子原子のはじき出しに必要な閾エネルギーは結晶軸の方向に対するPKAの初速方向によって違ってくる。この閾エネルギーの方向依存性に関しては、数種類の bcc 金属について計算機による解析がなされている。^{2), 5)} また、限られた金属ではあるが、実験による解析結果も存在している。⁶⁾

本報告書では、上記はじき出し過程の解析結果、および、他の計算結果あるいは実験結果と比較した内容をまとめた。

2. 計算手法

ここでは、計算に使用した分子動力学コードGRAPEの内容を簡単にまとめる。⁷⁾

計算は計算機内に構成した計算セル内で実行される。計算セルは回りの原子からの力に応じて自由に動くことができる原子の集合である。分子動力学法では、計算セルを構成するN個の原子についてその初期位置と初期速度から出発し、3N個の運動方程式を同時に積分することにより、6N次元の位相空間中で各原子のトラジェクトリを求める。i番目の原子の位置を $\vec{x}_i(t)$ 、速度を $\vec{v}_i(t)$ とすれば解くべき運動方程式は次のように表される。

1. 序論

材料の照射損傷過程は、中性子や荷電粒子によりはじき出された結晶中の格子原子が離合集散する複雑な過程である。まず、中性子等によりはじき出された原子（PKA：Primary Knock-on Atom）は、さらに周囲の原子と衝突しそれらの原子をはじき出す。これはいわゆるカスケード現象と呼ばれるものであり、この結果、結晶格子中に、空格子点と格子間原子からなる多数のフレンケル対が生成する。このように生成した点欠陥は熱運動を通じて、消滅したり、シンクへ吸収されたり、あるいはクラスターを形成したりすることになる。このような欠陥の生成が材料の特性を劣化させる原因となる。

以上のように、照射損傷過程は多数の原子が関与しているため、純粹な理論解析は不可能である。これに対し、大型計算機の進歩に伴い、結晶格子での原子過程を直接シミュレートすることが可能となり、多くの知見が得られつつある。¹⁾ 中でも、固体材料中での原子衝突過程については、米国、Brookhaven 国立研究所の Vineyardらが最初の大規模計算を実施して以来、²⁾ 同様の計算が繰り返され、現象の理解が深まってきた。計算機による損傷過程の解析で特に重要なのは原子間相互作用ポテンシャルの妥当性である。原子間相互作用ポテンシャルに関しては、従来、種々の形が提案されている。最も良く使われているのは結晶格子の弾性定数等にフィッティングさせて求めた Johnson 型の³⁾ ポテンシャルである。

今回の研究の目的は、多体原子衝突過程を解析する場合に重要な原子間ポテンシャルなどの効果を評価することである。具体的には分子動力学コードGRAPEを用い、多体原子衝突過程の計算を実施し、他の計算結果あるいは実験結果と比較した。対象としたのは体心立方金属（bcc）のタンタル（Ta）であり、原子間相互作用ポテンシャルは Johnson and Wilson により決められたものを用いた。⁴⁾ 解析した項目は、1)はじき出しで発生する格子間原子およびフレンケル対の形態、2)はじき出しの閾エネルギー、である。格子原子のはじき出しに必要な閾エネルギーは結晶軸の方向に対するPKAの初速方向によって違ってくる。この閾エネルギーの方向依存性に関しては、数種類の bcc 金属について計算機による解析がなされている。^{2), 5)} また、限られた金属ではあるが、実験による解析結果も存在している。⁶⁾

本報告書では、上記はじき出し過程の解析結果、および、他の計算結果あるいは実験結果と比較した内容をまとめた。

2. 計算手法

ここでは、計算に使用した分子動力学コードGRAPEの内容を簡単にまとめる。⁷⁾

計算は計算機内に構成した計算セル内で実行される。計算セルは回りの原子からの力に応じて自由に動くことができる原子の集合である。分子動力学法では、計算セルを構成するN個の原子についてその初期位置と初期速度から出発し、3N個の運動方程式を同時に積分することにより、6N次元の位相空間中で各原子のトラジェクトリを求める。i番目の原子の位置を $\vec{x}_i(t)$ 、速度を $\vec{v}_i(t)$ とすれば解くべき運動方程式は次のように表される。

$$\frac{d\vec{v}_i}{dt} = \vec{F}_i [\vec{x}_1(t), \dots, \vec{x}_N(t); \vec{v}_i(t)] / m$$

$$\frac{d\vec{x}_i}{dt} = \vec{v}_i \quad (i = 1, \dots, N)$$

上式で、 \vec{F}_i は回りの原子が i 番目の原子におよぼす力であり、 F_i/m は加速度 $\vec{a}_i(t)$ に対応する。上記の運動方程式を解く方法として、GRAPEでは中心差分法を採用している。原子座標については時間積分ステップ Δt の整数倍の点をとり、速度については Δt の半整数倍の点をとる。各積分ステップでの既知量は $\vec{x}(t)$ と $\vec{v}(t - \Delta t/2)$ である。時刻 t で原子 i に作用する力 $F_i(t)$ は時刻 t での各原子の相対位置により決定される。加速度は $F_i(t)/m$ により決められる。以後の座標と速度は次のように順次計算で求められる。

$$\begin{aligned}\vec{v}_i(t + \Delta t/2) &= \vec{v}_i(t - \Delta t/2) + \vec{a}_i(t) \Delta t \\ \vec{x}_i(t + \Delta t) &= \vec{x}_i(t) + \vec{v}_i(t + \Delta t/2) \Delta t\end{aligned}$$

実際の計算においては、計算機能力の点から、計算セル内の原子数は有限とならざるを得ない。現在の所、超高速計算機をもってしても、原子数は 3 000 ~ 5 000 の範囲に限られる。このため、計算セルの表面の影響が重要となる。GRAPEでは結晶表面の効果を表すために次のような 3 種類の力を表面原子に付加している。1 つは、結晶を安定化させる一定の力である。結晶表面の原子は内側のみから力を受けるため、格子点の位置で安定化されない。第 1 の力は、この内側からの力を打消す一定力である。第 2 の力は、表面の変位に比例する力であり、固体の弾性定数に関連したバネ定数が決められる。これは次のような考え方で求められる。計算体系と同じ体積をもった半径 R の球が無限の連続媒質の中にうめ込まれているとする。半径 R が δR だけ大きくなると、球の表面に

$$P = \frac{4 C_{44}}{R} \delta R$$

の圧力がかかる。この圧力を表面の原子密度 N で割ったものが、表面の原子に加えるべき力であり、バネ定数としては

$$k_n = \frac{4 C_{44}}{N R}$$

をとることができる。 k_n は表面に垂直方向の変位に対するバネ定数であるが、表面に平行な方向への変位に対するバネ定数 k_t としては $k_t = k_n/4$ となる。第 3 の力は、表面原子の速度に比例した減衰力である。これは、回りにエネルギーが逃げていくことに対応している。この減衰力が不十分である場合には、原子の運動量が表面で反射を受け、フレンケル対生成に影響を与えることになる。以上のように、第 2、第 3 の力は、計算セルがあたかも無限の媒質中に存在しているかのようにするために導入されたものである。

3. 原子間ポテンシャル

分子動力学シミュレーションで最も重要であるのは原子間相互作用ポテンシャルである。計算時間の観点からは、ポテンシャル関数の形状は単純な方が望ましい。通常は2体中心力型ポテンシャルが使用される。本調査で採用したポテンシャルはJohnson型のものである。⁴⁾ 計算の対象としたのはbcc金属のTaであり、この計算結果を、従来得られているFe, Moに関する計算結果と比較した。計算対象としてTaを選定した理由は、従来、多体原子衝突過程に関する計算がなされていないことと、実験面で比較的詳細なはじき出し闘エネルギーに関するデータがあり、比較しやすい、という点^{2), 5)} を考慮したためである。以下、Johnson型ポテンシャルを決定する考え方をまとめる。

Johnson型ポテンシャルは弾性定数などの実験値にフィッティングするように決める。この意味から経験的ポテンシャルと呼ばれる。当初、Johnsonにより、bcc金属とfcc金属中の欠陥特性を評価する目的で考えられたものである。bcc金属の場合には、第1近接と第2近接距離にある原子間の相互作用のみを考慮する。通常関数形は原子間距離 r の高次式の形で表現される。

Johnson and Wilson⁴⁾は、V, Mo, W, Ta, Feなどのbcc金属のポテンシャルを決定している。その際、原子の内側の部分についてはWedepohl⁸⁾の方法により決定している。Wedepohlの方法は原子間の相互作用エネルギーを、原子核の回りに球対称に分布した電子密度 $\rho(r)$ を用いて表現するもので電子の交換相互作用も含めている。一方、弾性定数 C_{ij} と、第1近接距離 r_1 、第2近接距離 r_2 でのポテンシャル $V(r)$ の1階微分 V' と2階微分 V'' との間には次のような関係が存在している。

$$C_{11} - C_{12} = \frac{2}{3r_2} \left(\frac{6}{r_1} V_1' + 3V_2'' + \frac{3}{r_2} V_2' \right) \quad (1)$$

$$C_{44} = \frac{2}{3r_2} \left(V_1'' + \frac{2}{r_1} V_1' + \frac{3}{r_2} V_2' \right) \quad (2)$$

$$B = \frac{2}{3r_2} \left(V_1'' - \frac{2}{r_1} V_1' + V_2'' - \frac{2}{r_2} V_2' \right) \quad (3)$$

上式で、 $V_1^{('')}$, $V_2^{('')}$ は各々 r_1 と r_2 での微分値を示している。Bは体積弾性率である。上記の関係式を用いて $V(r)$ の関数形をフィッティングで求めるわけであるが、その際の関数形としては次のような展開式を考える。

$$V(r) = a_4 r^4 + a_3 r^3 + a_2 r^2 + a_1 r + a_0 \quad (4)$$

$$r_n \leq r < r_m$$

$$V(r) = b_5 r^5 + b_4 r^4 + b_3 r^3 + b_2 r^2 + b_1 r + b_0 \quad (5)$$

$$r_m \leq r < r_c$$

$$V(r) = 0 \quad (6)$$

$$r_c \leq r$$

上式で、 r_n は原子内側半径、 r_c は外側のカットオフ半径である。 r_m は r_1 と r_2 の中間点にとられ、 r_c は r_2 と第3近接距離との中間点に設定する。 r_n のとり方には任意性がある。 r_n を変化させ、 $V(r)$ の形状がなめらかとなるように r_n を決めている。なお、 r_n の内側部分では次の Born-Mayer 型のポテンシャルで接続する。

$$V(r) = A \exp[-\alpha r] \quad r < r_n \quad (7)$$

$V(r)$ の展開係数を決定するため、次のような条件を置く。

- 1) V_1' , V_2' , V_1'' , V_2'' は(1), (2), (3)式から決定。
- 2) r_n での $V(r_n)$, $V'(r_n)$ を Wedepohl 法で決定。
- 3) r_c では $V(r_c) = V'(r_c) = 0$ とする。
- 4) r_m で、関数は曲率も含め連続とする。
- 5) 空孔形成エネルギー E_V^f の実験値を用い、

$$E_V^f = - (4 V_1 + 3 V_2)$$

の関係式を用いる。

空孔形成エネルギーについては、必ずしも信頼できる実験データがそろっているわけではない。Johnson and Wilson が決定したポテンシャルの場合には、 E_V^f としてすべて 1.8 eV という値を用いている。この点は現実との違いがでてくる可能性がある。

以上の手続きで決められた展開係数を Mo と Ta の場合について Table 1 にまとめる。

Table 1 Coefficients of potential functions for molybdenum and tantalum. The potential energy is in units of eV.

	Mo	Ta
$C_{11}(10^{12} \text{ dyne/cm}^2)$	4.5002	2.6632
$C_{12}(10^{12} \text{ dyne/cm}^2)$	1.7292	1.5816
$C_{44}(10^{12} \text{ dyne/cm}^2)$	1.2503	0.8736
a (格子定数 Å)	3.14	3.3
$E_V^f(\text{eV})$	1.8	1.8
$r_n(\text{\AA})$	1.7	1.75
$r_c(\text{\AA})$	3.7903153	3.9834523
a_4	9.549910	8.289647
a_3	-108.7556	-100.9184
a_2	465.5270	460.7722
a_1	-888.2687	-935.6271
a_0	637.5701	713.0222
b_5	2.960482	-4.6357301
b_4	-49.55566	77.2771350
b_3	329.1443	-512.9568682
b_2	-1083.838	1695.8171912
b_1	1768.996	-2794.0673395
b_0	-1145.079	1836.4729087

*) ポテンシャル $V(r)$ は eV 単位

各種のbcc金属の原子間相互作用を図示したのがFig.1である。

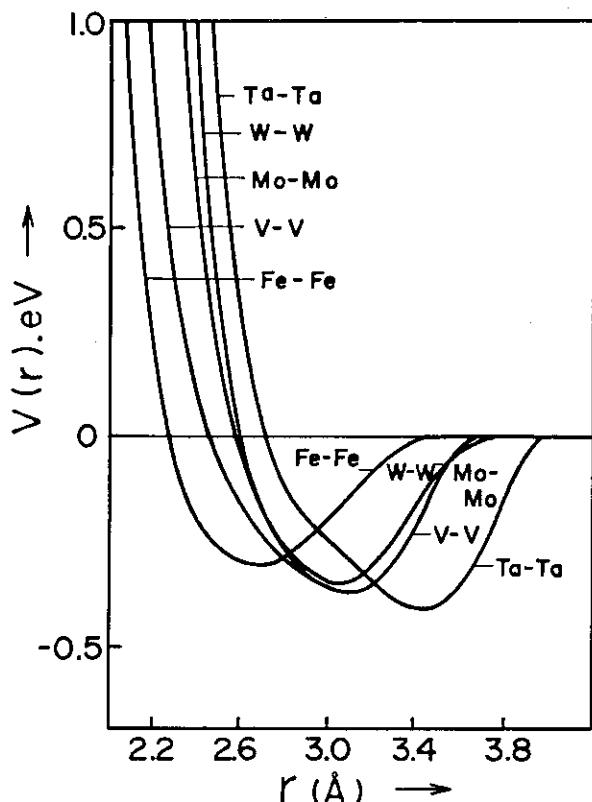


Fig. 1 BCC potentials⁴⁾

各原子間ポテンシャルのカットオフ半径 r_c は原子のサイズに応じて変わっているが、当然のことながら、格子定数 a で割った値はすべて同じである。Ta の場合、特徴的なことは、第 1 近接距離 r_1 、および第 2 近接距離 r_2 の位置ではいずれも反発力が作用していることである。このことが、Ta の場合、多体衝突現象が他のbcc金属、例えば Fe, Mo などと異った振舞いをする原因となっている。

4. はじき出し過程のシミュレーション

照射損傷の基礎過程で最も重要なのは格子原子のはじき出し現象である。この現象を理解する上で基本的な事項は、はじき出しで生成する格子間原子の形態（フレンケル対の形態）と、はじき出しに要するエネルギーである。はじき出しの閾エネルギーは結晶格子中で P K A が発生する方向によって異なる。また、生成するフレンケル対の形態も P K A の初速方向で一般的には異なる。従って、はじき出し過程のシミュレーションでは結晶中のあらゆる方向について調べる必要がある。

各種の bcc 金属の原子間相互作用を図示したのが Fig. 1 である。

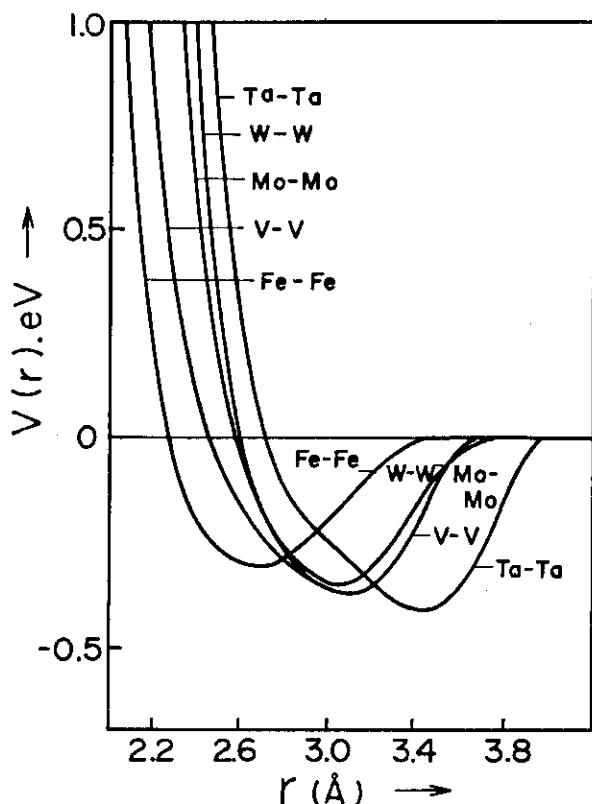


Fig. 1 BCC potentials⁴⁾

各原子間ポテンシャルのカットオフ半径 r_c は原子のサイズに応じて変わっているが、当然のことながら、格子定数 a で割った値はすべて同じである。Ta の場合、特徴的なことは、第 1 近接距離 r_1 、および第 2 近接距離 r_2 の位置ではいずれも反発力が作用していることである。このことが、Ta の場合、多体衝突現象が他の bcc 金属、例えば Fe, Mo などと異った振舞いをする原因となっている。

4. はじき出し過程のシミュレーション

照射損傷の基礎過程で最も重要なのは格子原子のはじき出し現象である。この現象を理解する上で基本的な事項は、はじき出しで生成する格子間原子の形態（フレンケル対の形態）と、はじき出しに要するエネルギーである。はじき出しの閾エネルギーは結晶格子中で P K A が発生する方向によって異なる。また、生成するフレンケル対の形態も P K A の初速方向で一般的には異なる。従って、はじき出し過程のシミュレーションでは結晶中のあらゆる方向について調べる必要がある。

4.1 はじき出し計算の計算点

PKAのはじき出しの初速方向に関しては、多くとれれば良いわけであるが、計算時間の点からの制約を受ける。実際の計算では、はじき出しの閾エネルギーを見出すために、1つの方向に対して、PKAエネルギーを変化させた計算を相当数（～10）実行しなければならない。このため、方向の数としては30前後が現実的な値となる。

bcc金属の場合、その結晶構造から、独立な方向としては、[100], [110], [111]方向の軸で囲まれた領域が考えられる（Fig.2）。実際に検討した計算点をFig.3に示す。PKAの初速方向は、[001]軸からの角度 θ 、および、(001)面に投影したときの[100]軸からの角度 ϕ により指定する。 $\phi=0^\circ$, $\theta=90^\circ$ が[100]方向, $\phi=45^\circ$, $\theta=90^\circ$ が[110]方向, $\theta=0^\circ$ が[001]方向に対応する。各方向の角度を 5° 間隔に分割し、各ます目の中心点を計算点として選んである。各ます目には通し番号（1～34）をつけ識別している。番号1は[100]方向、番号8は[110]方向、番号34は[111]方向に対応する。これらの計算点に對応して方向余弦が定義できる。

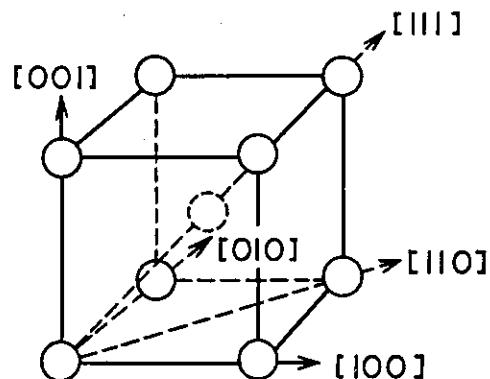


Fig. 2 BCC lattice structure

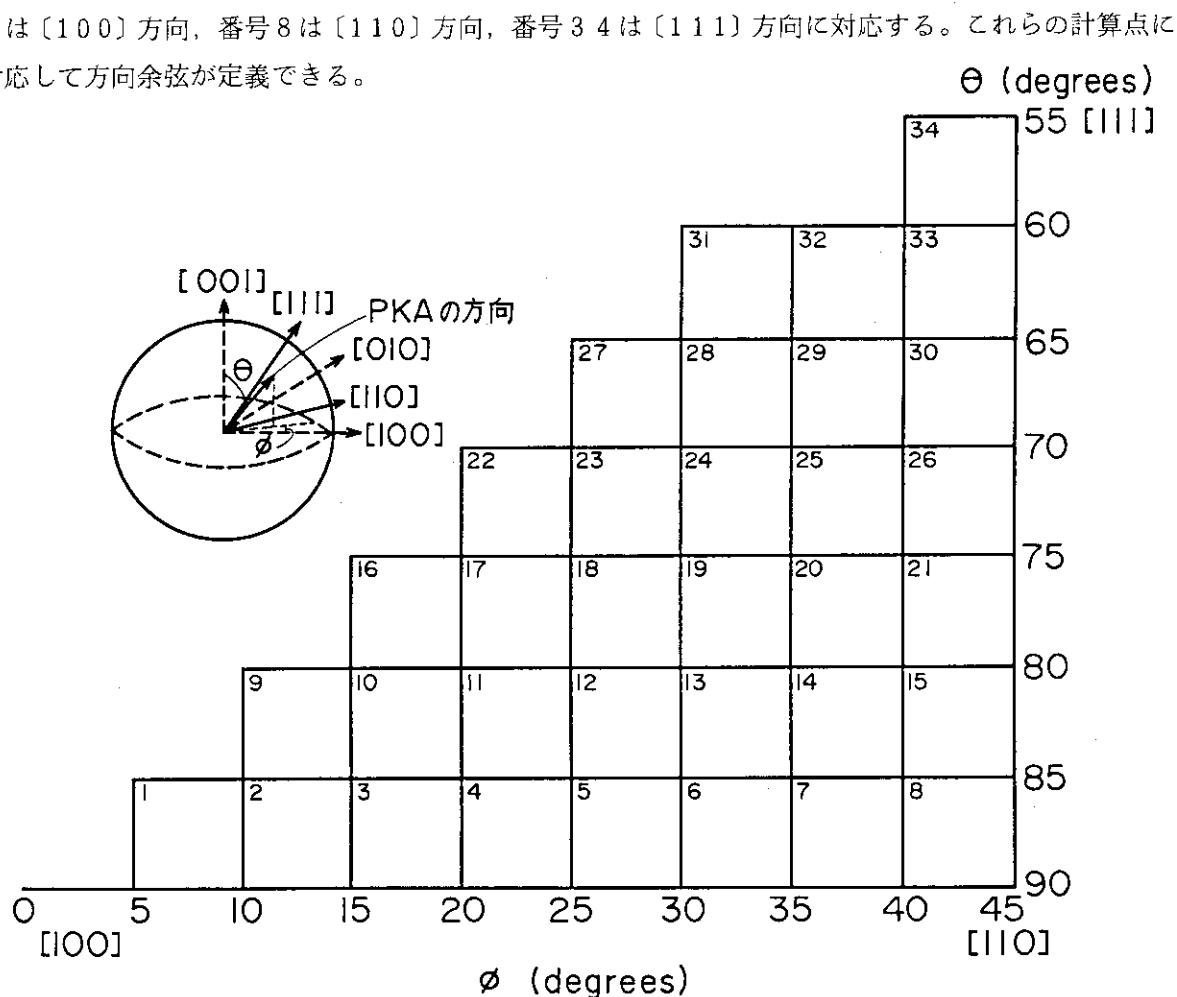


Fig. 3 Computing points for knock-on process calculation

4.2 フレンケル対生成状況

前記の如く計算点をとり、各点ごとにフレンケル対生成状況を調べる。これは、PKAのエネルギーを順次変化させ、フレンケル対が生成するかしないかを確認しながら進める。一般には、生成するフレンケル対の形態はPKAの初期エネルギーの値に依存して変わる。生成する格子間原子の形状はFe, Moの場合には、すべて[110]ダンベル型であったのに対し、今回のTaでは、純粋のダンベル型は発見されず、次節で詳述するように、[100]クラウディオン型、それに[111]方向へ格子原子が連なって変位する型、およびそれらの変形が見出された。

はじき出し過程の計算結果に基づき、各方向で生成するフレンケル対の中の格子間原子の形態を方位三角形の中にまとめたのがFig.4である。大別すると、[100]クラウディオン型、それに[111]方向への変位からなる型に分けられるが、[100]方向に近いPKAの場合は[100]クラウディオン型が生成するが、それ以外の方向では[111]方向への変位からなる型が主として生成する。特に、[111]方向へのPKAに対してはすべて後者の型の格子間原子が生成している。クラウディオン型の場合でも、[100]方向のPKAでは[100]方向へのクラウディオンが生成しているが、それ以外の方向へのPKAでは、[010], [001]方向をむいたクラウディオンが生成する確率が高い。同様に、[111]変位型についても、[111]方向へのPKAでは[111]変位が主であるが、それ以外の方向に対しては[111]変位が生じる確率は低い。

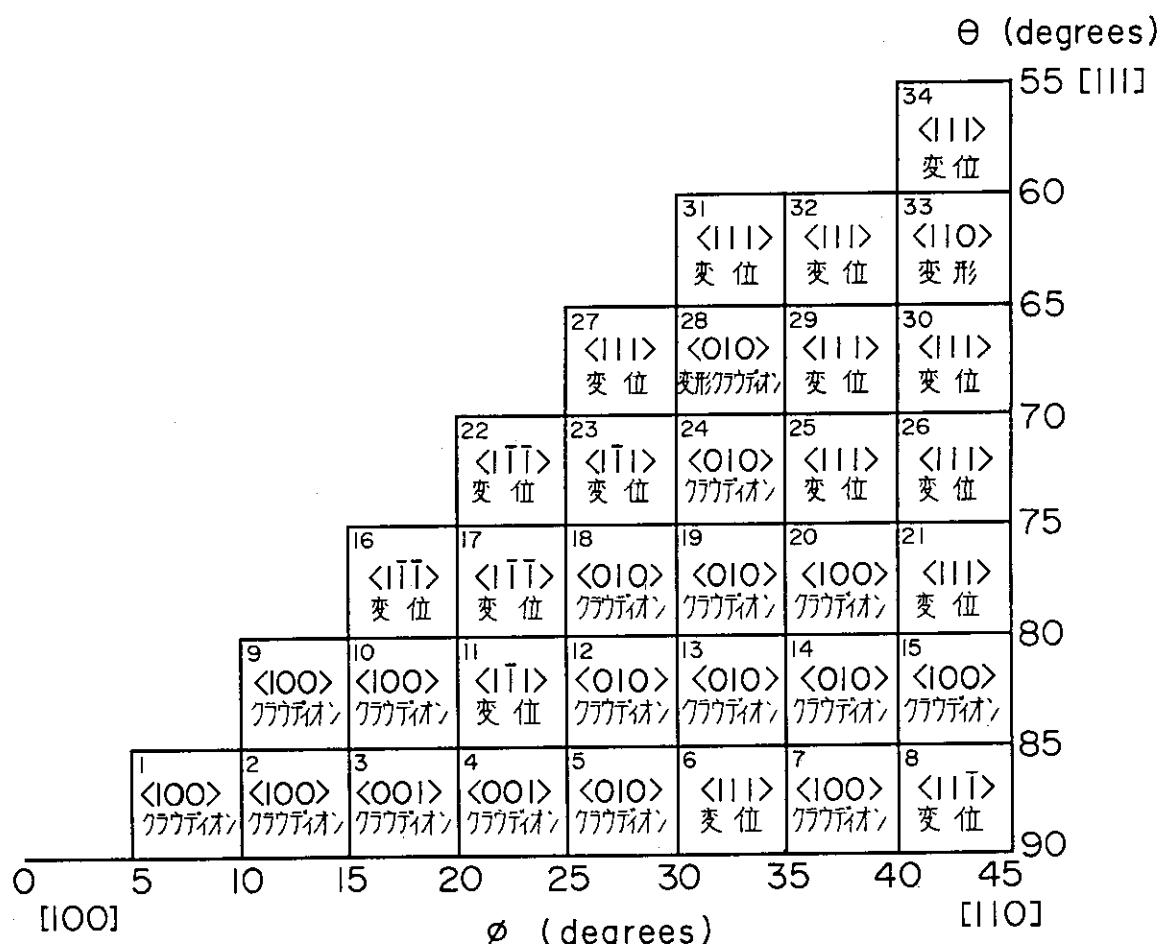


Fig. 4 Self-interstitial configuration produced by knock-on process

4.3 格子間原子の形態

本節では、はじき出しで発生するフレンケル対、および格子間原子の形態をまとめる。各PKAの初速方向はFig.3で示した計算点の番号に対応させて表示している。以下、代表的な計算点での計算例を示す。

1) DY_φ 2

これは[100]方向についての代表点である。そのフレンケル対生成過程をプロット出力したもののがFig.5の(a), (b)である。図中で、x方向は[100], y方向は[010], z方向は[001]方向に対応する。PKAエネルギーは53 eVである。今回の計算では、座標の単位としては、格子定数aの半分を基準にとってある。従って、2.0が格子定数aに対応する。以下に示す図でもすべて同様である。

Fig.5(a)で、PKAは(4, 8, 8)の点で発生し、x方向に順次置換を繰り返し、(8, 8, 8)の格子原子が(8, 8, 8)と(10, 8, 8)の中間に停り格子間原子となっている。(4, 8, 8)の位置が空格子点となっている。さらに空格子点の下側の面を見るとFig.5(b)に示されているように、(3, 7, 7)と(5, 9, 7)にいる格子原子が空格子点方向に落ち込んでいる。空格子点の上側の面でも同様の傾向が見られる。代表的な格子原子の変位状況をTable 2にまとめる。

2) DY_φ 8

この計算点は[110]方向のPKAの代表点である。PKAエネルギーは125 eVである。Fig.6(a), (b), (c)には格子原子の変位過程を図示する。PKAは(6, 6, 8)から発生している。(8, 8, 8)の格子原子は置換衝突を受け、下面方向に飛びだしたあと(9, 9, 7)の格子原子と置換している。以後、原子の変位は[111]方向にのびている。空格子点は(6, 6, 8)の点に発生している。Table 3には代表点の変位状況をまとめる。

この[110]方向はフレンケル対生成に関しては複雑である。エネルギーによっては[111]型クラウディオンではなく、[100]型クラウディオンが生じる場合もある。

3) DY₁ 8

これは[010]方向のクラウディオン型が発生した場合である。Fig.7にその状況を図示する。PKAは(4, 6, 8)から175 eVで出発している。最終的には(6, 10, 8)の格子原子が(6, 12, 8)との中間に停り、クラウディオン型の格子間原子となっている。空格子点は、(4, 6, 8)に生じている。

4) DY₂ 6

この場合には[111]方向への格子原子の変位が生じている。Fig.8に格子原子の変位状況を示す。図はbcc格子中の[110]面内の格子原子の変位を示したもので、横軸は[101]方向、縦軸は[010]方向に対応する。PKAはA点から100 eVのエネルギーを持って飛び出している。PKA自体は、隣接原子([111]方向)をはじきだしたあと、元にもどっている。数個の原子にわたり、はじき出しを繰り返したあと、はじき出された格子原子が元にもどらず、[111]方向に変位した状態で停っている。

このような場合、従来のように空格子点と格子間原子が明瞭に区別できるフレンケル対とはならず、非常に特異な形態といえる。Ta, Nb, などのV族元素(bcc)の格子間原子は他のbcc元素であるFe, Mo, などの場合と異った性質をもつのではないか、と実験面から指摘されているが、上記のような欠陥形態があるいは関与している可能性もある。

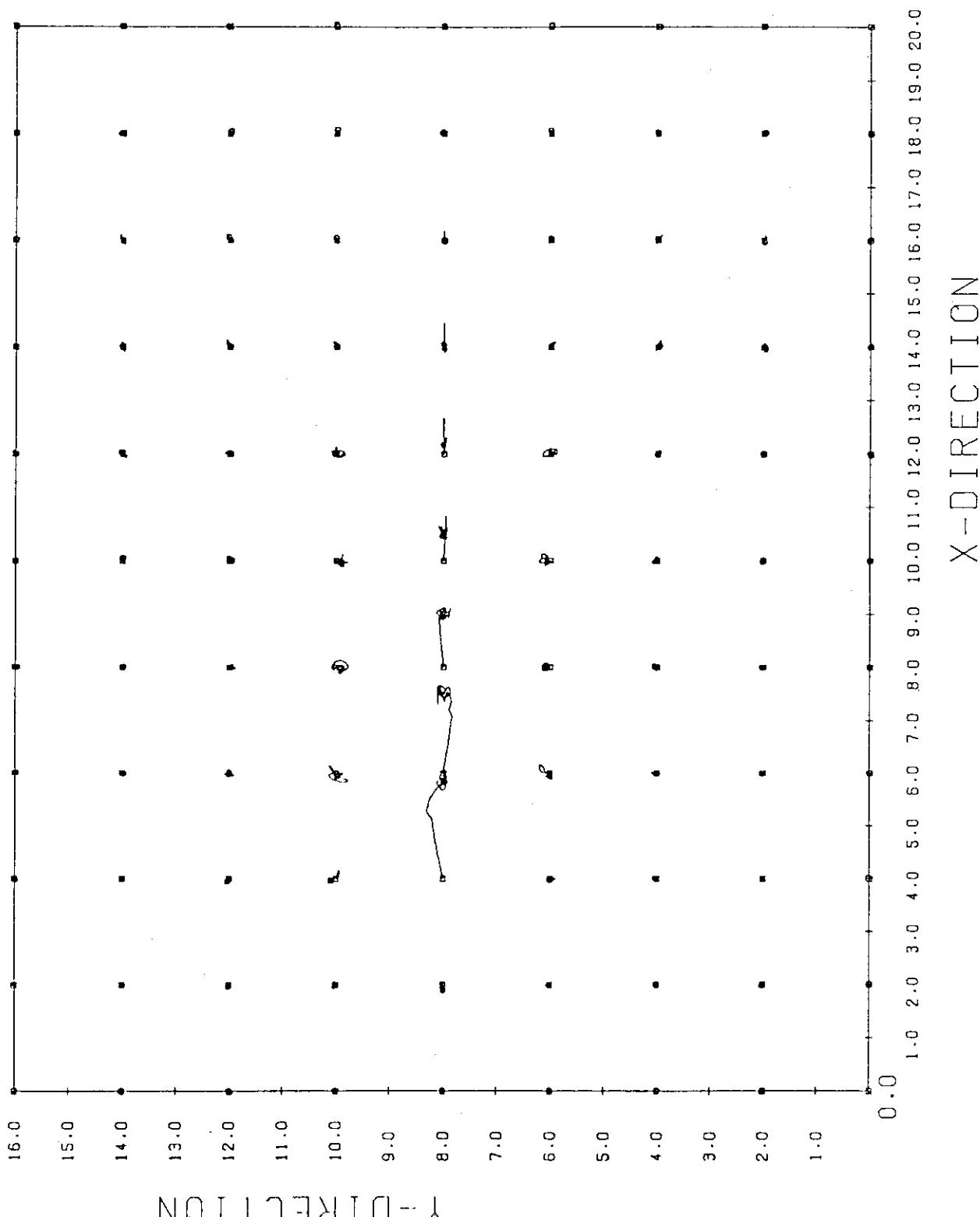


Fig. 5 Displacement pattern of particles. Computing point is at
 $DY\phi_2$ and PKA energy is 52.5 eV.
 (a) Particles located at between $Z = 7.50$ and 8.50

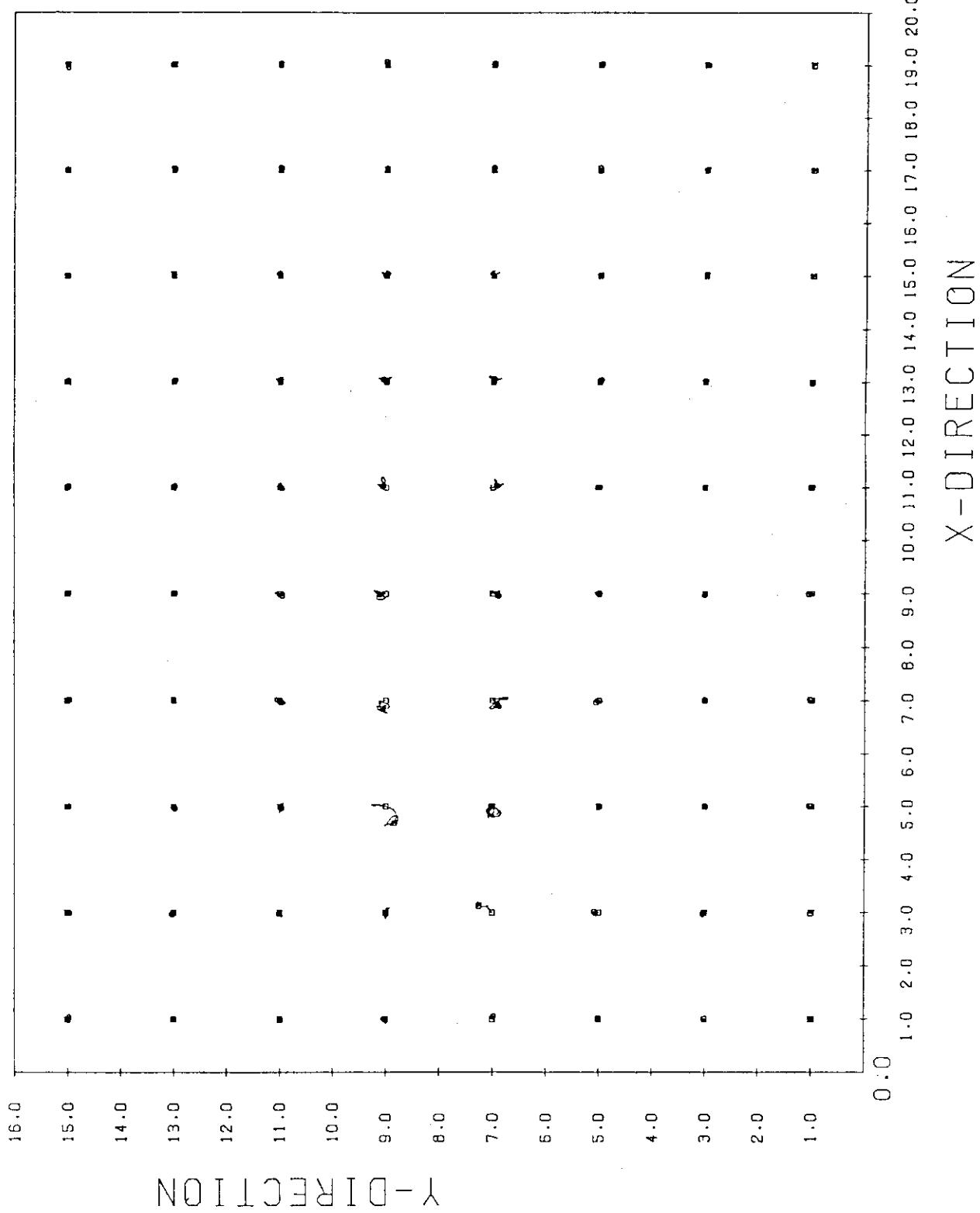


Fig. 5 Displacement pattern of particles. Computing point is at
 DY ϕ 2 and PKA energy is 52.5 eV.
 (b) Particles located at between $Z = 6.50$ and 7.50

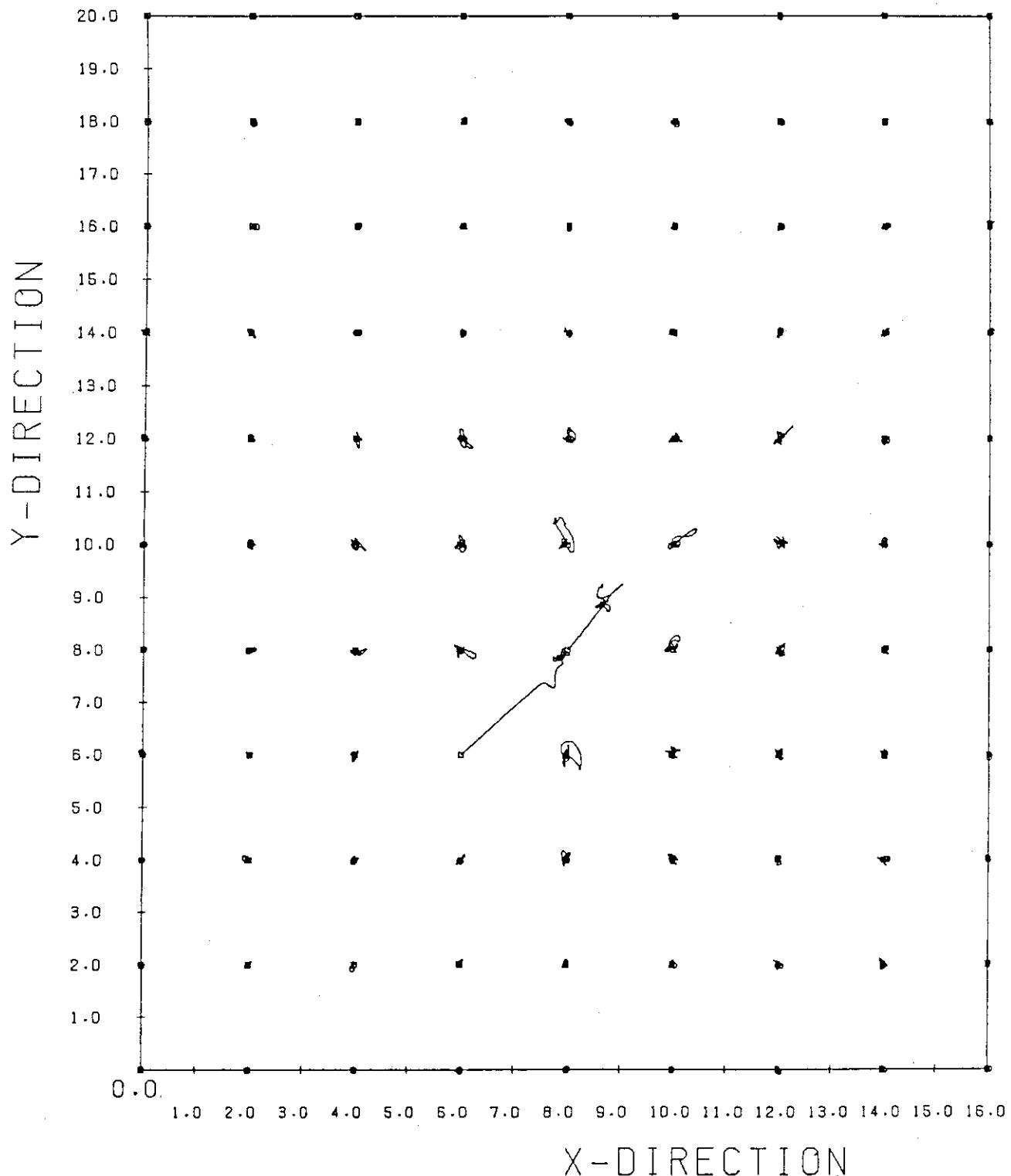


Fig. 6 Displacement pattern of particles. Computing point is at DY ϕ 8 and PKA energy is 125 eV.
(a) Particles located at between Z = 7.5 and 8.5

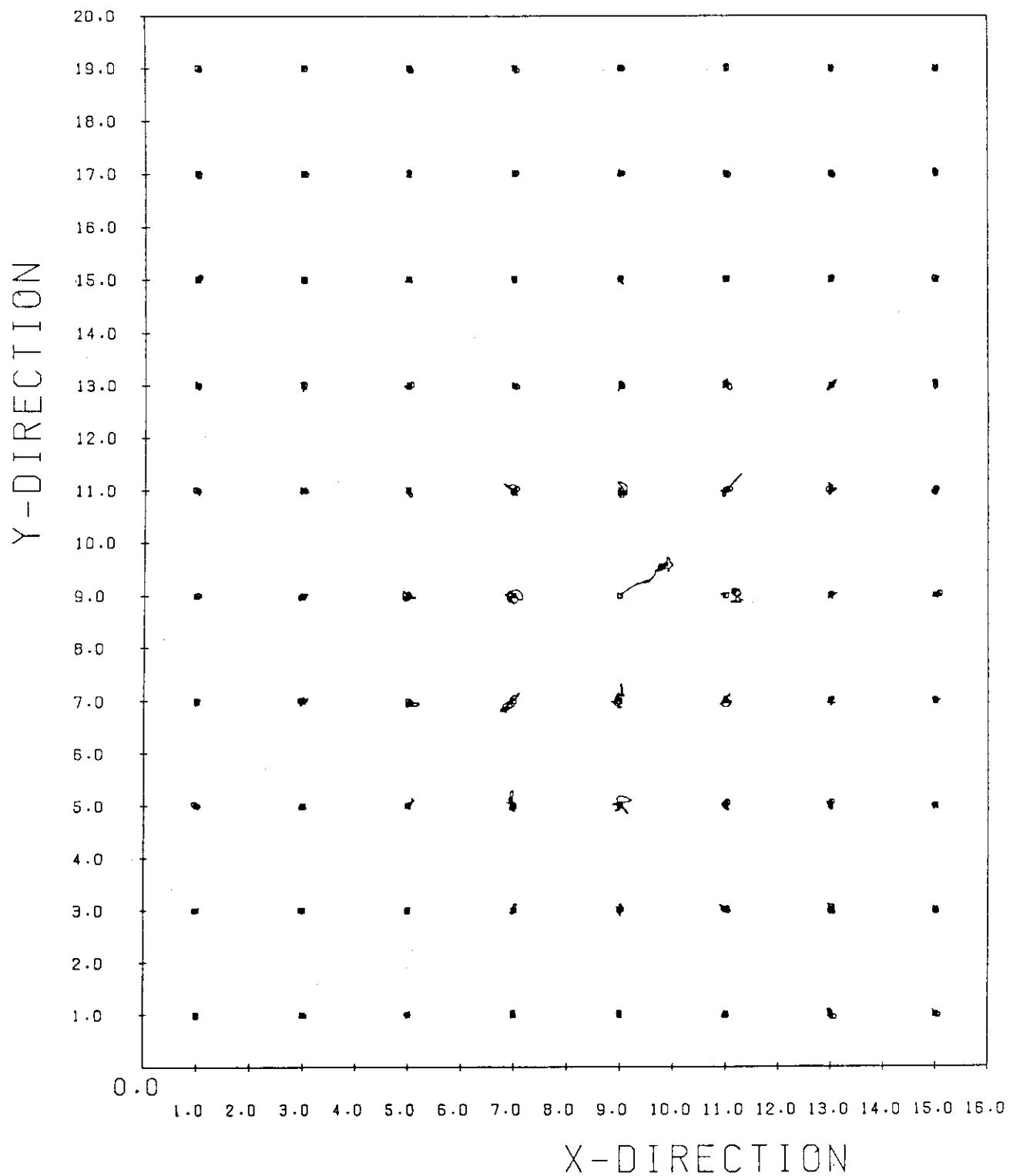


Fig. 6 Displacement pattern of particles. Computing point is at
DY₈ and PKA energy is 125 eV.
(b) Particles located at between Z = 6.5 and 7.5

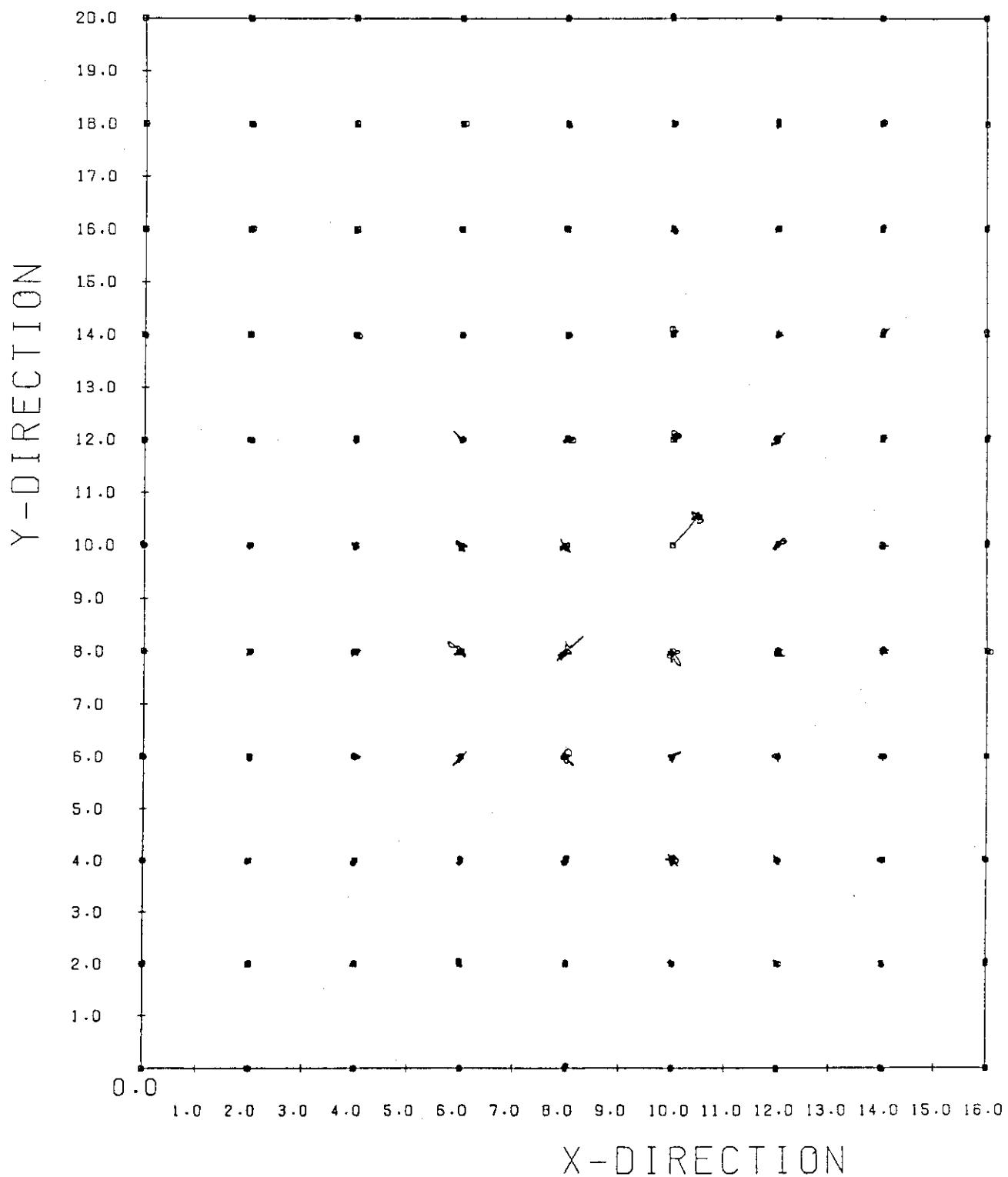


Fig. 6 Displacement pattern of particles. Computing point is at DY ϕ 8 and PKA energy is 125 ev.

(c) Particles located at between Z = 5.5 and 6.5

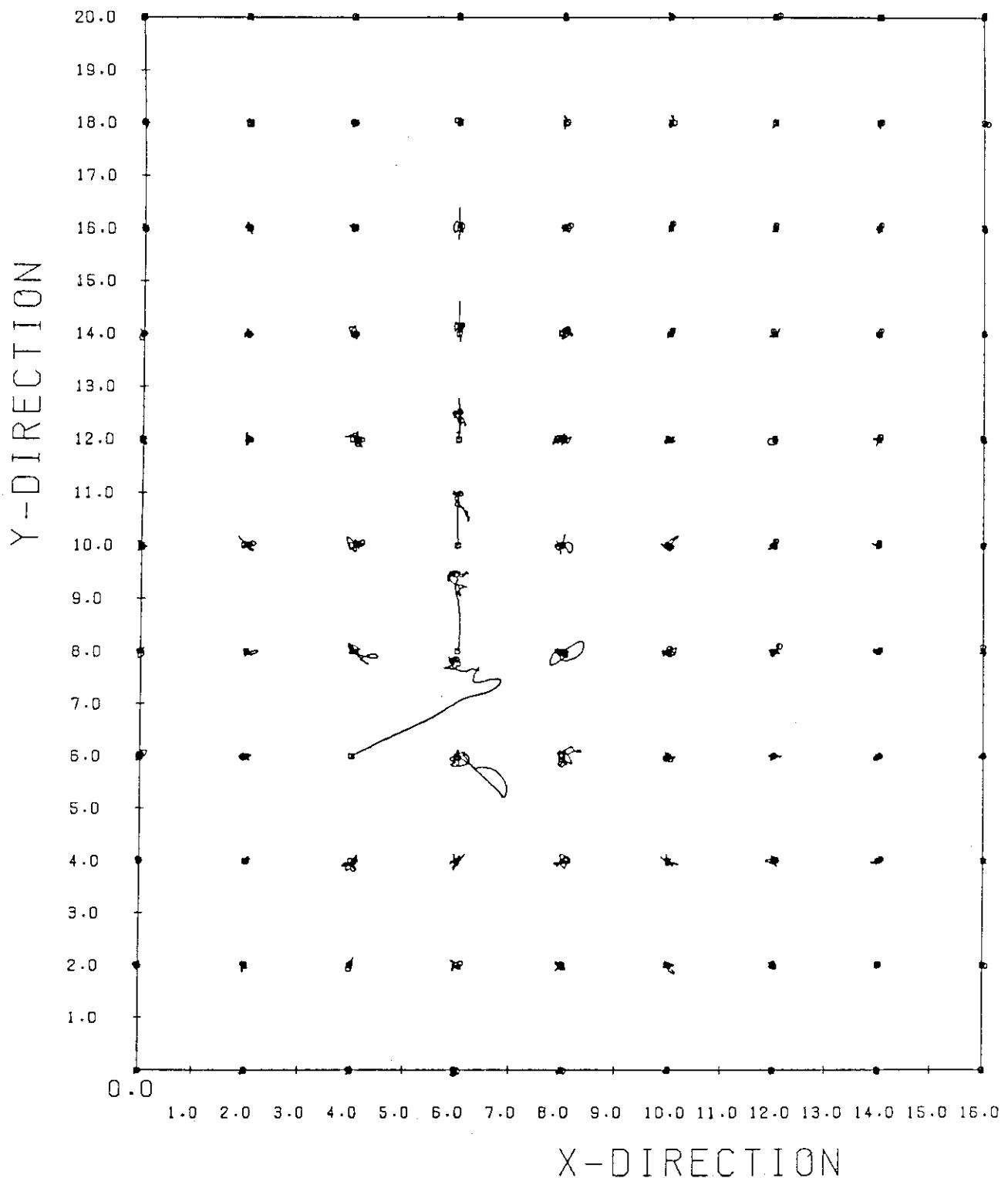


Fig. 7 Displacement pattern of particles. Computing point is at
DY18 and PKA energy is 175 eV.
Particles are located at between Z = 7.5 and 8.5

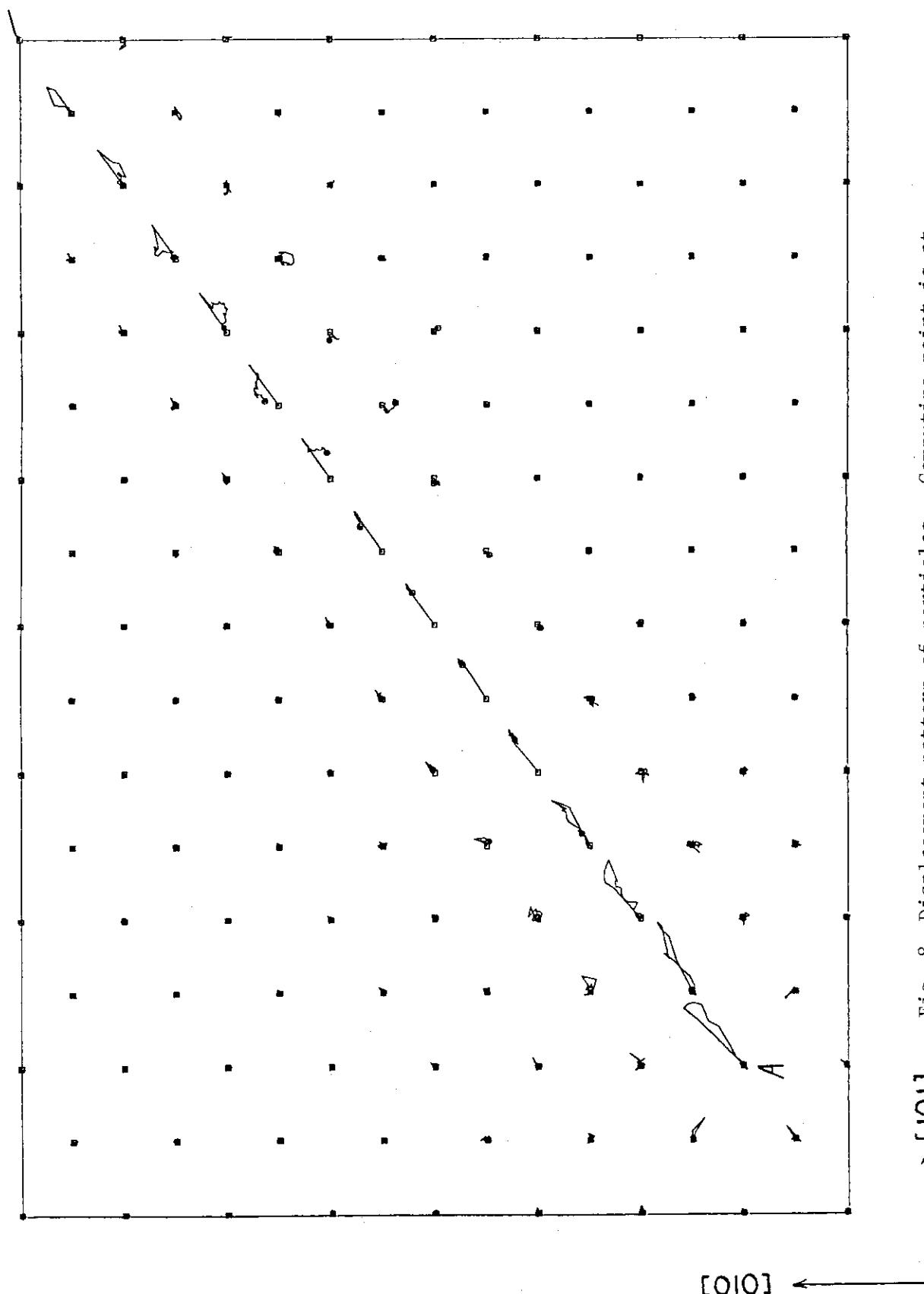


Fig. 8 Displacement pattern of particles. Computing point is at
DY26 and PKA energy is 100 eV.

$[10\bar{1}]$

Table 2 Displacements of lattice atoms which correspond to Fig. 5.

変位前			変位後		
x	y	z	x	y	z
3.0 0	7.0 0	7.0 0	3.1 3	7.2 5	7.1 8
3.0 0	9.0 0	7.0 0	2.9 9	9.0 0	7.0 2
5.0 0	7.0 0	7.0 0	4.9 4	7.0 2	7.0 3
5.0 0	9.0 0	7.0 0	4.6 9	8.8 4	7.1 5
7.0 0	7.0 0	7.0 0	6.9 3	6.9 1	6.9 5
7.0 0	9.0 0	7.0 0	6.8 5	9.0 6	6.9 5
9.0 0	7.0 0	7.0 0	8.9 7	6.9 0	6.9 1
9.0 0	9.0 0	7.0 0	8.9 9	9.1 1	6.9 0
11.0 0	7.0 0	7.0 0	11.0 4	6.9 1	6.9 4
11.0 0	9.0 0	7.0 0	11.0 3	9.0 6	6.9 4
2.0 0	8.0 0	8.0 0	1.9 0	8.0 0	7.9 9
4.0 0	6.0 0	8.0 0	3.9 7	6.0 0	8.0 1
4.0 0	8.0 0	8.0 0	5.9 1	8.0 2	8.0 1
4.0 0	10.0 0	8.0 0	3.9 6	10.0 9	7.9 9
6.0 0	6.0 0	8.0 0	5.9 4	6.0 0	8.0 4
6.0 0	8.0 0	8.0 0	7.4 8	7.9 8	7.9 8
6.0 0	10.0 0	8.0 0	5.9 5	9.9 7	8.0 2
8.0 0	6.0 0	8.0 0	8.0 2	6.1 0	8.0 1
8.0 0	8.0 0	8.0 0	9.0 6	8.0 2	8.0 1
8.0 0	10.0 0	8.0 0	7.9 7	9.9 1	8.0 1
10.0 0	6.0 0	8.0 0	9.9 8	6.0 7	8.0 1
10.0 0	8.0 0	8.0 0	10.5 2	8.0 0	7.9 8
10.0 0	10.0 0	8.0 0	9.9 8	9.9 1	8.0 0
12.0 0	6.0 0	8.0 0	12.0 4	5.9 8	7.9 8
12.0 0	8.0 0	8.0 0	12.1 7	8.0 1	8.0 1
12.0 0	10.0 0	8.0 0	12.0 0	10.0 3	8.0 0
14.0 0	6.0 0	8.0 0	14.0 2	6.0 0	8.0 0
14.0 0	8.0 0	8.0 0	14.0 6	8.0 1	7.9 9
14.0 0	10.0 0	8.0 0	14.0 2	10.0 0	8.0 1
3.0 0	7.0 0	9.0 0	2.9 9	7.0 5	8.9 5
3.0 0	9.0 0	9.0 0	3.1 3	8.8 2	8.7 5
5.0 0	7.0 0	9.0 0	4.8 8	7.0 8	8.9 7
5.0 0	9.0 0	9.0 0	4.8 8	9.0 0	9.0 0

Table 3 Displacements of lattice atoms which correspond to Fig. 6.

変 位 前			変 位 前		
x	y	z	x	y	z
6.0 0	6.0 0	8.0 0	7.9 3	7.9 2	8.1 6
8.0 0	8.0 0	8.0 0	8.6 6	8.8 8	7.1 7
9.0 0	9.0 0	7.0 0	9.7 6	9.5 2	6.3 7
10.0 0	10.0 0	6.0 0	10.5 0	10.5 3	5.5 3
8.0 0	10.0 0	8.0 0	7.9 4	10.0 7	8.0 9
10.0 0	8.0 0	8.0 0	9.9 3	8.0 3	7.8 9
10.0 0	10.0 0	8.0 0	10.0 7	10.0 2	8.0 0
9.0 0	11.0 0	7.0 0	9.0 2	10.9 1	7.0 3
11.0 0	9.0 0	7.0 0	11.1 5	9.0 8	7.0 6
11.0 0	11.0 0	7.0 0	11.0 7	11.0 2	7.0 8
10.0 0	8.0 0	6.0 0	9.9 5	7.9 2	6.0 2
8.0 0	10.0 0	6.0 0	7.9 8	9.9 5	6.0 1
10.0 0	12.0 0	6.0 0	10.1 1	12.0 7	5.9 9
12.0 0	10.0 0	6.0 0	12.0 0	10.0 2	6.0 2

4.4 フレンケル対生成しきいエネルギー

各計算点において、何回にもわたるPKAのエネルギーについてのサーベイの結果、はじめてフレンケル対が生成するときのPKAエネルギーが求まる。その値を球面三角形中にまとめたのがFig. 9である。フレンケル対生成のしきいエネルギーがeVの単位でまとめてある。図からわかるように、PKAの初速方向により、しきいエネルギーは大きく変化している。この値を分類し、マップ状にして示したのがFig.10である。

はじき出しのエネルギーに関しては、次の点に注意する必要がある。すなわち、はじき出しで生成するフレンケル対の個数は、PKAのエネルギーに対応して単調に増加ないし減少するとは限らない、という点である。これはfcc結晶のCu⁹⁾、あるいはbcc結晶のMo⁵⁾等の計算機シミュレーションで見出されている現象である。今回の計算においても同様の現象が発生しており、例えば、DY-26の計算点では100～120 eVのPKAではフレンケル対が発生しているのに対し、130～140 eVではフレンケル対の生成はなくまた150 eV以上でフレンケル対が生成している。

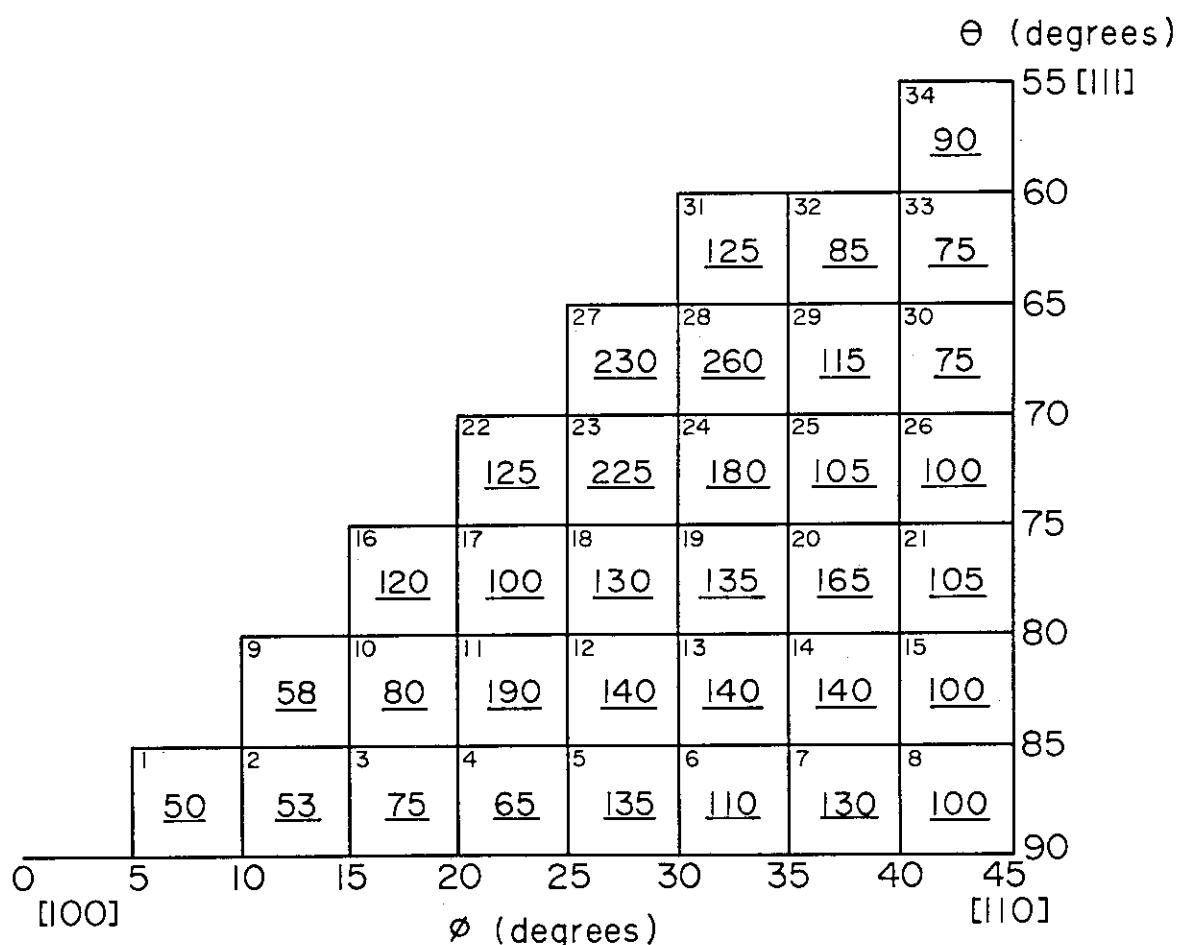


Fig. 9 Threshold energies for Frenkel-pair production in units of eV.

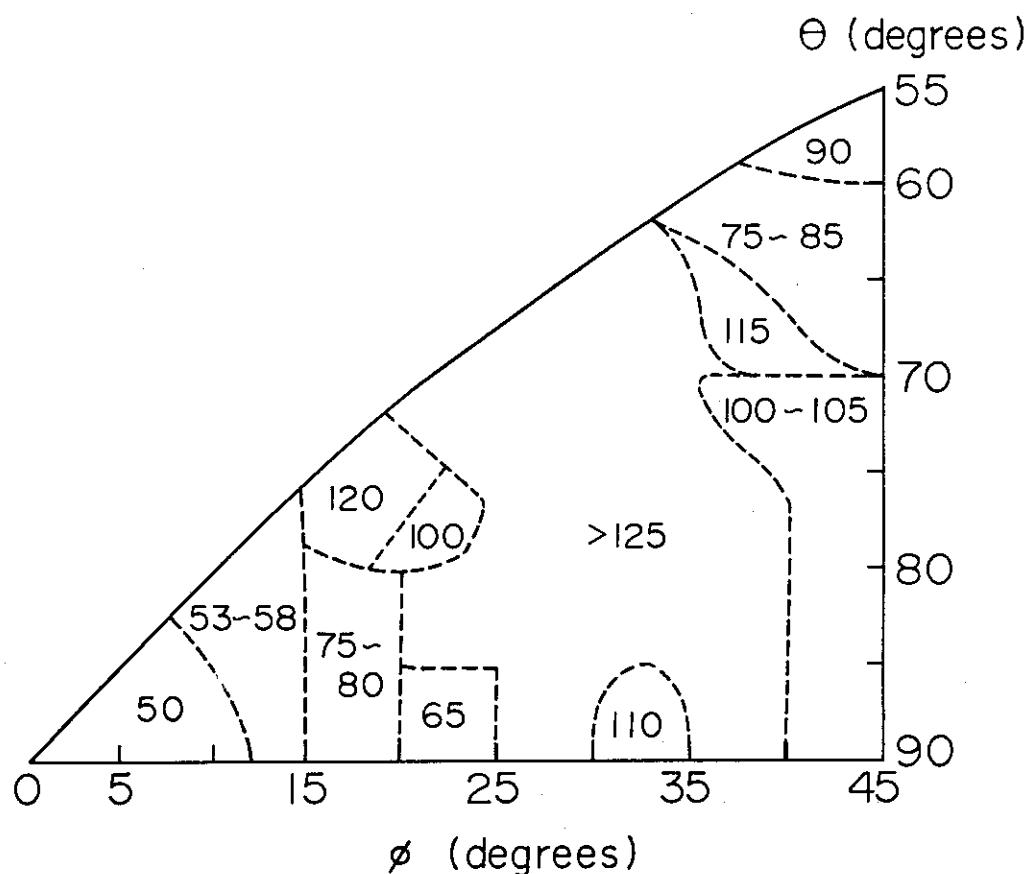


Fig. 10 Distribution of threshold energies

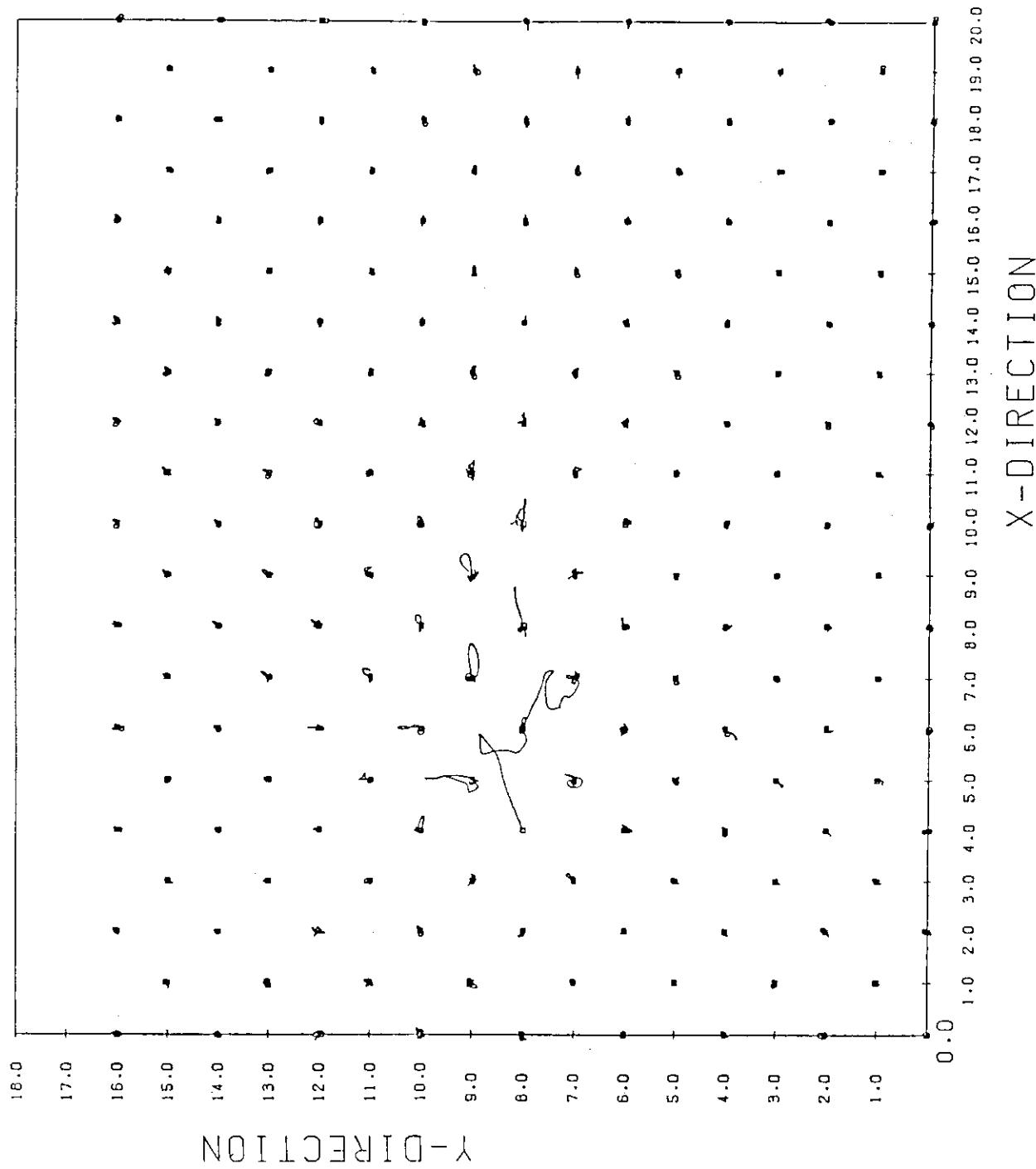


Fig. 11 Displacement pattern of particles for Mo. Computing point is at DY22
 (a) Particles located at between $Z = 7.5$ and 9.5

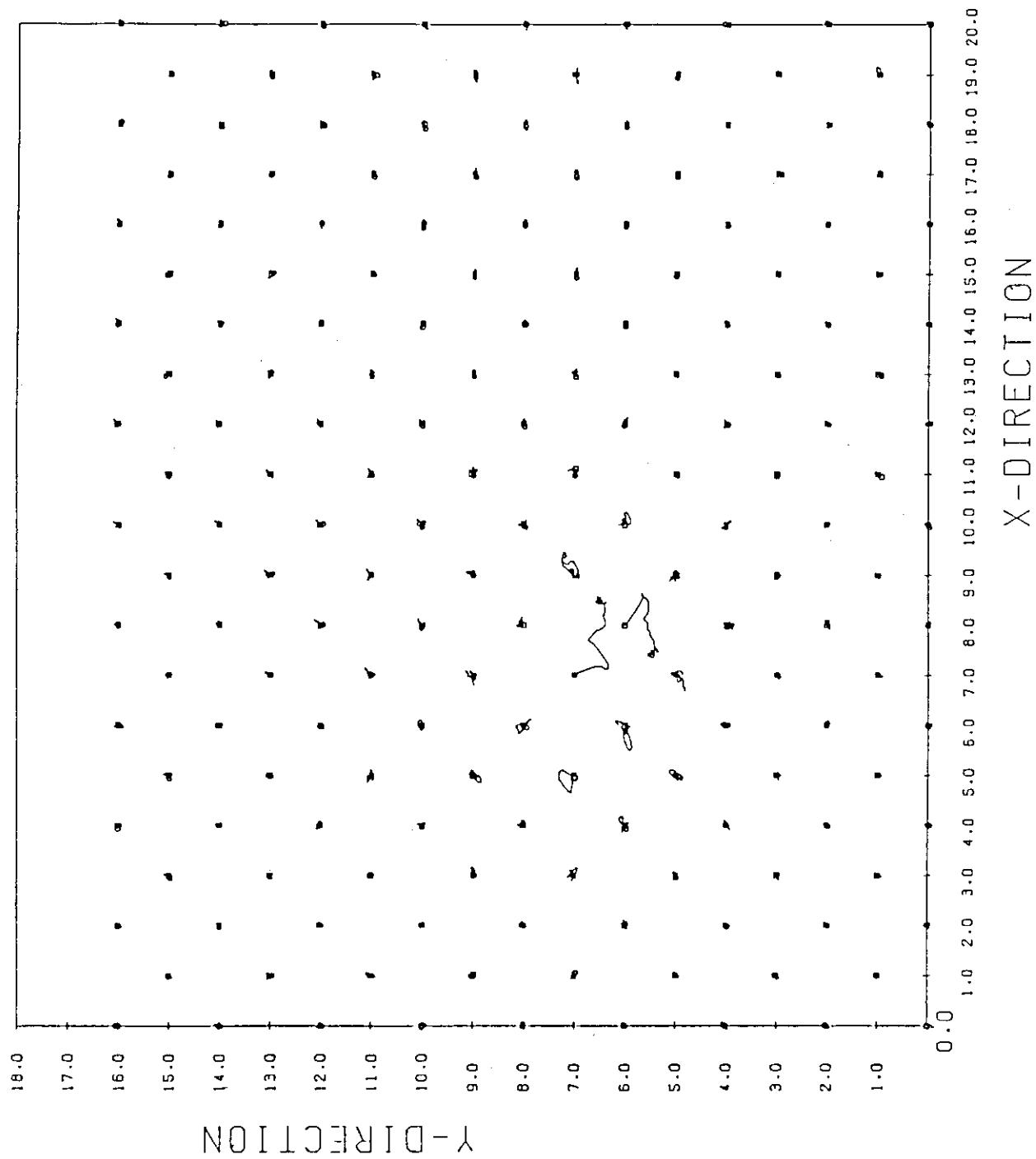
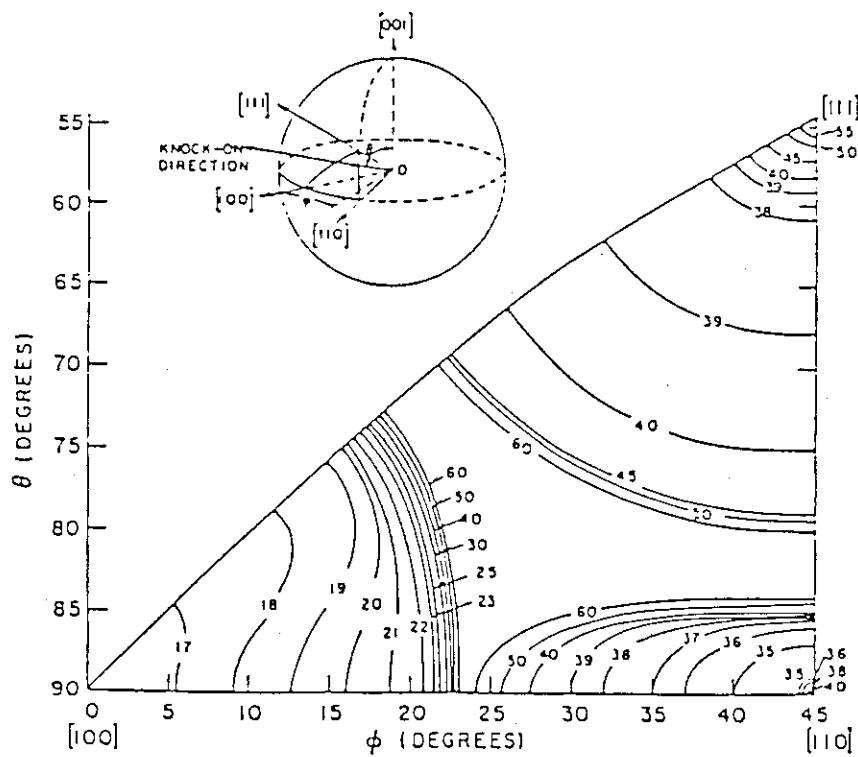
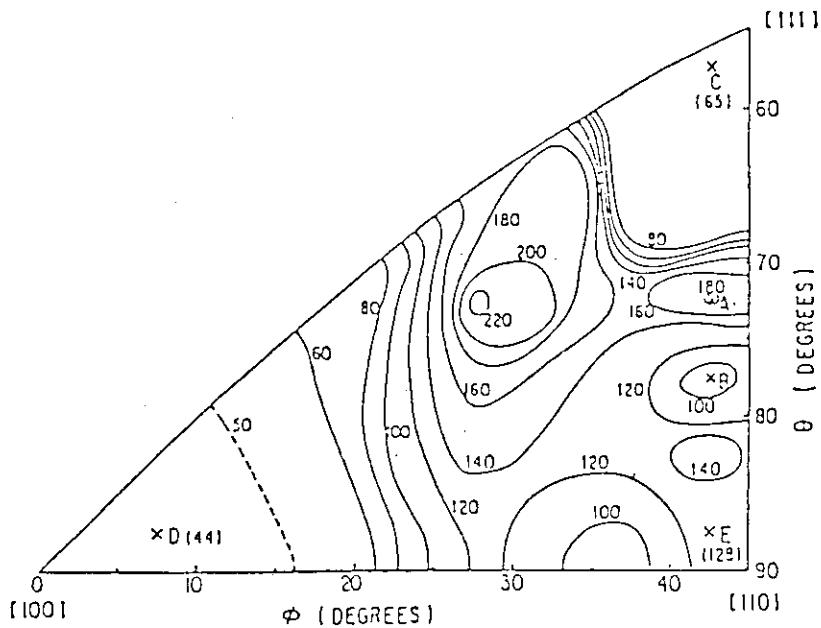


Fig. 11 Displacement pattern of particles for Mo. Computing point is at DY22
 (b) Particles located at between $Z = 5.5$ and 7.5



(a) Fe



(b) Mo

Fig. 12 Contour of threshold energies for Frenkel-pair production in units of eV.

(a) Case of iron. This was calculated by Erginsoy, C et al¹²).

(b) Case of molybdenum. This was calculated by T.Yokota et al¹⁵).

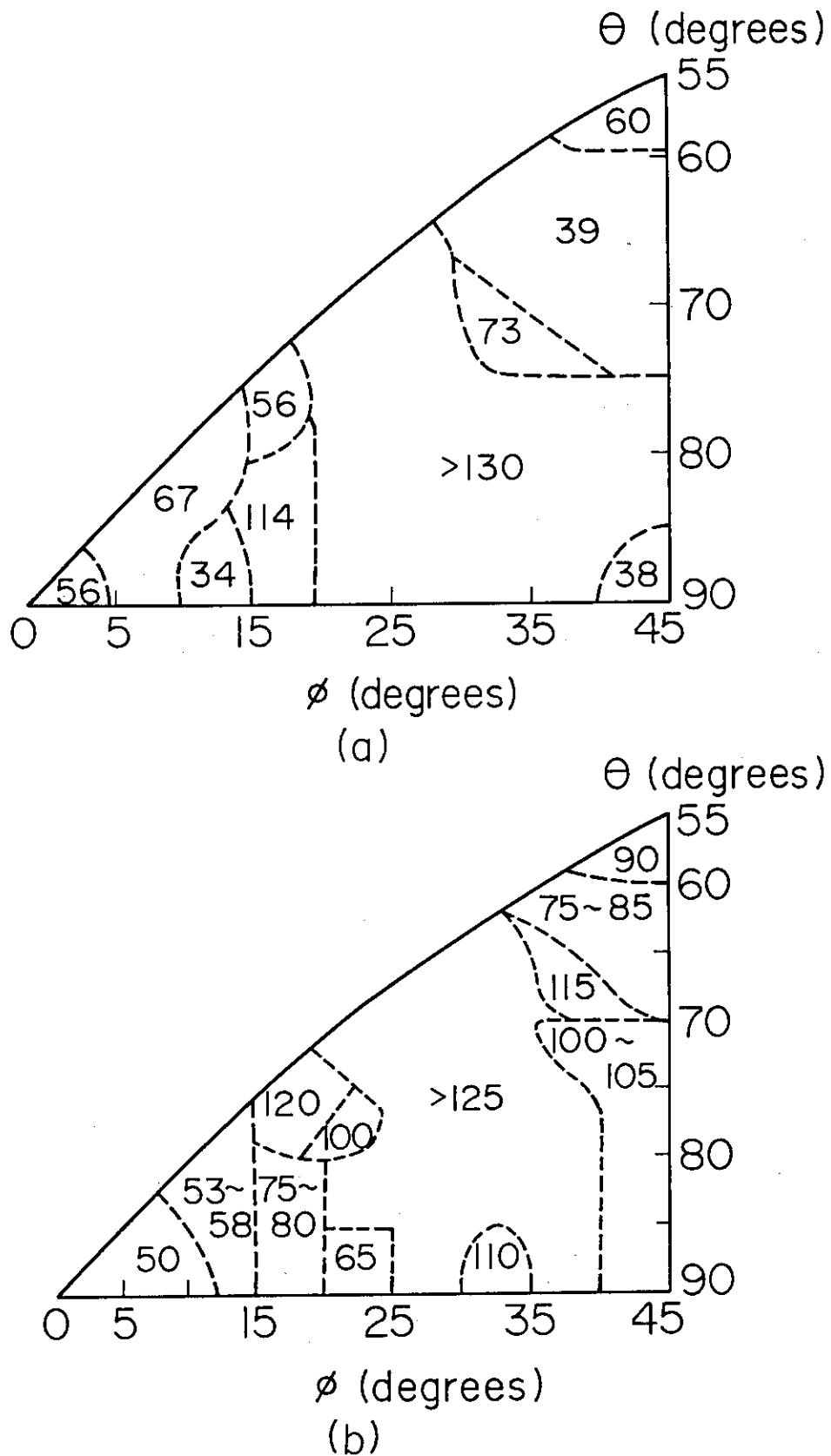


Fig. 13 Comparison of threshold energy contours between experimental and calculational results
 (a) Experimental result obtained by Jung, P and Schilling, W10.
 (b) Present result

5. 計算結果の検討

本章では、本研究で得られた結果を、従来の計算例と比較することにより得られる結論をまとめ。従来、bcc結晶のはじき出しシミュレーションに関しては、²⁾ Fe⁵⁾、それに Moについて詳細に実施されている。以下、はじき出しで生成する格子間原子の形態、およびはじき出しのしきいエネルギーに関して比較した結果をまとめる。

5.1 格子間原子の形態

前章で述べた如く、Taの場合には、はじき出しで生成する格子間原子の型は大別して2種類存在した。1つは[100]クラウディオン型であり、もう1つは[111]方向へ格子原子の変位が連なる型である。前者は主としてPKAの初速方向が<100>方向に近い場合に生じる。これに対し、後者は<111>方向成分を持つ場合にあらわれ易い。一方、Fe²⁾、Mo⁵⁾の場合の格子間原子の型はすべて[110]ダンベル型である。それ以外は見出されていない。Fig.11(a)、(b)にはMoの場合のフレンケル対生成過程を図示する。PKAの方向はFig.3のDY-22である。PKAは(4,8,8)から発生しており、最終的には(8,6,6)の格子点を共有する[110]ダンベル型の格子間原子が生成している。

格子間原子の形態を決めるのは言うまでもなく原子間相互作用ポテンシャルである。Taの場合には、第1近接、第2近接距離にある原子間に斥力が働く。[100]クラウディオン型、それに[111]変位型のいずれの場合でも、格子間原子と第3近接距離にある格子原子の間に引力が働くことが特徴となっている。これに対し、Taの場合、[110]ダンベル型では第3近接距離にあり、かつダンベルと同一面内にある原子間に斥力が働く。このことから、Taの場合には[110]ダンベル型の格子間原子は生成しないものと考えられる。

5.2 フレンケル対生成しきいエネルギー

Fig.12(a)、(b)にFe²⁾とMo⁵⁾の場合に得られたはじき出しのしきいエネルギー計算結果を示す。Fe²⁾はVineyardらが計算したもの、Mo⁵⁾は、原子の横田、田次、岩田により計算された結果である。Fig.10に示したTaの結果も合わせて比較してみると、各々、詳細部分について異っていることがわかる。これは、はじき出しエネルギーは、結晶構造のみでは決められず、当然のことながら原子間相互作用ポテンシャルに依存していることを示している。

Fig.13(a)、(b)は本調査で得られたしきいエネルギーMapperと、Jülichのグループが電子線の実験により得た結果を比較したものである。詳細部分については異っているが、全体的な分布は比較的対応が良いといえる。このことから、本調査で採用したJohnson型のポテンシャルは現実の原子間相互作用を表すのに適していると結論できる。

6. ま と め

本報告書では、分子動力学コードGRAPEを用い、bcc金属であるTa結晶中でのはじき出し過程を解析した結果をまとめた。原子間相互作用ポテンシャルとしてはJohnson型の半経験的ポテンシャルを使用した。得られた結論は以下の通りである。

- 1) Taの場合、はじき出しで生成する格子間原子としては、[100]クラウディオン型、それに[111]方向への変位が連なる型の2つに大別できる。他のbcc金属であるFe, Moでは生成する格子間原子はすべて[110]ダンベル型であった。これは、Taの場合、原子の変位が生じた際に第3近接距離にある原子間に働く力の影響が、[110]ダンベル型では斥力、それ以外では引力として作用することが原因となっていると考えられる。実験的にも、Taの場合、格子間原子が数種類ありうることが示唆されている。
- 2) Ta結晶中のフレンケル対生成のしきいエネルギーを計算し、他のbcc金属における計算結果、およびTaでの実験結果と比較した。Fe, Mo, Taのしきいエネルギー分布を比較すると、詳細部分について各々異なっている。これは、はじき出しエネルギーは結晶構造のみでは決められず、原子間相互作用に依存していることを示す。Taについての実験結果と本調査の結果を比較するとエネルギー分布の対応は良いといえる。これから、Johnson型のポテンシャルは現実の原子間相互作用を表すのに適していると結論できる。

本稿をまとめるに当って、有益な助言をいただいた物理部原子分子物理研究室長中井洋太博士及び日立製作所エネルギー研究所小沢国夫博士に感謝申し上げます。

参 考 文 献

- 1) 布施・岩田：JAERI-M 85-118, (1985).
- 2) Gibson, J.B. et al. : Phys. Rev., 120, 129 (1960).
Erginsoy, C. et al. : Phys. Rev., 133, A595 (1964).
- 3) Johnson, R.A. : Phys. Rev., 134, A1329 (1964).
Johnson, R.A. : Phys. Rev., 145, 423 (1966).
- 4) Johnson, R.A. and Wilson, W.D. : Interatomic Potentials and Simulation of Lattice Defects, Gehlen, P.C., Beeler, J.R., and Jaffee, R.I., eds., Plenum, 301 (1972).
- 5) 横田, 田次, 岩田：JAERI-M 83-226, P.44, (1984).
- 6) Vajda, P. : Rev. Mod. Phys., 49, 481 (1977).
- 7) Larsen, A. : GRAPE, A Computer Program for Classical Many-Body Problems in Radiation Damage, BNL 7979, 1964.
- 8) Wedepohl, P.T. : Proc. Phys. Soc., 92, 79 (1967).
- 9) King, W.E. and Benedek, R. : Phys. Rev., B23, 6335 (1981).
- 10) Jung, P. and Schilling, W. : Phys. Rev., B5, 2046 (1972).

6. ま と め

本報告書では、分子動力学コードGRAPEを用い、bcc金属であるTa結晶中でのはじき出し過程を解析した結果をまとめた。原子間相互作用ポテンシャルとしてはJohnson型の半経験的ポテンシャルを使用した。得られた結論は以下の通りである。

- 1) Taの場合、はじき出しで生成する格子間原子としては、[100]クラウディオン型、それに[111]方向への変位が連なる型の2つに大別できる。他のbcc金属であるFe, Moでは生成する格子間原子はすべて[110]ダンベル型であった。これは、Taの場合、原子の変位が生じた際に第3近接距離にある原子間に働く力の影響が、[110]ダンベル型では斥力、それ以外では引力として作用することが原因となっていると考えられる。実験的にも、Taの場合、格子間原子が数種類ありうることが示唆されている。
- 2) Ta結晶中のフレンケル対生成のしきいエネルギーを計算し、他のbcc金属における計算結果、およびTaでの実験結果と比較した。Fe, Mo, Taのしきいエネルギー分布を比較すると、詳細部分について各々異なっている。これは、はじき出しエネルギーは結晶構造のみでは決められず、原子間相互作用に依存していることを示す。Taについての実験結果と本調査の結果を比較するとエネルギー分布の対応は良いといえる。これから、Johnson型のポテンシャルは現実の原子間相互作用を表すのに適していると結論できる。

本稿をまとめるに当って、有益な助言をいただいた物理部原子分子物理研究室長中井洋太博士及び日立製作所エネルギー研究所小沢国夫博士に感謝申し上げます。

参 考 文 献

- 1) 布施・岩田：JAERI-M 85-118, (1985).
- 2) Gibson, J.B. et al. : Phys. Rev., 120, 129 (1960).
Erginsoy, C. et al. : Phys. Rev., 133, A595 (1964).
- 3) Johnson, R.A. : Phys. Rev., 134, A1329 (1964).
Johnson, R.A. : Phys. Rev., 145, 423 (1966).
- 4) Johnson, R.A. and Wilson, W.D. : Interatomic Potentials and Simulation of Lattice Defects, Gehlen, P.C., Beeler, J.R., and Jaffee, R.I., eds., Plenum, 301 (1972).
- 5) 横田, 田次, 岩田：JAERI-M 83-226, P.44, (1984).
- 6) Vajda, P. : Rev. Mod. Phys., 49, 481 (1977).
- 7) Larsen, A. : GRAPE, A Computer Program for Classical Many-Body Problems in Radiation Damage, BNL 7979, 1964.
- 8) Wedepohl, P.T. : Proc. Phys. Soc., 92, 79 (1967).
- 9) King, W.E. and Benedek, R. : Phys. Rev., B23, 6335 (1981).
- 10) Jung, P. and Schilling, W. : Phys. Rev., B5, 2046 (1972).