摩擦界面における原子スケール変形・破壊挙動の 分子動力学解析*

佐々木 直哉^{*1}, 岩 崎 富 生^{*1}, 千 葉 矩 正^{*1}
阿 部 康 夫^{*2}, 川久保 洋一^{*1}

Molecular Dynamics Simulation of Atomic-scale Deformation and Fracture of Frictional Surfaces

Naoya SASAKI, Tomio IWASAKI, Norimasa CHIBA,
Yasuo ABE and Youichi KAWAKUBO

A molecular dynamics simulation is used to investigate the atomic scale friction generated between two solid surfaces sandwiching a solid thin film. We examine the influence of temperature, load, film thickness and shape of the interatomic potentials on dynamic properties of atoms at the interfaces of the sliding contact surfaces which undergo plastic deformation. The results of the simulations show that the deformation patterns of the two solid surfaces and the force due to frictional sliding depend on the mobility of the thin film and on the temperature. We also find that the film mobility decreases with an increase in the load when the film thickness is small. Moreover, we show that the relationship between the friction coefficient and the temperature in this friction model might be described by the Arrhenius model.

Key Words: Computational Mechanics, Dynamic Friction, Molecular Dynamics, Coefficient of Dynamic Friction, Wear, Microtribology

1. 緒 言

磁気ディスクやマイクロマシンなど多方面で微小接触領域条件下での微小摩擦、摩耗の低減が要求されている。摩擦、摩耗現象を解明し、制御するためには、真に接触している領域のモデル化と解析が重要である。実際の接触面では潤滑剤や汚れなどの薄膜が介在し、真実接触部で発生するミクロな摩耗現象は変形と破壊を伴い、従来の凝着説などで記述される結果と比べ複雑な挙動を示すと思われる。例えば、磁気ディスクなどに見られるように、装置の高密度化に伴うヘッドスライダとディスク媒体間距離の減少化により発生する現象では、固体間に潤滑液が介在する場合に液体が薄膜としてシェアレート増加により固体的振舞いを示すことなど知られている⁽¹⁾。また、膜の構造により、バルク側にどのような影響を及ぼすかは未知の点が多い。これに対し、潤滑剤に限らず、表面の汚れや酸化膜等の厚みがnmオーダーの薄膜が介在する接触面におけるナノ構造変形での原子挙動を計算機実験で調べるこ

とは摩擦メカニズムを解明する上で有効である。しかし、本当の真実接触部がどのような形状をしているかは計測が困難でわからないのが現状であるため、シミュレーションにおいて、原子レベルの突起と平面の原子スケール摩擦、摩耗現象を分子動力学を用いて解析している研究がいくつか行われている^{(2)~(5)}。このモデルでは、接触部は微小であり、比較的大きな領域の大規模な摩擦部の変形や破壊をシミュレートするには十分ではなく、接触面積の大きなモデルでの解析が必要となる。この種の研究において詳細に検討した例は見当たらない。

本報では、摩擦部材料界面におけるナノ構造の変形形態とせん断力の変化を調べるため、膜の構造変化とバルク内の変形形態の關係に着目して、単原子モデルの薄膜が接触面積の大きな二つの金属にパッキングされたモデルを考え、界面の原子挙動を分子動力学を用いて解析する。

記 号

k_B : ボルツマン定数 $= 1.380\,066 \times 10^{-23}$ J/K
 m : 原子の質量(α 鉄の場合 9.276×10^{-26} kg)
 N : 系の原子の個数
 n : 計算ステップ

* 原稿受付 1995年11月9日。

^{*1} 正員、(株)日立製作所機械研究所(〒300 土浦市神立町502)。

^{*2} (株)日立製作所機械研究所。

t : 時間

Δt : 単位時間ステップ

T : 系の温度

E_0 : 活性化エネルギー

$\mathbf{r}_i$: 原子 i の位置ベクトル

F_{ij} : i 原子に作用する力ベクトルの j 方向成分

μ : 摩擦係数

F_f : 摩擦力

w : 全押圧力

v_p : すべり速度

Φ : 系のポテンシャル

l_i : 薄膜の層数

$D(k)$: k 番めの層の移動しやすさを表すパラメータ

i, j, k : 結晶格子の x, y, z 方向層番号

添字

i, j, k : 原子の番号

(n): 計算ステップ

2. 計 算 方 法

2.1 摩擦モデルの選定 よく用いられる真実接触部のモデルは、図1に示すような突起と突起の接触を考えている。しかし、本当の真実接触部がどのような形状をしているのかは計測が難しくわからないため、原子レベルのモデルをいくつか考える必要が出てくる。その中で一般的に妥当と思われるモデルを図2に示す。一つは原子レベルの微小突起が真実接触部で平面と接触する場合。もう一つは平面同志の接触の場合である。平面同志のモデルは真実接触部の平面部が比較的長い場合を意味する。ただし、同じ材料の場合、二つの物体は完全に凝着してしまうが、現実的には表面に潤滑剤や酸化膜等の薄い膜が存在することが多いので、薄膜を中間に置いた三層のモデルが適切であると考えられる。前者のモデルに関してはいくつかの研究が報告されているが^{(2)~(4)}、後者のモデルにおいては見当たらない。本報では、この後者のモデルを考え、シミュレーションを行う。

Fig. 1 Asperity model

Fig. 2 Friction model

2.2 計算モデル 本報で用いる原子モデルには、上下の材料に α -Fe(bcc 構造)を用い、上側金属の接触面を(110)面として、下側金属の(110)面上に形成された薄膜との接触を考える。 α -FeにはJohnsonポテンシャルを用い⁽⁶⁾、薄膜もほぼ初期構造はbcc構造を示すように後に示す仮想的なポテンシャルにより作られる。薄膜原子質量 m は α -Feと同じに仮定した。図3には、原子モデルの三次元計算格子図と座標系を示す。上下側金属は3面が(001), (110), (110)により構成され、[001], [110], [110]方向をそれぞれ、 x, y, z 方向に選ぶ。層番号は二層を一組として、 z 軸方向に $k=1 \sim 16$, y 軸方向に $j=1 \sim 15$ と付け、 x 軸方向は二層とし、原子数は、全部で960個となる。薄膜層は $k=6 \sim 9$ とする。すべり距離は約40Åとした。実際の摩擦挙動シミュレーションでは、境界条件として、下側金属の $k=1$ の層の原子を x, y, z 方向に固定し、上側金属の $k=16$ の層の原子を x 方向変位に固定し、 y, z 方向を変位拘束する。単位時間ステップを Δt として単位時間に移動させる距離を Δy とすると、上側金属の移動速度、すなわちすべり速度は $v_p = \Delta y / \Delta t$ となる。 x, y 方向は周期境界とする。また、押付け荷重 w をなるべく一定にするには、上側金属の z 方向変位を荷重 w の値に応じて制御することで行う。初期段階では、上側金属と薄膜がカットオフ距離以上離れた状態のまま薄膜が平衡状態になったら上側金属を少しずつ薄膜に近づけて行く。

次に、薄膜の挙動を表す指標として各薄膜層に対し、原子の平均二乗距離を時間で割った値として拡散係数の近似的表現であるパラメータ $D(k)$ を式(1)のように定義する。ここで $D(k)$ は薄膜の動きやすさ(mobility)も表すと考え、移動性パラメータと呼ぶ。 $\mathbf{r}_i(t)$ は原子 i の位置ベクトル、 N_k は時間 $t=0$ における各 k 番めの薄膜二層分の原子数である。 k は下方から順番

Fig. 3 Calculation model

につけられる。

$$D(k) = \sum_{i=1}^{N_k} (|\mathbf{r}_i(t) - \mathbf{r}_i(0)|)^2 / (N_k t) \quad \dots\dots\dots (1)$$

2・3 界面間原子間ポテンシャル 図4に示すような三つの形のポテンシャルをまず作成し、その中から界面原子間のポテンシャル Φ_{ml} (上金属・薄膜間)、 Φ_{lm} (薄膜・下金属間) と、薄膜構造を決めるポテンシャル Φ_{ll} に対し選択する⁽²⁾。結晶の結合強さを表すポテンシャル深さは α Fe(bcc 構造) では約 0.252 [eV] 程度になる。図4の各ポテンシャルでは、この値は α Fe よりも十分小さいものを用いる。したがって、薄膜は鉄に比べて、変形しやすくこわれやすい材料となる。

2・4 摩擦モデル ここでは、以下に示す理由により単原子薄膜を介在したモデルを考える。

(1) 同じ材料の接触では接触面が凝着してしまい一つの物体のせん断破壊と同じであるが、実際の界面にはなんらかの固・液体が存在すると考えられる。

(2) 潤滑剤などの高分子が界面に存在する場合、鎖分子を一つ一つ厳密に計算するためには膨大な計算時間と費用が必要になることと、介在している膜とバルクとの相互バランスにより、界面で発生する挙動は複雑になると考えられ、できるだけ簡単なモデルが必要である。

2・5 温度計算方法 今回の計算では原子の変形時における挙動が激しく系の温度の上昇が大きいいため、すべての計算過程で温度を一定にするため速度スケールリングを用いることにより、原子速度を制御して温度をコントロールする⁽²⁾。

3. 計算結果と考察

まず、計算の流れを以下説明する。

(1) 初期条件としては、各原子の速度に、所定温度の Maxwell 分布に従う平衡状態の速度を与える。各原子の初期座標には格子点位置を与える。また、押付け荷重を発生させるために、 $k=16$ の最上層の変位

を与える。

(2) (1)の状態である一定期間押付け荷重を一定に保ったまま、系の温度が所定温度になるように各原子の速度を速度スケールリングする。

(3) (2)の期間が終了後、上側金属をすべり方向へ一定変位 Δy だけ時間ステップ Δt ごとにすべらせる。速度スケールリングは全計算プロセスで行う。

計算における単位時間ステップは $\Delta t = 0.005$ ps である。時間 t は $t = n\Delta t$ となる。 n は計算ステップとなり、本計算では、上述の(2)の期間を $n=0 \sim 8000$ step、(3)の期間を $n=8001 \sim 12000$ step と設定す

Fig. 5 Simulation results ($T = 100$ K)

Fig. 4 Virtual potentials

Fig. 6 Simulation results ($T = 500$ K)

る。全押付け荷重 w の計算は以下のように考える。 z 方向に固定されている $k=16$ の最上層の各 i 原子に作用している力 F_i の z 方向成分を F_{iz} とする。このとき、接触面に作用する全押付け荷重 w は

$$w = \sum_i^{N_{16}} F_{iz} \quad (2)$$

となる。また、摩擦係数 μ は $k=16$ の最上層の各 i 原子に作用している力 F_i の y 方向成分を F_{iy} として、式(3)のように求められる。

ただし、 N_{16} は $k=16$ の層に含まれる原子の個数を示す。 μ は正負の値をもつ。

$$\mu = \frac{\sum_i^{N_{16}} F_{iy}}{\sum_i^{N_{16}} F_{iz}} \quad (3)$$

Fig. 7 Film thickness vs. potential depth at same load

Fig. 8 Diffusion parameter for each layer

3・1 温度の影響 今回の計算では $F_0 = 7.44 \times 10^{-7}$ N を基準の力として計算を進める。 F_0 により無次元化された荷重を $\bar{w} (= w/F_0)$ とする。すべり速度は $v_p = 200$ m/s とする。図5, 6には $T = 100$ K と 500 K での各計算ステップにおける変形形態を示す。厚さ l_f を 8 層とし、ポテンシャル条件を $\Phi_{mi} = \Phi_1$, $\Phi_{lm} = \Phi_1$, $\Phi_{il} = \Phi_2$ とする。荷重は $\bar{w} = 0.04$ とする。両者とも薄膜と金属の界面における原子配列の乱れが原因となり、上側バルク内に破壊を生じさせていることが観察されるが、 $T = 100$ K では脆性的な割れが発生し、 $T = 500$ K では反対に延性的な $[110]$ 方向のすべりを伴う破壊が見られる。すなわち、バルクの破壊形態に対する温度の影響は一般的に言われている傾向を示すが、変形の芽は界面の乱れと言える。この場合、膜の動きは後の図15に見られるように、両者ともに同程度であると考えられる。

3・2 薄膜原子間結合力の違いによる影響 薄膜とバルク間の結合力は一定にして、薄膜原子の結合力が変化した場合を考える。厚さ l_f を 8 層とし、ポテンシャル条件を $\Phi_{mi} = \Phi_1$, $\Phi_{lm} = \Phi_1$, $\Phi_{il} = \Phi_i$ ($i=1, 2, 3$) とする。100 K 条件で荷重は $\bar{w} = 0.04$ とする。まず、膜特性を見るために、同じ荷重に対して、結合力を表すポテンシャル深さ Φ_{110} と膜厚の関係を図7に示す。図8には横軸に層番号 k 、縦軸に各層の移動性パラメータ $D(k)$ を取り、膜の移動しやすさの分布を示す。各結合力でのすべり後 20 ps における変形形態を図9に示す。これらより、膜厚は同じ荷重に対し、結合力の減少により薄くなることがわかる。また、膜の結合力が増加するに従い膜の移動性が小さくなるとバルク内の変形、破壊の度合いが激しくなることがわかる。さらに、膜の結合力が弱い場合でも原子が界面に不規則なクラスタを形成してしまい、それが原因でバルク内に掘り起こしが発生することが $\Phi_{11} = \Phi_3$ の結果よりわかる。

3・3 界面原子間結合力の違いによる影響 図10,

Fig. 9 Atomic configurations at various potential depth

11にはポテンシャル条件を(a) $\Phi_{ml} = \Phi_1$, $\Phi_{lm} = \Phi_1$, $\Phi_{ll} = \Phi_2$, (b) $\Phi_{ml} = \Phi_2$, $\Phi_{lm} = \Phi_2$, $\Phi_{ll} = \Phi_1$ とし、すべり後 20 ps での界面原子状態を示す。膜厚は $t_l = 8$ とする。系の温度は速度スケールによりほぼ一定に保たれ、(1)約 $T = 100$ K, (2)約 $T = 300$ K, (3)約 $T = 500$ K とする。この図よりわかることは、(1)ポテンシャル条件(a)では温度の増加とともに上側 α -Fe バルクの変形形態は、45 度方向の割れが示す脆性的なものから、 $[1\bar{1}0]$, $[110]$ 方向の原子間すべりに見られる延性的なものに変化するのに対して、条件(b)では低温でも延性的な形態がおもに見られる、(2)ポテンシャル条件(b)では条件(a)に比べ、下側バルク内にも原子配列の乱れが多く見られる(図中 F_1 , F_2 の箇所)、(3)変形、破壊はおもに上側 α -Fe バルクで発生している、(4)薄膜とバルクの界面は上側

Fig. 10 Simulation results
 ($\Phi_{ml} = \Phi_1$, $\Phi_{ll} = \Phi_2$, $\Phi_{lm} = \Phi_1$)

Fig. 11 Simulation results
 ($\Phi_{ml} = \Phi_2$, $\Phi_{ll} = \Phi_1$, $\Phi_{lm} = \Phi_2$)

バルク側が大きく乱れている、などである。基本的に上側 α -Fe バルクが変形しやすい理由は、上側バルク側の薄膜部分が初期の段階で薄膜単独で安定な構造になり、上側バルクの結晶配列とは違うためと考えられる。図 12 には図 10, 11 に対応した薄膜の動きを示すために、移動性パラメータ $D(k)$ を示す。これより、(1)ポテンシャル条件(b)では $T = 300$ K のときだけ膜の動きが悪く、その場合下側バルクには損傷がない、(2)条件(a)では条件(b)に比べ膜が動きやすく膜が層状にすべっており、下側バルク側の薄膜はほとんど動かないことがわかる。すなわち、下側バルクが損傷しやすいのは膜全体が動きやすく下側バルクと薄膜間にすべりがある場合 [$D(6)$ が大きい] であることが推察される。これは、バルクの変形形態が薄膜の動きとバランスをとりながら決定されることを意味する。

3.4 薄膜厚の影響 薄膜厚さ t_l が 4 層と 8 層の場合について計算した結果について述べる。図 13 は $t_l = 4$ での各荷重条件 $\bar{w} = 0.04, 0.06$ と温度条件 $T = 100$

Fig. 12 Diffusion parameter for each layers

Fig. 13 Atomic configuration ($t_l = 4$)
 ($\Phi_{ml} = \Phi_1$, $\Phi_{ll} = \Phi_2$, $\Phi_{lm} = \Phi_1$)

K, 500 K での原子状態図を示す。図 14 には $t_l=8$ での各荷重条件 $\bar{w}=0.04, 0.06$ で温度条件 $T=500$ K の結果を示す ($T=100$ K の結果は図 10 を参考とする)。ポテンシャル条件は $\Phi_{ml}, \Phi_{lm}=\Phi_1, \Phi_{ll}=\Phi_2$ とする。図より、界面の変形形態において、荷重条件の違いに対しては面白い傾向が見られる。すなわち、厚さ t_l が 8 層の場合に顕著であった $\bar{w}=0.04$ と 0.06 における温度依存の変形形態の違いが 4 層の場合に差がなくなっていることである。 $\bar{w}=0.04$ では低温のほうでもバルクの原子間すべりが多数発生している。この原因としては、薄膜の動きやすさが大きく影響していると考えられる。図 15 は t_l が 4 層での各 D と、比較のために同条件での 8 層の D を示す。図 15 の $t_l=4$ の結果より、膜厚が薄い場合、 $\bar{w}=0.04$ では低温で薄膜はほとんど動かず高温では動きがよくなっているが、 $\bar{w}=0.06$ では低温、高温ともに薄膜は動いていないことがわかる。したがって、 $\bar{w}=0.06$ では温度の影響がバルク側に集中するのに対し、 $\bar{w}=0.04$ では温度による薄膜動きやすさの変化による抵抗変化が支配的であると考えられる。また、膜厚が薄いと膜厚が厚い場合に比べ界面の乱れ、特に下側バルク界面の乱れが大きくなっている。さらに、前記図 10 と図 13 の結果を比べると、バルク内の割れは低温 ($T=100$ K) で、特に膜厚が厚いときに多く発生することがわかる。これは、膜厚が厚い場合、上側バルク側の移動する膜の動きが不連続に

Fig. 14 Atomic configuration ($t_l=8, T=500$ K)
($\Phi_{ml}=\Phi_1, \Phi_{ll}=\Phi_2, \Phi_{lm}=\Phi_1$)

Fig. 15 Diffusion parameter
($\Phi_{ml}=\Phi_1, \Phi_{ll}=\Phi_2, \Phi_{lm}=\Phi_1$)

すべりやすいことに起因すると考えられ、この挙動は計算結果のアニメーションより観察された。

3・5 温度依存性の現象論的考察 界面には以上述べたようなシミュレーションから、種々のパターンの変形形態の現れることがわかる。そこで、ここでは温度に対し統一的に摩擦現象を記述する可能性を現象論的に検討する。

バルクや薄膜内の数か所で原子間ですべりなどが発生する過程をアレーニウスの速度過程論であると考え、一つの原子が原子間のポテンシャル U_0 (活性化エネルギー) を乗り越える確率 r は

$$r = A \exp[-U_0/k_B T] \quad (4)$$

となる。ここで k_B は Boltzmann 定数、さらに、確率 r が小さい場合、接触面の原子群が相手面の原子群を乗り越えるのに時間を要し、乗り越えるまでの抵抗力、すなわち摩擦力は大きくなることが予測される。したがって、摩擦係数 μ は確率 r に反比例すると仮定すると摩擦係数 μ と温度 T の関係は

$$\mu = B \exp[U_0/k_B T] \quad (5)$$

となる。ここで、計算された摩擦係数と原子の動きから図 16 に示されているような原子間すべりが明確に生じて摩擦係数が減少する計算ステップ n_i を探索す

Fig. 16 Friction coefficient as a function of time

Fig. 17 Coefficient of friction at sudden drop point as a function of time

る。図 17 には、3・3 節のポテンシャル条件(a)において、摩擦係数の減少が発生した時間ステップを横軸に、摩擦係数が減少する前の μ 値を縦軸にとり $\bar{w}=0.04$ の場合に対し示す。図 17 から低温の場合、摩擦係数の急激な減少が生じるまでに要する計算ステップは高温時に比べ大きくなり、摩擦係数値も大きくなっていることがわかる(特に、最初の静摩擦的なすべりは大きい)。また、摩擦係数値にはバラツキが多く、特にバラツキの程度は高温のほうが大きくなっている。これらのデータをもとに、すべりが発生する直前の摩擦係数値と T^{-1} の関係を二つのポテンシャル条件でアレーニウスプロットしたものを図 18, 19 に示す。ここで、条件(a)が図 18、条件(b)が図 19 に対応する。図 18, 19 から、膜内の結合力が小さい条件(a)では膜移動性が温度の増加とともによくなり、摩擦係数平均値の対数 $\ln(\mu)$ はほぼ T^{-1} と直線関係にあることがわかる。さらに、直線のこう配は膜厚が薄くなるに従い、減少する傾向を示す。膜内の結合力が大きい条件(b)はこれに従わない。従わない理由には、前述した $T=300$ K 付近の膜移動性の悪さが考えられる。したがって、膜移動性の違いが摩擦係数の値に影響を与え、アレーニウスプロットによりこの違いを検出することが可能となる。すなわち、いくつかの温度領域ごとにアレーニウスカーブで表現できることになる。これは、多層で種々のすべりや変形パターンが存在するにもかかわらず、アレーニウス速度過程により摩擦界面挙動の温度依存性を定性的に記述できる可能性が示唆されたことを示す。

4. 結 論

各界面間には仮想的な二体間ポテンシャルを仮定し、数原子層の厚みをもつ薄膜が α -鉄(bcc 構造)の金属表面にサンドイッチされた摩擦界面で発生する原子レベル摩擦・摩耗挙動を分子動力学を用いてシミュレーションを行い、次のような結果を得た。

(1) 界面で発生するバルク側の変形モードは、膜の動きやすさに大きく左右される。

(2) 膜の動きやすさや膜厚の違いによる平均摩擦係数の温度依存性の変化はアレーニウスプロットによ

Fig. 18 Arrhenius plot of coefficient of friction

Fig. 19 Arrhenius plot of coefficient of friction

り定性的に記述できる。

(3) 膜と金属の界面の凹凸は膜厚が薄い場合に大きく、バルク内の割れは膜厚が厚い場合に大きくなる傾向がある。

(4) バルクの変形に対する温度の影響は、膜厚の減少により鈍くなる傾向がある。

(5) 膜の原子間結合力が小さくても、界面の不規則なクラスタを形成することによりバルクの破壊を誘発する。

文 献

- (1) Michelle, L. G., Petricia, M. M. and Israelachvili, J. N., *J. Chem. Phys.*, **93**(1990), 1895-1906.
- (2) 佐々木直哉・ほか 3 名, 機論, **60**-575, A(1994), 1682-1689.
- (3) Landman, U., Luedke, W. D., Burnham, N. A. and Colton, R. J., *Science*, **248**(1991), 454-461.
- (4) 大村悦三・ほか 3 名, 日本潤滑学会トライボロジー会議予稿集, **7**(1993-5), 81-84.
- (5) Nieminen, J. A., Sutton, A. P., Pethica, J. B. and Kaski, K., *Modelling Simul. Mater. Sci. Eng.*, **1**(1992), 83-90.
- (6) Beeler, J. R. Jr., *Radiation Effects Computer Experiments*, (1982), 128-129, North Holland Publications.