1418 分子動力学法によるグラフェンシートにおける非線形局在モードの解析

Analysis of intrinsic localized mode in graphene sheet using Molecular dynamics simulations

○ 山寄 優 (京大院)   正 土井 祐介 (阪大工)   正 中谷 彰宏 (阪大工)   正 北村 隆行 (京大工)

Yu Yamayose, Kyoto University, Yoshidahommachi, Sakyo, Kyoto 606-8501

Yusuke Doi, Osaka University, 2-1 Yamadaoka, Suita, Osaka 565-0871

Akihiro Nakatani, Osaka University

Takayuki Kitamura, Kyoto University

Key Words: Intrinsic localized mode, Molecular dynamics simulation, Graphite Carbon

1 緒言

材料中には様々な波長の波動が発生し、その動的特性に大きな影響を与えている。例えば、弾性波は材料に変形や割れが生じた際に蓄積されたひずみエネルギーを放出するなどの役割を担っている。また材料の熱的、電気的性質にも影響を及ぼす。

このような波動現象の多くは、結晶格子のスケールに比べて十分長い波長を持つ現象であり、材料を連続体とみなして議論することが可能である。一方で、結晶格子のスケールでの動的特性については、直接数値シミュレーションを用いて、材料のマクロな特性との関連を調べるといった観点から研究が行われてきており、波動という観点からはあまり解析がされていない。ところが、近年非線形波動の分野において、離散格子系に特有の非線形波動現象として、非線形局在モード (intrinsic localized mode) の存在が報告された⁽¹⁾⁽²⁾。これまでに非線形局在モードについては、理想的な格子系を用いてその特性について詳細な研究が行われてきた⁽³⁾。

結晶材料を微視的に見ると、原子が周期的に配列した離散的な構造と見ることが可能である。よって実際の材料においてもミクロスケールにおいて非線形局在モードが現われ、材料の物理的特性になんらかの影響を与える可能性が考えられる。しかし実材料をモデル化した系における非線形局在モードの研究はほとんど行われておらず、非線形局在モードの存在条件も明らかになってはいない。今後、非線形局在モードが材料の物理的特性にどのような影響を及ぼすのかを明らかにしていく第一歩として、非線形局在モードが実材料において存在し得るのかを明らかにし、存在し得るのであればどのような条件下で存在し、どのような性質を有するのかを評価することが必要である。

そこで本研究では実材料として2次元のグラフェンシートを取り上げ、原子間ポテンシャルとして炭素の物性を再現する3体間ポテンシャルである Brenner ポテンシャル⁽⁴⁾を用いて、分子動力学法 (Molecular dynamics simulation, MD) による原子スケールの振動解析を行ない、実材料における非線形局在モードの存在可能性の検証及びその存在条件、性質の評価を行なう。

2 非線形局在モード

非線形局在モードは1988年に Sievers 及び Takeno によって報告された離散格子系に特有の格子スケールにおける振動の局在化現象である。非線形局在モードにおいて振動が系に広がることなく局在する原因は以下のようなものである。

(1) 離散格子系においては、系に存在可能な波の波長に下限が存在し、このことに起因して波の分散関係に上限が生じる。このような特性は離散系に特有のものである。そのため系に対して分散関係の上限を越える振動数の振動を与えても、その振動

数を有するフォノンモードは系を伝播することができない。(2) 系に非線形性が存在する場合、その非線形性は系に存在する波動の振動数を大きくする作用がある。非線形性によって振動数が大きくなることによって、その離散系における分散関係の振動数の上限を越えた場合その振動は系に広がることができず局在することになる。このようにして系の離散性と非線形性が影響しあうことによって非線形局在モードは励起される。

3 解析モデル及び解析方法

解析対象である2次元グラフェンシートのモデルとしては Fig.1(a) に示すような単位セルを x 方向に12個、 y 方向に7個並べたシミュレーションセルを用いる。シミュレーションセルを Fig.1(b) に示す。またセルの x, y 方向には周期的境界条件を適用する。

非線形局在モードを生成するために初期条件として、Fig.2 に示すような形で初期変位を与え、同時に変位と比べて微小なオーダーの運動量をランダムに全原子に与える。非線形局在モードが存在し得る系においては、このような形の初期条件から変調不安定によって非線形局在モードが生成することが知られている。本解析では全原子に y 方向に交互に $0.10 \text{ \AA}$ の変位を与える。初期運動量は、系の初期温度が 10 K に相当するようにボックスミュラー法による乱数生成を利用して全原子にランダムに与える。この初期条件のもとで原子間ポテンシャルに Brenner ポテンシャルを用い、分子動力学計算を行なった。数値積分にはベルレ法を用い、タイムステップは $1.0 \times 10^{-17} \text{ s}$ に取った。計算は全300000ステップ行ない、各原子の有するエネルギーが時間経過に伴いどのように変化するかを調べることで系における非線形局在モードの励起の有無を検証した。

また比較のために初期変位の大きさを $0.03 \text{ \AA}$ と小さく取り、同様に 10 K に相当する初期運動量を与えた系についても解析を行なった。

Fig. 1 Simulation model of graphene sheet.

Fig. 2 Schematic illustration of initial condition to generate ILMs.

4 結果および考察

Fig.3 に時間 t と全原子の中で最もエネルギーの高い原子の有する最大エネルギー $E_{\max}$ の関係を示す。ただしエネルギーの基準を平衡状態に取っており、全ての原子が格子点に静止しているときの系の全エネルギー E_{total} を 0eV と定めている。実線で示したものが初期変位 0.10 Å を与えたときの解析結果である。破線で示した初期変位 0.03 Å の系の解析結果と比較すると、初期変位 0.10 Å を与えた系では最大エネルギーが時間経過に従って大きく上昇していることがわかる。これは系の局所へのエネルギーの集中、すなわち局在現象が現われていることを意味している。

Fig.4 に系における最大エネルギーの上昇が確認された後のエネルギー分布の時間変化の様子を示す。系の数力所に局所的にエネルギーの高い部分が現われ、時間が経過しても同じ場所に残っていることから、非線形局在モードが励起がされていることが確認できる。

次にひとつの非線形局在モードがどの程度の時間持続しているのかを検討する。Fig.5 は Fig.4 で印をつけた局在部においてエネルギーの集中している 2 原子のエネルギーの和が時間経過によってどのように変化しているかを図示したものである。0.60ps からエネルギーが上昇し始め、0.80ps から 1.35ps 程度までエネルギーの高い状態が持続し、その後エネルギーが低下している。このことから、励起された非線形局在モードが 0.5~0.6ps 後に崩壊していることがわかる。

Fig. 3 Temporal evolution of the maximum particle energy $E_{\max}$ in the system.

Fig. 4 Change of energy distribution in time after energy localization.

5 結言

2次元のグラフェンシートでの分子動力学計算において、適当な初期条件を与えることによって非線形局在モードが励起されることが明らかとなった。今後、励起された非線形局在モードの振動特性を詳細に評価し、非線形局在モードの励起が構造材料の物理的特性に及ぼす影響を明らかにすることを目指す。

文 献

- (1) A. J. Sievers and S. Takeno, Phys. Rev. Lett. **61**, 970 (1988).
- (2) S. Takeno, K. Kisoda and A. J. Sievers, Prog. Theor. Phys. Supplement **94**, 242 (1988).
- (3) S. Flach, C. R. Willis, Phys. Rep. **295**, 181 (1998).
- (4) D. W. Brenner, Phys. Rev. B **42**, 9458 (1990).

Fig. 5 Temporal evolution of energy of the localized mode which is marked in Fig.4.