

報告番号	※ 甲 第 10605 号
------	---------------

主 論 文 の 要 旨

論文題目 粗視化分子動力学シミュレーションを用いたナノ厚さ液体潤滑膜のせん断・凝着特性解析に関する研究

氏 名 福田 基雄

論 文 内 容 の 要 旨

本研究では、次世代磁気ディスク装置における潤滑技術の確立のために、ナノ摺動すき間における perfluoropolyether (PFPE) 液体潤滑膜を対象とした粗視化分子動力学シミュレーション方法を開発し、固体表面間に閉じ込められたナノ厚さ液体潤滑膜のせん断・凝着特性を解明することを目的としている。

磁気ディスク装置において、記録密度向上のために、磁気情報を読み書きするヘッドと磁気情報を記録するディスク間のすき間を狭小化する必要がある。現在では、すき間は3 nm程度に達している。浮上すき間の狭小化に伴い、ヘッドとディスクの接触頻度が増加している。ヘッドとディスクの損傷を防止するため、ディスクには厚さ1~2 nmの液体潤滑膜が塗布されているが、ヘッドとディスクの接触時に発生するせん断力と凝着力は、ヘッドの浮上安定性に悪影響を及ぼす。このように、ナノメートル厚さの液体潤滑膜を介した潤滑技術の確立が必須である。そして、ナノ厚さの薄膜の特性は分子レベルの運動・構造に強く依存し、せん断・凝着特性はバルク状態とは異なる。しかし、実験によりせん断時・接触時のナノ厚さ液体潤滑膜の分子レベルの運動・構造を直接観測することは難しく、メカニズムの解明は十分でない。

実験的に得ることが難しい分子レベルの運動・構造を明らかにするための手法として、分子動力学シミュレーションが広く用いられている。分子動力学シミュレーションでは、運動方程式を数値積分により解くことで、系を構成する各粒子（原子や分子）の位置と速度の時間発展を計算する。ヘッド・ディスクインターフェース (HDI) における潤滑現象は、すき間方向には nm オーダであるが、面内方向には μm オーダの現象であり、このスケールには多数の分子が含まれる。そのため、原子一つ一つの運動を計算する全原子モデルによるシミュレーションでは、膨大な計算コストを必要とする。これに対して粗視化モデルでは、複数の原子の集団を一つのビーズに置き換えることで計算コストを削減する。

本論文では、粗視化分子動力学シミュレーションを用いてナノ厚さ液体潤滑膜のせん断・凝着特性の解析を行った。

粗視化モデルは仮想的なものであり、その分子間相互作用は自明ではない。そのため、実現

象と比較可能なシミュレーション結果を得るためには、粗視化分子間の相互作用ポテンシャルを適切に決定する必要がある。しかし、磁気ディスク装置によく用いられる PFPE 液体膜について、実現象と比較可能な粗視化モデル構築はなされていなかった。粗視化分子間相互作用を決定する代表的な方法として、force matching (FM) 法と iterative Boltzmann inversion (IBI) 法がある。しかし、FM 法や IBI 法では、全原子シミュレーションにより分子の特性を計算し、それを用いて粗視化ポテンシャルを決定する。しかし、FM 法は手順が複雑であり、IBI 法は手順は簡単であるが熱力学条件に対する適用範囲が狭いという問題があった。潤滑現象では、局所的な密度や圧力の分布が発生するため、IBI 法により構築された粗視化モデルは適用困難である。この問題を解決するために、本研究では、IBI 法を改良し、より広い範囲の密度や圧力に適用可能な粗視化モデル構築を、比較的簡単な手順で実行可能な方法を提案した。IBI 法は、全原子シミュレーションによって計算した動径分布関数などの分布関数と、粗視化シミュレーションにより計算した分布が一致するように、粗視化ポテンシャルの繰り返し修正を行う。IBI 法が特定の熱力学条件に依存する原因としては、多体効果の影響がポテンシャルの初期値に含まれ、ポテンシャルの繰り返し修正によっても排除しきれないことが考えられる。そこで、全原子シミュレーションにより得られる分子レベルの構造から、レナード・ジョーンズポテンシャルを基にした多体効果の影響をより排除した初期値を推定する方法を提案するとともに、固体表面上の PFPE 液体膜を対象として高精度な粗視化モデルを構築した。そして、構築したナノ厚さの PFPE 液体膜の粗視化モデルを用いて、せん断・凝着特性の解析を行った。

まず、固体表面に閉じ込められた PFPE 膜について、固体表面のすき間を準静的に変化させた場合の凝着力をシミュレーションした。

ナノすき間に閉じ込められた分子は、運動性が低下することが SFA による実験で確認されている。また、HDI では、潤滑剤分子に極性基を付与することで、固体表面に対する吸着性を強化している。そのため、HDI では、固体表面間のすき間と外部の液体潤滑膜間で、潤滑剤分子の供給・排出が妨げられていると考えられる。そのような系では、潤滑膜の密度が低下することにより凝着力が発生することが、粗視化 MD シミュレーションにより確認されている。しかし、表面張力に基づいた従来の凝着理論は、密度低下など液体膜内部の構造の変化を考慮していなかった。そこで、本研究では、シミュレーションにより得られた液体膜内部の分子レベルの構造から、密度変化を考慮した理論を構築し、凝着特性の解析を行った。また、記録密度向上のために、潤滑膜は今後さらに薄膜化すると考えられるため、凝着特性の膜厚依存性についても検討した。

固体表面間の分離によるすき間の増加に対して、PFPE 膜が固体表面に及ぼす凝着力は最初は増加し、最大値に達した後、徐々に減少した。初期膜厚の増加に対して最大凝着力は急激に減少し、膜厚 4 nm 以上では一定に収束した。最大凝着力は初期膜厚よりも大きなすき間の時に発生し、PFPE 膜は固体表面間で引き伸ばされていることを確認した。また、すき間が PFPE 膜の初期膜厚と同程度の時には、固体表面間の分離に対して、PFPE 膜の密度が低下し、これによる凝着力の変化が得られたが、PFPE 膜の表面積はほぼ一定であった。従来の凝着理論では、表面積が変化しない時には、凝着力は変化しないはずである。従来の凝着理論では密度が変化する系を扱えないため、新たに理論モデルを提案した。本モデルでは、凝着力は固体プローブにより固体基板から PFPE 膜を分離するための分離力項と、

PFPE 膜が引き伸ばされることによる密度の低下に対する凝集力項の二つの項に分けられる。理論により計算した凝着力は、シミュレーション結果とおおよそ一致していた。分離力項は固液間相互作用に、凝集力項は液液間相互作用に基づいており、理論解析の結果から、最大凝着力は薄い膜では固液間相互作用が支配的であり、厚い膜では液液間相互作用が支配的であることを明らかにした。

次に、固体表面で水平方向にせん断した時の PFPE 膜のシミュレーションを行い、せん断特性を解析した。粗視化モデルは、内部の原子レベルの運動を無視しているため、粘性係数や拡散係数といった分子の特性を正しく再現できない場合がある。そのため、熱浴により粘性摩擦力とランダム力を与える必要がある。粘性摩擦力とランダム力を付与する方法として、ブラウン動力学法と散逸粒子 (dissipative particle dynamics : DPD) 法を用いてせん断シミュレーションを行い比較した。ブラウン動力学法は、粒子間の作用反作用の法則を満たさず、運動量を保存しないため、せん断によって生じる流れを再現せず、せん断特性の解析に適用困難であることを確認した。そこで、DPD 法を用いてせん断シミュレーションを行った。特に、固体表面のすき間と固体表面の粗さが、ナノ厚さ液体膜のせん断特性に及ぼす影響について解析した。

すき間 3.80 nm におけるせん断特性の解析では、固体表面に隣接する分子層の影響により、従来実験研究で仮定されてきた線形速度分布とは異なる速度分布が発生することを確認した。また、せん断速度が増加するほど PFPE 膜の層状構造が顕著になり、それによりせん断速度の増加に伴い粘性係数が減少するシェアシンニング特性が現れることを確認した。さらに、表面粗さにより PFPE 膜の層状構造が乱れることで、表面粗さが大きいほど粘性係数が大きくなった。一方、すき間 1.95 nm のせん断特性では、すき間 3.80 nm とは異なる特性を確認した。すき間 3.80 nm では、せん断速度の増加に伴い分子のせん断方向への配向が強くなっていったが、すき間 1.95 nm では配向状態がせん断速度に依存しなかった。また、PFPE 膜の層状構造も、すき間 1.95 nm ではせん断速度に依存せず、シェアシンニング特性の起源がすき間 3.80 nm とは異なることを確認した。この結果は、バルクとは異なる特性を持つナノ厚さ液体膜をさらに薄膜化することで、さらに異なる特性が現れることを示唆している。この特性は、すき間 1.95 nm ではすき間 3.80 nm よりも大きいせん断力を発生させたことから、潤滑膜の薄膜化を必要とする HDD の潤滑設計において不利な特性の可能性もある。そのため、薄膜化による特性の変化のメカニズムを解明することが、次世代 HDD の潤滑設計に必須であることを示した。

以上のように、本論文では、HDD における潤滑技術の確立を旨として、新規に開発した粗視化分子動力学シミュレーションを用いて、ナノ厚さ液体膜の凝着・せん断特性を解析した。本論文により提案した粗視化モデル構築法により、ナノ厚さ液体潤滑膜の高精度な粗視化分子動力学シミュレーションが可能となり、ナノ厚さ液体膜の凝着・せん断特性の解析は、次世代 HDD に用いられる潤滑膜の設計に有用な知見を与えうるものと考えられる。また、粗視化モデル構築法は、分子間相互作用が重要なバイオ・化学分野においても有用であり、ナノ厚さ液体潤滑膜の凝着・せん断特性の解析は、MEMS など微小機械システムにおける潤滑技術の確立にも有用な知見を与えうるものと考えられる。以上のように、本研究の成果は今後様々な分野への展開が期待できる。