

分子動力学法によるシリカガラスへの押し込みシミュレーション

INDENTATION SIMULATION TO SILICA GLASSES
USING MOLECULAR DYNAMICS METHODS西村 正臣¹⁾, 和田 大夢²⁾, 荒井 政大³⁾

Masaomi NISHIMURA, Hiromu WADA and Masahiro ARAI

- 1) 信州大学工学部機械システム工学科 (〒 380-8553 長野市若里 4-17-1, E-mail: nishimu@shinshu-u.ac.jp)
 2) 信州大学大学院理工学系研究科 (〒 380-8553 長野市若里 4-17-1, E-mail: hwada@str.shinshu-u.ac.jp)
 3) 名古屋大学工学研究科航空宇宙工学専攻 (〒 464-8603 愛知県名古屋市中種区不老町, E-mail: arai@nuae.nagoya-u.ac.jp)

In this study, indentation simulations to a silica glass are performed using molecular dynamics methods in order to reveal atomic structural changes under the inhomogeneous deformation. During the loading and the holding at maximum depth, we observe local structural changes from normal-coordinated atoms to over-coordinated atoms, such as $\text{Si}_4 \rightarrow \text{Si}_5$ and $\text{O}_2 \rightarrow \text{O}_3$. These over-coordinated atoms remain after the unloading, and cause high tensile/compressive local stresses. Maximum indentation depths after the simulation vary according to elastic deformation volumes in the silica glass model before the unloading.

Key Words: Molecular dynamics, Silica glasses, Tersoff potential, Nanoindentation.

1. 諸言

近年, あらゆる電子機器の小型化が進んでおり, それに伴ってナノインプリントをはじめとするナノスケールでの加工がシリカガラスにも求められてきている. ガラスに代表される非晶質材料は, 巨視的には均質な等方性を有しているが, 原子レベルでは不均一な原子配置であるために, 局所構造の不均一性を無視できないようなナノスケールでの加工を考える場合には, 均質な連続体モデルでの検討よりも, 原子シミュレーションによる検討が必要となる.

シリカガラスをはじめとする Si-O 系の材料は, Si 原子を中心に O 原子を頂点とする SiO_4 四面体構造を基本構造とした短距離秩序を有しており, 頂点の O 原子を共有して三次元的に結合した原子配置となっている⁽¹⁾. そのため, Si-O-Si 結合角は SiO_4 四面体構造内の O-Si-O 結合角よりも自由度が大きく, その角度によって様々な結晶形態をとることが知られている. シリカガラス中には, このような SiO_4 四面体構造が多数存在し, これらが無秩序に結合したランダムネットワークが形成されたアモルファス構造であると考えられている. その一方で, 完全にランダムな構造ではなく, SiO_2 分子の連なりによって形成される環構造⁽²⁾ のような中距離領域の秩序的ネットワークが存在すると考えられているが, 原子レベルの不均一構造がシリカガラスの変形特性にどのように寄与しているかについては不明な部分が多い.

本研究では, シリカガラスの不均一変形時におけるナノスケールでの局所構造変化について明らかにすることを目的として, 分子動力学法を用いた押し込み解析を実施する. シリカガラスを対象とした押し込み解析は過去にも存在する^{(3),(4)} が, その多くは押し込み直後に引き上げを開始しており, 局所構造変化の過程が不明瞭である. そこで本研究では, 圧子形状や最大押し込み位置における保持時間などを変化させることで, 原子構造の緩和過程についても検討した.

2. 分子動力学法

分子動力学法 (Molecular Dynamics Method ; MD 法)⁽⁵⁾ とは, 系を構成する個々の原子について Newton の運動方程式を適用して, 数値積分することによって全原子の運動を追跡する手法である. 原子 α に作用する力 \mathbf{F}_α は系全体のポテンシャルエネルギー E_{tot} の空間座標についての勾配ベクトルから決定される.

$$\mathbf{F}_\alpha = -\frac{\partial E_{\text{tot}}}{\partial \mathbf{r}_\alpha} \quad (1)$$

このため, ポテンシャルエネルギーの精度が MD 法においては重要となる. 本研究で扱うシリカガラスは SiO_4 四面体構造を基本構造としており, 単純な 2 体間ポテンシャルでは O-Si-O や Si-O-Si といった結合角の変化を考慮できない. そこで本研究では, Si-O 系にフィッティングされた Tersoff ポテンシャル⁽⁶⁾ を用いた. Tersoff ポテンシャルは, Tersoff らが主にシリコンの計算のために考案した多体間ポテンシャル

(7) であり、結合角に依存する項を含めることにより、共有結合の変化を取り入れている。

Tersoff ポテンシャルによる系全体のエネルギー E_{tot}^T は各原子間の結合エネルギー E_{ij}^T の総和であり、以下のように表される。

$$E_{\text{tot}}^T = \frac{1}{2} \sum_i \sum_{j \neq i} E_{ij}^T = \sum_i \sum_{j > i} E_{ij}^T \quad (2)$$

$$E_{ij}^T = f_c(V_{ij}^R - \bar{b}_{ij}V_{ij}^A) \quad (3)$$

ここで、 V_{ij}^R 、 V_{ij}^A は原子 i と j との原子間距離 r_{ij} に依存した斥力項と引力項であり、 \bar{b}_{ij} は結合角などの多体効果を考慮した係数である。また、 f_c はカットオフ関数である。 V_{ij}^R 、 V_{ij}^A および f_c は以下のように表される。

$$V_{ij}^R = A_{ij} \exp(-\lambda_{ij}r_{ij}) \quad (4)$$

$$V_{ij}^A = B_{ij} \exp(-\mu_{ij}r_{ij}) \quad (5)$$

$$f_c = \begin{cases} 1 & (r_{ij} < R_{ij}) \\ \frac{1}{2} + \frac{1}{2} \cos\left(\pi \frac{r_{ij} - R_{ij}}{S_{ij} - R_{ij}}\right) & (R_{ij} < r_{ij} < S_{ij}) \\ 0 & (r_{ij} > S_{ij}) \end{cases} \quad (6)$$

上式において、 λ_{ij} 、 μ_{ij} 、 A_{ij} 、 B_{ij} 、 R_{ij} 、 S_{ij} は、原子 i 、 j の原子種 I 、 J (= Si or O) により決まる定数の相加平均もしくは相乗平均として、以下のように定義される。

$$\lambda_{ij} = \frac{\lambda_I + \lambda_J}{2}, \mu_{ij} = \frac{\mu_I + \mu_J}{2} \quad (7)$$

$$A_{ij} = \sqrt{A_I A_J}, B_{ij} = \sqrt{B_I B_J}, R_{ij} = \sqrt{R_I R_J}, S_{ij} = \sqrt{S_I S_J} \quad (8)$$

結合エネルギー E_{ij}^T において、 \bar{b}_{ij} が結合角依存項で3体効果を含んでおり、結合 $i-j$ と隣接した結合 $i-k$ との結合角 θ_{jik} の関数として以下のように表される。

$$\bar{b}_{ij} = \frac{b_{ij} + b_{ji}}{2} \quad (9)$$

$$b_{ij} = \chi_{IJ} (1 + \beta_I^n \zeta_{ij}^{nI})^{-1/2n_I} \quad (10)$$

$$\zeta_{ij} = \sum_{k \neq i, j} f_c(r_{ik}) g(\theta_{jik}) \quad (11)$$

$$g(\theta_{jik}) = 1 + \frac{c_I^2}{d_I^2} - \frac{c_I^2}{d_I^2 + (h_I - \cos \theta_{jik})^2} \quad (12)$$

ここで、 χ_{IJ} 、 β_I 、 n_I 、 d_I 、 h_I は式 (7)、(8) 中のパラメータと同じく原子種により決まる定数である。式 (7)~(12) 中の各パラメータには、宗籐ら⁽⁶⁾ によるフィッティングにより得られた値を用いた。 $\chi_{\text{SiO}} = \chi_{\text{OSi}} = 1.1794$ 、 $\chi_{\text{SiSi}} = \chi_{\text{OO}} = 1$ であり、他のパラメータは表1にまとめて示した。

本研究では、シリカガラス表面に対して、ダイヤモンド構造を有する圧子を押し込む解析を実施する。圧子中のC原子とシリカガラスを構成するSi原子およびO原子のそれぞ

Table 1 Parameters for Tersoff potential⁽⁶⁾.

	Si	O
A_I [eV]	1.8308×10^3	1.88255×10^3
B_I [eV]	4.7118×10^2	2.18787×10^2
λ_I [Å]	2.4799	4.17108
μ_I [Å]	1.7322	2.35692
β_I	1.1000×10^{-6}	1.1632×10^{-7}
n_I	7.8734×10^{-1}	1.04968
c_I	1.0039×10^5	6.46921×10^4
d_I	1.6217×10^1	4.11127
h_I	-5.9825×10^{-1}	-8.45922×10^{-1}
R_I [Å]	2.5	1.7
S_I [Å]	2.8	2.0

Table 2 Parameters for Lennard-Jones potential⁽⁸⁾.

	Si-C	O-C
ε_{IJ} [meV]	8.909	3.442
σ_{IJ} [Å]	3.326	3.001

れとの原子間相互作用を評価するため、代表的な2体間ポテンシャル関数であるLennard-Jones(LJ)ポテンシャルを採用した。一般にLJポテンシャルは、原子間距離の二乗関数で表され、12乗の斥力項と6乗の引力項とで表される。

$$E_{ij}^{\text{LJ}} = 4\varepsilon_{IJ} \left\{ \left(\frac{\sigma_{IJ}}{r_{ij}} \right)^{12} - \left(\frac{\sigma_{IJ}}{r_{ij}} \right)^6 \right\} \quad (13)$$

ε_{IJ} および σ_{IJ} は原子間ごとのフィッティングパラメータであり、それぞれ結合の強さと原子間距離とに關係している。本研究では、Ongら⁽⁸⁾によるパラメータ(表2)とLJポテンシャルを考慮するカットオフ距離 $2.5\sigma_{IJ}$ を採用した。

3. 解析モデルおよび解析条件

シリカガラスモデルは溶融-急冷シミュレーションによって生成した。Si原子21600個、O原子43200個の総原子数64800個をセル寸法が $22.2 \text{ nm} \times 2.21 \text{ nm} \times 22.2 \text{ nm}$ の薄板状クリストバライト構造となるように配置した後、全方向周期境界条件の下で、10Kより昇温速度 $1.0 \times 10^{14} \text{ K/s}$ で6000Kまで昇温し、6000Kにおいて無負荷でのMD計算を行うことで十分に緩和した。その後、冷却速度 $-1.0 \times 10^{12} \text{ K/s}$ で300Kまで急冷した後、温度を300Kに制御しながらポテンシャルエネルギーが収束するまで緩和した。溶融-急冷および無負荷緩和計算中は系の垂直応力が常に0になるようにセル辺長をスケール制御した。なお、系の応力は以下の式により定義される。

$$\sigma_{mn} = \frac{1}{V} \frac{\partial E_{\text{tot}}}{\partial \varepsilon_{mn}} \quad (14)$$

ここで、 V はセルの体積であり、応力 σ_{mn} とひずみ ε_{mn} の指標 m および n は直交座標の x, y, z に対応する。また、数値積分に用いたVerlet法の積分時間ステップは1.0fsとし、温度制御には速度スケール法を用いた。

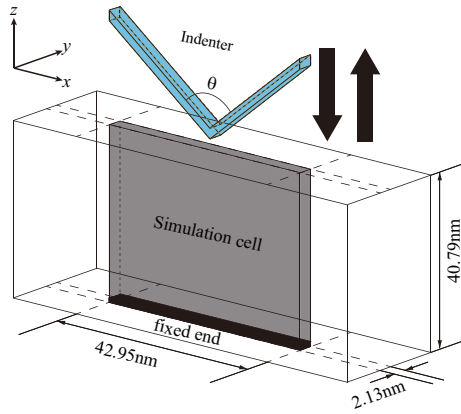


Fig. 1 Schematic of the indentation simulation.

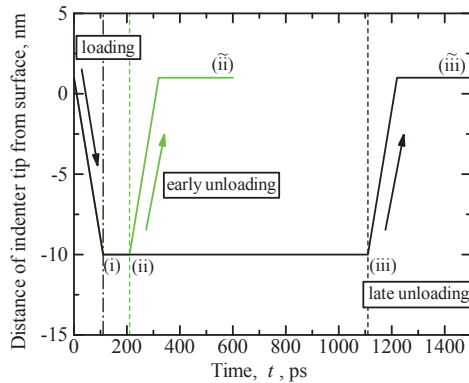


Fig. 2 Loading and unloading conditions of the simulation.

溶融-急冷により得られたシリカガラスモデルを x 方向および z 方向に周期境界条件に従い 2 倍に広げた領域を押し込み対象の解析セルとして新たに設定した。押し込みを実施するために z 方向の上面は周期境界条件から自由境界条件に変更し、下面の厚さ 0.5nm の領域内にある原子は z 軸方向の移動を拘束することで固定端とした。押し込み圧子には、自由表面の上部に作成した三角形のダイヤモンドを用いた。ただし、本研究においては、シリカガラス変形時の内部構造変化を議論の中心としているために、圧子内の C 原子の運動は考慮せず剛体として取り扱う。図 1 に押し込み解析の模式図を示す。三角形圧子形状は、剛体として取り扱うために、LJ ポテンシャルのカットオフ距離程度の厚み分の C 原子で表現しており、圧子先端の頂角は $\theta = 60^\circ, 90^\circ, 120^\circ$ の 3 通りの形状を用いた。解析セルの x 方向および y 方向は周期境界条件のままとするが、溶融-急冷時のようなセル辺長のスケールによる応力制御は行わない。

図 2 に、押し込み解析中の圧子の移動を圧子先端とシリカガラスの初期表面との距離で示す。シリカガラスの初期表面および圧子先端は、各構造中の原子の z 座標の最大値もしくは最小値により、それぞれ定義した。圧子はシリカガラス表面から 1nm 離れた位置に設置され、100m/s の速度で 11nm 押し下げられ、押し込んだ状態にて一定時間保持した後に、押し下げと同じ 100m/s の速度で 11nm 引き上げられる。図 2 に示すように、最大押し込み位置での保持時間は、100ps と 1000ps の 2 通りを採用した。なお、以後の議論において解

析結果を示すときは、(i) の最大押し込み位置に到達した時点、(ii), (ii) と (iii), (iii) の最大押し込み位置での保持時間が短い 100ps と長い 1000ps それぞれの引き上げ前後、に注目して示す。本研究では、3 通りの圧子形状と 2 通りの保持時間の計 6 通りの押し込み解析を実施するが、押し込み対象となるシリカガラスモデルの初期構造はすべて同じである。

4. 解析結果および考察

4.1. 反力および内部応力の変化

押し込み解析中に圧子に生じる反力の変化を図 3 に示す。圧子に生じる反力は、圧子を構成する各 C 原子とシリカガラスモデルの原子との間に生じる原子間力の z 方向成分を総和することで求めた。図 3 の横軸には、シリカガラスの初期表面からの圧子先端距離を示しており、左から圧子先端角度 $\theta = 60^\circ, 90^\circ, 120^\circ$ の結果をそれぞれまとめた。また、最大押し込み位置での保持時間が短い 100ps での引き上げ結果は色を変えて示した。いずれの θ においても、圧子が押し込まれるに伴って反力が増加し、最大押し込み量 10nm に達した時点で、反力は最大となる。押し込み時の反力は接触面積の違いから、 $\theta = 120^\circ$ の時が最も大きい。圧子が最大押し込み位置で保持されると、反力はわずかに低下するが 0 になることはない。保持時間で比較すると、短い 100ps での引き上げに比べて、長い 1000ps での引き上げの方が下側の経路を通ることから、保持時間を長くとるほど反力の低下量が大きいことがわかる。

図 4 に、系の垂直応力 σ_{zz} の変化を横軸に時間をとって示した。系の応力 σ_{mn} は、無負荷時や均一変形時においてはマクロな応力と対応するが、本解析のような不均一変形が生じる場合においては必ずしも対応しない。一方で、系全体で体積平均された応力としてとらえることができることから、内部構造の応力変化を把握する目安として本研究では用いる。図 4 に示すように、 σ_{zz} の値は圧子が押し込まれるに伴い圧縮応力が増大し、最大押し込み位置に到達する 110ps (一点鎖線) においてピークを示す。その後、圧子が押し込み位置で保持されると圧縮応力が次第に低下しており、210ps においてはまだ応力は収束していないが、1110ps においてはいずれの圧子形状でもほぼ応力値は収束している。この時、接触面積の違いから $\theta = 120^\circ$ のときが最も高い圧縮状態となる。210ps と 1110ps の時点から圧子の引き上げが行われると、圧縮応力は除荷され、振動しながら 0 に収束する。この時の振動は、圧子が離れたことによる自由表面の振動に起因しているが、解析条件の違いによる差はほとんどない。

4.2. 配位数変化

押し込み時におけるシリカガラス内部の原子構造変化を検討するために、各原子の配位数を調査した。配位数は、式 (6) で用いた Tersoff ポテンシャルのカットオフ距離 S_{ij} 以内に他の原子が存在する場合に結合しているものとして評価した。シリカガラスの基本構造は、 SiO_4 四面体構造が O 原子を介してネットワークを築いているので、4 配位の Si4 と 2 配位の O2 が各原子の基本配位である。図 5(a) および (c)

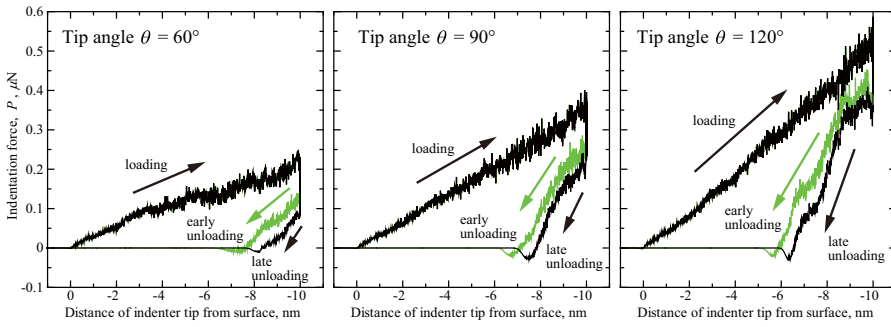


Fig. 3 Indentation force versus distance of indenter tip from surface.

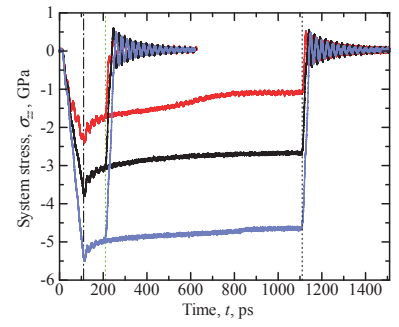


Fig. 4 Changes in the system stress.

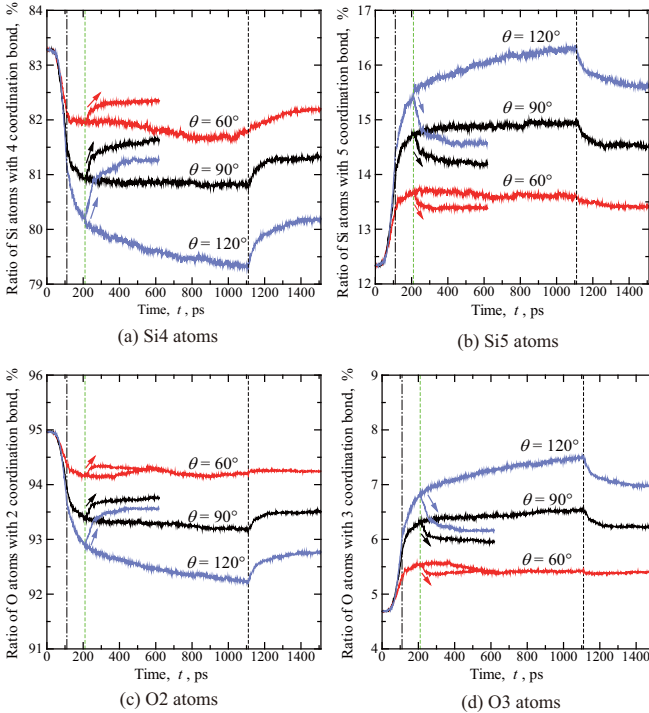


Fig. 5 Changes in ratio of normal-coordinated atoms (Si4 and O2) and over-coordinated atoms (Si5 and O3).

に Si4 と O2 の割合変化をそれぞれ示す。押し込みを開始する前においては、Si4 が 83.3%、O2 が 94.9% であり、SiO₄ 四面体によるランダムネットワークが構成されていることが理解できる一方で、基本配位ではない配位欠陥も初期から存在することが示唆される。押し込みを実施することによって、Si4 と O2 のどちらの割合も低下しており、特に先端角度 $\theta = 120^\circ$ の圧子においては、1110ps においても下がり続けていることがわかる。一方、 $\theta = 60^\circ$ の圧子においては、400ps 付近において、O2 の割合が低下傾向から増加傾向に変化しているが、このモデルにおいては、圧子側面のシリカガラス表面が不均一に盛り上がり、原子が自由空間に飛び出る現象が生じており、それが影響したものと考えられる。圧子を押し込み位置から引き上げると、配位数の割合が減少していたのが、反転して割合が増加した後に、一定割合に収束する。この時の収束値は、いずれも初期割合よりも低く、図中矢印で示した 210ps からの引き上げよりも 1110ps からの引き上げ後の割合の方が低い。特に、 $\theta = 120^\circ$ のモデルでは、

引き上げ時期による収束値の差が大きい。次に、図 5(b) および (d) に Si5 と O3 の原子の割合を示す。それぞれ、基本配位である Si4 と O2 に比べて配位数が多い局所構造を意味しており、初期状態においては、Si5 が 12.3%、O3 が 4.7% である。Si4 と Si5 の合計が 95.6%、O2 と O3 の合計が 99.8% であるから、シリカガラスの配位欠陥のほとんどは、(b) および (d) に示す配位数が多い構造であることが理解できる。これらの構造は、押し込みを実施することによって割合が増加しており、Si5 は (a)Si4 の変化を、O3 は (c)O2 の変化を横軸に対して反転させたような変化を描いた。すなわち、押し込み中の配位数変化は、Si4→Si5 と O2→O3 のように、結合が増加するような局所構造変化が生じていることを示唆している。このような配位数変化は、解析条件によって異なり、除荷後の割合にも違いがみられることから、配位数の増加が生じている領域を特定することで、圧子押し込み時における原子構造変化を把握できると考えられる。

そこで、各時刻における配位欠陥に対応する Si5 原子の位置を可視化したのが図 6 である。図中では、シリカガラス内において配位数が 5 と判定された Si5 原子のみを点で示し、圧子の C 原子も別途表示している。図 (a), (b), (c) に圧子先端角度 $\theta = 60^\circ, 90^\circ, 120^\circ$ の結果をそれぞれまとめており、各図中に、最大押し込み位置で圧子保持中の (i)110ps, (ii)210ps, (iii)1110ps における分布と、(ii) と (iii) の各時点から引き上げを行った後の (ii̇)610ps と (iii̇)1510ps での分布を示している。まず、(a)~(c) それぞれの (i) を見ると、押し込み圧子の直下の領域において Si5 原子が他の領域に比べて密に存在しており、図 5 で示した配位数の増加が圧子押し込み位置周辺で集中的に生じていることがわかる。(a) $\theta = 60^\circ$ の圧子モデルにおいては、(ii) では Si5 が密な領域はあまり大きく変化しないが、(iii) では圧子の右側において、表面が盛り上がり、その影響で Si5 原子の密度も低下している。一方の (b) $\theta = 90^\circ$ および (c) $\theta = 120^\circ$ では、(i)→(ii)→(iii) において Si5 原子の密な領域が広がっている。特に (c) では、Si5 原子の増加が顕著にみられ、(i) の時点では Si5 原子の集中が確認できるのは圧子先端から 5nm ほどの領域のみであったのが、(iii) では圧子と接する表面全域において確認できる。圧子引き上げ後の (ii̇) や (iii̇) においても、Si5 原子の密な領域は残留しており、押し込み位置の周辺部は除荷後も押し込みによる構造変化が維持されていると考えられる。配位数の増

加は、局所領域内の原子数の増加を意味するので、押し込みによって、圧子直下領域の密度が増加するような不可逆な変形が生じたことが示唆される。

4.3. 局所応力変化

次に、シリカガラス内の局所応力を評価する。多体間ポテンシャルで表現される分子動力学法において、

$$E_{\text{tot}} = \sum_{\alpha} E_{\alpha} \quad (15)$$

のように、系のエネルギーを各原子の寄与に分けることが可能ならば、式(14)に示した系の応力 σ_{mn} も、

$$\sigma_{mn} = \frac{1}{N} \sum_{\alpha} \sigma_{mn}^{\alpha}, \quad \sigma_{mn}^{\alpha} = \frac{1}{V/N} \frac{\partial E_{\alpha}}{\partial \varepsilon_{mn}} \quad (16)$$

のように、各原子位置における原子応力 σ_{mn}^{α} の平均として解釈が可能である。ただし、原子応力は各原子位置の周辺構造の違いによって大きく異なるために、シリカガラスのようなアモルファス構造においては局所構造の違いによるバラつきが非常に大きく、そのままの値での評価は容易ではない。そこで本研究では、式(16)により求まる原子応力を局所領域内で平均化した値を用いて検討する。すなわち、各原子位置から一定距離内に存在する原子数 N_{local} の原子応力 σ_{mn}^{α} の平均として局所応力 $\sigma_{mn}^{\text{local}}$ を定義した。今回は、局所応力を評価するための距離を 0.85nm と設定しており、 N_{local} の数は 200 程度である。図 7 に、最大押し込み位置での圧子保持時における局所応力の分布変化を示す。(a) $\theta = 60^{\circ}$ の圧子では、押し込み直後の (i) においても、高い圧縮状態の局所領域は圧子直下のみにしか存在しておらず、圧子保持時間が経過するにしたがって、その高い圧縮状態が緩和されていることがわかる。圧子先端角度 θ が大きくなるにつれて、圧子直下のみではなく、シリカガラス下側にかけても高圧縮状態となる。これは、 θ が鈍角になり、圧子形状が平たくなることでモデル全体が収縮されるような弾性的な変形が生じることが原因と考えられる。(b) や (c) においても、(i) \rightarrow (ii) \rightarrow (iii) と圧子保持時間が経過するに伴って、圧子直下の高圧縮領域の分布が変化しており、図 6 に示したような配位数の増加を伴う局所変形により応力状態も変化したものと理解できる。さらに、モデル内部の下面まで広がっている高圧縮状態も時間が経過することで緩和されているが、圧子直下領域以外のモデル内部では結合状態はほとんど変化していないことから、モデル全域で構造緩和が生じているわけではなく、モデル上部の局所変形が生じることでモデル全域での弾性変形量が緩和されたものと考えられる。

図 8 に引き上げ後の (ii)610ps と (iii)1510ps における局所応力の分布を示す。ただし、図 7 とは異なり、 $\sigma_{zz}^{\text{local}}$ は $\pm 5\text{GPa}$ の範囲で色づけしていることに注意されたい。いずれの条件においても押し込み位置周辺において局所的に高圧縮状態もしくは高引張状態となる領域が確認できる。これらは、図 6 に示したように局所的に密な構造が圧子引き上げ後も維持されることで生じた残留応力として理解できる。一方で、押し込み領域ではないモデル下側の領域においては高応力状態の

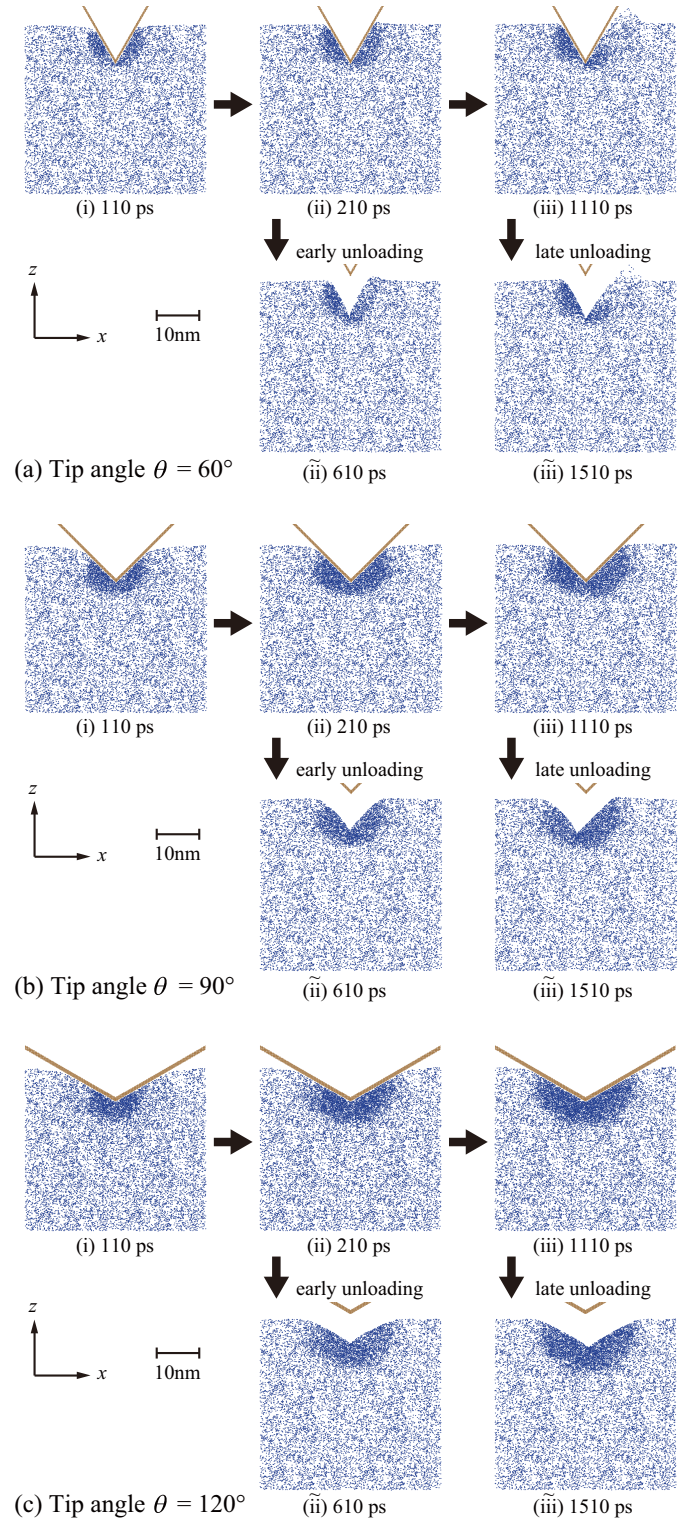


Fig. 6 Distribution of 5-fold coordinated Si atoms.

領域はほとんど見られないことから、図 7 において見られた押し込み時における高圧縮状態は引き上げによって解消される弾性変形によるものであったことがこの図からもわかる。なお、他の応力成分においても、図 8 と同様に圧子直下のみの局所領域で高い応力状態を確認している。

最後に、図 8 の各時点における圧痕の最大深さを表 3 にまとめて比較する。いずれの最大深さも、最大押し込み量である 10nm よりも小さく、表の値と 10nm との差が大きいほど圧子が引き上げられるときに戻される変形量が多いことを

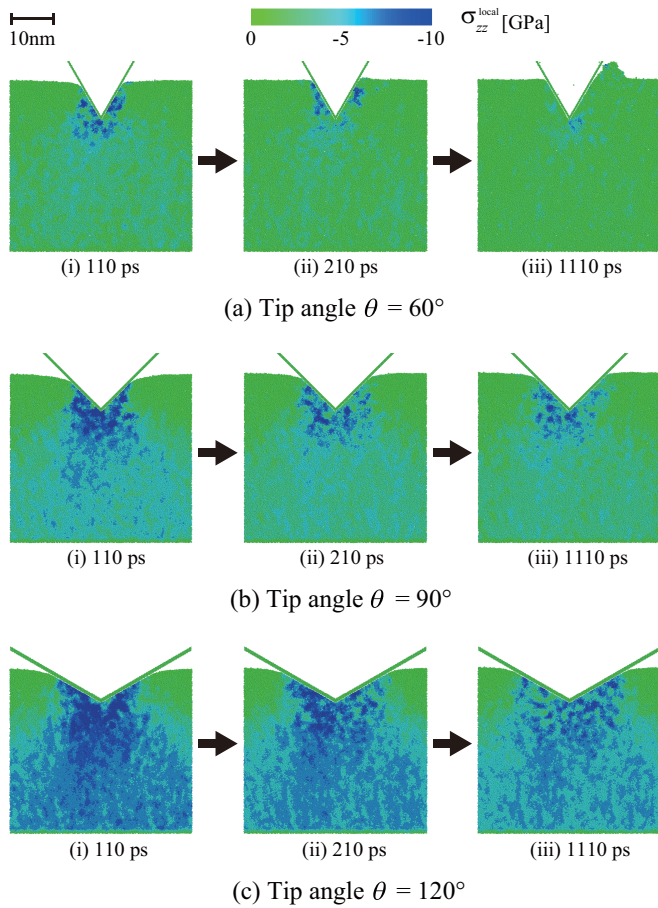


Fig. 7 Visualizations of local stresses during the holding at maximum depth.

Table 3 Maximum indentation depth after unloading

	$\theta = 60^\circ$	$\theta = 90^\circ$	$\theta = 120^\circ$
(ii) 610ps	8.32nm	7.31nm	5.71nm
(iii) 1510ps	9.07nm	8.37nm	6.69nm

意味する。圧子形状で比較すると、 θ が大きくなるほど圧痕は浅く、最大押し込み位置での保持時間で比較すると、保持時間が短い(ii)の方が(iii)よりも圧痕は浅い。これは、図7の(ii), (iii)に示した圧子引き上げ前におけるモデル全域での圧縮状態の違いと対応している。すなわち、図7においてモデル下部まで広がる圧縮応力状態は弾性変形により生じている応力であると考えられるので、この時点で高い圧縮状態にあればあるほど、弾性変形量が除荷された時の戻り量が大きくなり、圧痕の深さが浅くなるものと理解できる。

5. 結言

本研究では、シリカガラスの不均一変形時における原子構造変化について検討するために、分子動力学法を用いた押し込み解析を実施した。圧子直下の領域では、原子の配位数が増加して高密度になるような局所変形が確認できた。このような局所構造変化は圧子を最大押し込み位置で保持している間も継続して生じ、シリカガラス内部の応力が緩和されることが示唆された。圧子引き上げ後も押し込み位置周辺の領域

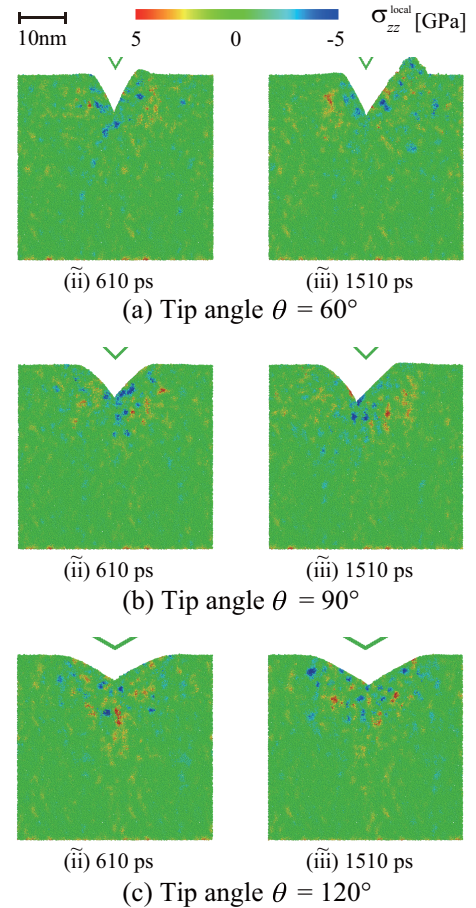


Fig. 8 Visualizations of local stresses after unloading.

では、配位数の増加が維持されており、その影響で高圧縮状態もしくは高引張状態となる局所領域が確認された。押し込みによる圧痕深さは圧子形状や最大押し込み位置での保持時間により異なっており、圧子引き上げ前のガラス内部での弾性変形量の違いが影響していることが示唆された。

参考文献

- (1) 作花 濟夫：ガラス非晶質の科学，(1983)，内田老鶴圃。
- (2) X. Yuan and A. N. Cormack : Efficient algorithm for primitive ring statistics in topological networks, Computational Materials Science, **24**(2002), pp. 343-360.
- (3) K. Nomura, Y. Chen, R. K. Kalia, A. Nakano, and P. Vashishta : Defect migration and recombination in nanoindentation of silica glass, Applied Physics Letters, **99**(2011), pp. 111906-1-3.
- (4) D.A. Kilymis and J.M. Delaye : Nanoindentation of pristine and disordered silica: molecular dynamics simulations, Journal of Non-Crystalline Solids, **382**(2013), pp. 87-94.
- (5) 上田 顯：コンピューターシミュレーション，(1990)，朝倉書店。
- (6) S. Munetoh, T. Motooka, K. Moriguchi and A. Shin-tani : Interatomic potential for Si-O systems using Tersoff parameterization, Computational Materials Science, **39**(2007), pp. 334-339.
- (7) J. Tersoff : New empirical approach for the structure and energy of covalent systems, Physical Review B, **37**(1988), pp. 6991-7000.
- (8) Z. Y. Ong and E. Pop : Molecular dynamics simulation of thermal boundary conductance between carbon nanotube and SiO₂, Physical Review B, **81**(2010), p. 155408.