

ダイヤモンド型と黒鉛型結晶における
照射損傷シミュレーションのための
分子動力学コード：DGR および GGR

1984年6月

日本原子力研究所

Japan Atomic Energy Research Institute

日本原子力研究所研究成果編集委員会

委員長 森 茂 (理事)

委 員

朝岡 卓見 (原子炉工学部)	下川 純一 (技術情報部)
飯泉 仁 (物理部)	鈴木 伸武 (研究部)
石川 迪夫 (安全解析部)	鈴木 康夫 (大型トカマク開発部)
伊藤 彰彦 (環境安全研究部)	田中 正俊 (核融合研究部)
梅沢 弘一 (企画室)	沼宮内弼雄 (保健物理部)
岡下 宏 (原子炉化学部)	畑田 元義 (大阪支所)
小森 卓二 (原子炉化学部)	半田 宗男 (燃料工学部)
佐藤 一男 (研究炉管理部)	瑞穂 満 (ラジオアイソトープ原子炉研修所)
佐藤 雅幸 (材料試験炉部)	村尾 良夫 (安全工学部)
佐野川好母 (高温工学部)	安野 武彦 (動力炉開発・安全性研究管理部)
鹿園 直基 (物理部)	横田 光雄 (動力試験炉部)
四方 英治 (製造部)	吉田 健三 (開発部)

Japan Atomic Energy Research Institute

Board of Editors

Shigeru Mori (Chief Editor)

Takumi Asaoka	Muneo Handa	Motoyoshi Hatada
Masashi Iizumi	Michio Ishikawa	Akihiko Ito
Takuji Komori	Mitsuru Mizuho	Yoshio Murao
Takao Numakunai	Hiroshi Okashita	Konomo Sanokawa
Kazuo Sato	Masayuki Sato	Eiji Shikata
Naomoto Shikazono	Junichi Shimokawa	Nobutake Suzuki
Yasuo Suzuki	Masatoshi Tanaka	Hirokazu Umezawa
Takehiko Yasuno	Mitsuo Yokota	Kenzo Yoshida

JAERI レポートは、日本原子力研究所が研究成果編集委員会の審査を経て不定期に公刊している研究報告書です。

入手の問い合わせは、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、お申しこしてください。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 reports are reviewed by the Board of Editors and issued irregularly.

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

©Japan Atomic Energy Research Institute, 1984

編集兼発行 日本原子力研究所
印 刷 いばらき印刷(株)

ダイヤモンド型と黒鉛型結晶における照射損傷シミュレーション のための分子動力学コード：DGRおよびGGR

日本原子力研究所東海研究所原子炉工学部

田次 邑吉

1983年10月25日受理

要 旨

ダイヤモンド型結晶および黒鉛型結晶における照射損傷を分子動力学的手法を用いてシミュレートする DGR コードおよび GGR コードを開発した。従来の分子動力学コードと異なる点は、これらの結晶に特徴的な共有結合を考慮するために原子間相互作用として、中心力の他に非中心力も取り入れた事である。従来、欠陥の生じた結晶の安定性は、仮想的に導入した表面力の支えに依存していたが、この非中心力相互作用の効果により、固有の安定性が保存される事が示される。本コードの開発によって、より現実的なシミュレーションが可能になった。ここではこれらのコードの使用法に加えて損傷シミュレーションの 2, 3 の計算例を合わせて示す。

DGR, GGR ; Molecular Dynamical Codes for
Simulating Radiation Damages in Diamond and
Graphite Crystals

Yukichi TAJI

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

Received October 25, 1983

Abstract

Development has been made of molecular dynamical codes DGR and GGR to simulate radiation damages yielded in the diamond and graphite structure crystals, respectively. Though the usual molecular dynamical codes deal only with the central forces as the mutual interactions between atoms, the present codes can take account of noncentral forces to represent the effect of the covalent bonds characteristic of diamond or graphite crystals. It is shown that lattice defects yielded in these crystals are stable by themselves in the present method without any supports of virtual surface forces set on the crystallite surfaces. By this effect the behavior of lattice defects has become possible to be simulated in a more realistic manner. Some examples of the simulation with these codes are shown.

Keywords: Radiation Damage, Molecular Dynamics, Computer Code, Diamond, Graphite, Covalent Bond, Noncentral Force, Vacancy, Simulation

目 次

1. はじめに.....	1	3.2 GGR コードの機能.....	14
1.1 分子動力学的手法.....	2	3.2.1 GGR-Part I	14
2. ダイヤモンド型結晶における分子動力学		3.2.2 GGR-Part II	16
コード : DGR	3	3.3 GGR コードの使用法.....	17
2.1 ダイヤモンド型結晶の分子動力学.....	3	3.4 GGR コードによる計算例.....	19
2.2 DGR コードの機能	4	4. まとめ.....	21
2.2.1 DGR-Part I	5	謝 辞	21
2.2.2 DGR-Part II	6	参考文献.....	22
2.3 DGR コードの使用法.....	7	付 録	23
2.4 DGR コードによる計算例.....	9	A.1 運動方程式の階差化.....	23
3. 黒鉛型結晶における分子動力学コード		A.2 DGR コードのセットアップと入力.....	24
: GGR	13	A.3 GGR コードのセットアップと入力.....	24
3.1 黒鉛型結晶の分子動力学.....	13		

CONTENTS

1. Introduction	1	3.2 Functions of the GGR Code	14
1.1 Molecular Dynamical Method	2	3.2.1 GGR-Part I	14
2. DGR: Molecular Dynamical Code for Diamond Structure Crystals	3	3.2.2 GGR-Part II	16
2.1 Molecular Dynamics for Diamond Structure Crystals	3	3.3 Input Preparation for GGR	17
2.2 Functions of the DGR Code	4	3.4 Examples of Calculation by the GGR Code	19
2.2.1 DGR-Part I	5	4. Concluding Remarks	21
2.2.2 DGR-Part II	6	Acknowledgments	21
2.3 Input Preparation for DGR	7	References	22
2.4 Examples of Calculation by the DGR Code	9	Appendix	23
3. GGR: Molecular Dynamical Code for Graphite Crystal	13	A.1 Finite Difference Procedure to Solve Equations of Motion	23
3.1 Molecular Dynamics for Graphite Crystal	13	A.2 Card Setup and Inputs for DGR Code	24
		A.3 Card Setup and Inputs for GGR Code	24

1. はじめに

結晶中の照射損傷を分子動力学的手法によりシミュレートする計算機コードの開発について報告する。扱う結晶はダイヤモンド型結晶と黒鉛型結晶である。面心および体心立方晶系の金属結晶を扱う分子動力学コードとしては、GRAPE コード¹⁾がよく知られている。しかし、相互作用は金属結合を対象として中心力相互作用しか扱われていない。ここで報告するコードの最大の特徴は、共有結合の効果を考慮できるように、原子間相互作用として中心力に加えて非中心力相互作用も扱えるようにした事である。これにより、より現実的な照射損傷のシミュレーションができるようになった。

固体材料が高エネルギーの放射線にさらされた時、固体の原子は種々の核反応や電子的な反応を受けて、ある閾値以上のエネルギーを受けた原子はその平衡位置からはじき出される。この一次はじき出し原子(PKA = primary knock-on atom)は、固体材料内の他の原子との非弾性衝突によりエネルギーを消費するか、あるいは弾性衝突により他の原子にエネルギーを与えてはじき出しカスケードを発生させる。このようにして生じた一次的な損傷はそのままでは安定であり得ず、はじき出された原子が空孔へもどって損傷を回復させたりして、より安定な形に急速にあるいはゆっくりと焼鈍して行くものと考えられる。これらすべての過程を実際の照射条件を想定してシミュレートする事は現段階では不可能であるが、ある段階まではかなり良くシミュレートできるようになった。

原子炉や核融合炉の材料においては、種々の放射線が同時に作用すると共に、線源が空間的にもエネルギー的にも分布しているため、はじき出し原子の個数分布や発熱分布等の巨視的な量が損傷の第1の目安になる。中性子やガンマ線により照射された場合、これらの量は Lindhard モデルにより SUPERTOG-JR²⁾で作成される損傷断面積や発熱定数を、その体系での中性子束やガンマ線束に掛け合せて得られる。電子線照射の場合は³⁾、電子線輸送コード、ETRAN⁴⁾により解析できる。高エネルギーのイオンで照射される場合、固体中の発熱分布については、LSS 理論⁵⁾(無限系における輸送理論と同等²⁹⁾)に基づく Brice のコード⁶⁾や Winterbon の方法⁷⁾により解析できる。

一方、上記のような巨視的な追求の他に、微視的な特定の PKA やイオンが外部から打込まれた場合、固体内の原子配列がどのように乱されるかを微視的にシミュレートする事は、放射線損傷を基本的に理解するために重要

である。この固体内原子の動力学シミュレーションは第1次損傷の生成過程のみならず、損傷の焼鈍過程の理解にも役立つ。結晶内のある原子がエネルギーを得て格子点よりはじき出される時、その原子は付近の多数の原子と直接あるいは、間接的に相互作用する。従って、原子配列の乱れをシミュレートするには多体問題を解かねばならない。GRAPE コードを源流とする一連の研究はこの観点に立っている。しかし、PKA の入射エネルギーが1原子をはじき出すのに必要な最小のエネルギー(= はじき出し閾エネルギー)に比して十分に大きい場合は、原子の相互作用半径は固体中の原子間距離に比してはるかに小さくなり、2体間衝突のみを考慮することでよい近似となる。この2体衝突近似により、はじき出しカスケードを解析して行く手法は Beeler & Besco³¹⁾および Robinson & Oen³²⁾らにより始められた。この手法は、PKA のエネルギーが大きい限り厳密な手法である。この2体衝突法によるシミュレーション・コードとしては、CASCADE/CLUSTERコード⁸⁾が Besco & Baumgardt により、また、MARLOWE コード⁹⁾が Robinson & Torrens により開発されている。しかし PKA のエネルギーが減衰して相互作用半径が大きくなってくると、多体間相互作用を無視し得なくなる。そこで、2体衝突近似で得られた一次損傷の空間分布を補正するために、格子間原子が空格子と自発的に再結合する領域をあらかじめ分子動力学的手法により計算しておいて、この領域内に停った格子間原子は自発的に再結合させる手法が提案されている。このためのコードとして CLUSTER コードや DAIQURI コード¹⁰⁾が報告されている。

このような自発的再結合を免れた欠陥はさらに多体間相互作用としての熱的な揺動を受ける。この揺動が欠陥の移動エネルギーよりも大きい場合は、欠陥は隣の安定点へ移動するというように酔歩して行き、上記の自発的再結合の領域に入ったものは消滅し、また、ある者は他の欠陥と合体して成長する。上記の DAIQURI コードはこのような焼鈍回復を酔歩問題の手法で扱っている。酔歩させる欠陥は格子間原子、2格子間原子、空孔および2空孔である。各欠陥の移動エネルギーは分子動力学的手法であらかじめ計算しておかなければならない。Asaoka ら¹¹⁾は2体衝突近似によるはじき出しシミュレーション・コードとこのような焼鈍コードを結合し、重照射の場合の損傷をシミュレートするコード・システムを開発している。

損傷の微視的なシミュレーション手法として、2体衝

突近似法は分子動力学的手法では扱い得ないような高エネルギーの入射粒子の場合には大変有効であると言えよう。しかし、多体間相互作用の効果が重要になるはじき出しの閾エネルギーの付近での損傷や、あるいは、欠陥の酔歩問題で必要となる移動エネルギーの計算等には分子動力学的手法は欠く事のできない手法である。

1.1 分子動力学的手法

多数の粒子の運動を古典力学によりシミュレートする分子動力学的手法は大型計算機の出現により可能となり、最初に日本で研究が行われた¹²⁾。しかし、結晶を模擬した格子を組んで大規模な計算を行ったのは Gibson, Vineyard, Erginsoy ら^{13,14)}が最初であった。彼らの仕事が画期的であったのは、以前には固体中の欠陥は連続的な弾性体の歪みとして扱われてきたのに対して、結晶内の原子配列の乱れそのものから説明した事である。また、粒子からなる格子を組んだ結果として、チャンネルングやフォークシングといった新しい現象を見出した事であった。この分子動力学的手法は、点欠陥のみならず、転位芯のシミュレーションにも応用されている。これについては Yamaguchi の解説¹⁵⁾がある。また、この手法は固体に対してのみならず、液体や気体の分子運動論に対しても広く応用されている。ここでの我々の目的は、分子動力学的手法に非中心力相互作用を導入する事であるが、そのために、先ず中心力を扱う従来の分子動力学的手法について概説する。

結晶を模擬するために、古典粒子を組んだ格子を考える。原子の数を N とし、時刻 t における i 番目の原子の位置ベクトルを $\mathbf{r}_i(t)$ 、速度ベクトルを $\mathbf{v}_i(t)$ とすると、運動方程式は一般に次のように書ける。

$$m\dot{\mathbf{v}}_i(t) = \mathbf{F}_i(\mathbf{r}_1(t), \dots, \mathbf{r}_N(t)), \quad i=1, \dots, N, \quad (1.1)$$

$$\dot{\mathbf{r}}_i(t) = \mathbf{v}_i(t), \quad i=1, \dots, N, \quad (1.2)$$

ここで、 m は粒子の質量であり、 \mathbf{F}_i は i 番目の原子に働く力である。(1.1)式と(1.2)式について時間積分をするため、階差方程式に近似する。階差化の手法は Gibson ら¹³⁾のものと同様であるが、ここでは非中心力相互作用の場合にも適用するので念のため付録(A)にまとめておく。中心力ポテンシャルを V とすると、 i 原子に対する位置エネルギーは次のように書ける。

$$U_i = \sum_{j=1}^J V(r_{ij}), \quad (1.3)$$

ここで、 $r_{ij} = |\mathbf{r}_{ij}| = |\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|$ であり、 J は相互作用の範囲内にある原子数を表わす。この時、 \mathbf{F}_i は次のように表わされる。

$$\begin{aligned} \mathbf{F}_i &= -\frac{\partial U_i}{\partial \mathbf{r}_i} = -\sum_{j=1}^J \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}_i} V(r_{ij}) \\ &= -\sum_{j=1}^J \frac{dV(r_{ij})}{dr_{ij}} \frac{\mathbf{r}_{ij}}{r_{ij}}. \end{aligned} \quad (1.4)$$

各原子の位置 $\mathbf{r}_j(t)$ が決まれば、(1.4)式により \mathbf{F}_i が定まり、更に、(1.1)と(1.2)式より各原子の軌道が決まる。しかし、注意しなければならない事は、ポテンシャル関数 $V(r_{ij})$ は単に2体間の距離 r_{ij} の関数であるけれども、結晶内では多数の原子が同時に相互作用しているという事である。そして、そのような原子の集団はどの領域をとっても安定性がなければならないという事から、次のような Born の条件¹⁶⁾が満たされる事が要請される。

$$\frac{\partial}{\partial l} \sum_{i=1}^N \sum_{j=1}^J V(r_{ij}) = 0 \quad \text{for } l=l_0, \quad (1.5)$$

ここで、 J は i 原子が相互作用する半径 l_0 の領域にある原子を示す。更に、ポテンシャル関数は(1.5)式のような条件の他に、巨視的な弾性定数^{13,14)}を再現する事も要請される。実際のシミュレーションで扱われる粒子数は高々数千個であり、また、欠陥により対称性が失われるため、(1.5)式を満たすことは困難である。それで通常は結晶の表面に適当な表面力を仮定して格子を支えている。(1.5)式の相互作用半径 l_0 は、面心立方晶系では第1隣接原子まで、体心立方晶系では第2隣接原子までとるのが普通であるが、巨視量を考慮してもっと範囲を広げる場合もある。結局、分子動力学的手法の弱点は、ポテンシャル関数の形とその作用範囲をどのようにして決めるか明確でない点であると言えよう。以下では分子動力学的手法に中心力の他に、非中心力を導入する。その結果として、後に2.4節に述べるように、非中心力相互作用は対称性を欠いた結晶においても、結晶の安定性に重要な寄与をする事が解明される。こうして、非中心力の導入は分子動力学的手法の弱点を側面から補うことになる。非中心力相互作用の代表的な例として共有結合を扱い、第2章ではダイヤモンド型結晶の場合、第3章では黒鉛型結晶の場合の分子動力学的手法とそのプログラムについて説明する。

2. ダイヤモンド型結晶における 分子動力学コード：DGR

ダイヤモンド型結晶に属する固体としては、金剛石の他に、シリコン、ゲルマニウム、それにスズ(灰色)が知られており、Fig. 1のような四面体配位をしている。これ他に硫化カドミウムの結晶も四面体配位をしている。これらの結晶は半導体素子や放射線検出器として重要な役割を果たしているが、非中心力が顕著なために分子動力学シミュレーションが行なわれた例は報告されていない。ただし、アモルファス半導体の特性解析のため、非中心力相互作用を考慮した変分法的なシミュレーション^{17,18)}の例はある。非中心力は、原子の結合手が共有結合により強い指向性を持つために生ずる¹⁹⁾。シリコン等の4価元素は100%共有結合であり、2元合金では50%位は共有的であり、食塩などでは10%以下しかないが、金属などでも数割は共有結合しているものと考えられている。本章ではダイヤモンド型結晶における分子動力学コード：DGR(DIAMOND GRAPEの略)について説明する。

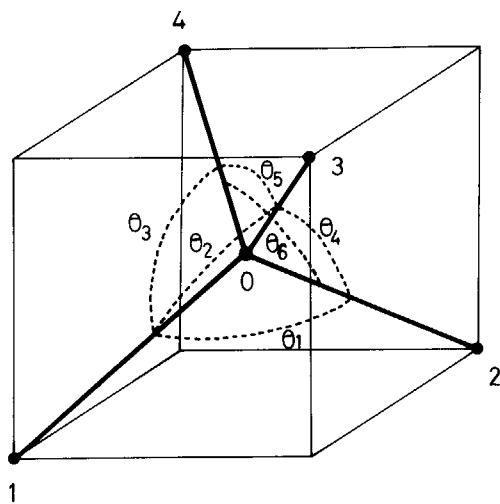


Fig. 1 Tetrahedral unit cell of diamond crystals. The force acting on the 0-th atom is determined by the four atoms surrounding the 0-th atom.

2.1 ダイヤモンド型結晶の分子動力学

中心力相互作用の場合は、(1.3)式のようにポテンシャル関数は原子間距離のみに依存していたが、非中心力相互作用の場合はボンドの曲りにも依存する。このボンドの曲りの判定は他の原子の方位を基準にするために1個

の原子に働く力は系全体の配位に関係してくる。ここでは完全なダイヤモンド晶系を基準にして、その原子配列からのずれを扱う。原子に働く力は、Fig. 1のようにその原子を囲む四面体配位を考え、周辺の4ケの原子による効果を同時に計算して求める。しかし全体として四面体配位からの歪みが大きい場合には、例えば、非晶質半導体のような場合は1ケの原子に働く力を計算するにしても広い範囲の歪みが関係しており、原子を個別に扱う分子動力学的手法には限界があり、扱う物理量に適合した他の手法が必要かもしれない。ここでは結晶の歪みはそれ程大きくなく、四面体配位の歪みの重ね合わせで表現できるものと仮定する。

Fig. 1の第0原子の位置を r_0 とし、周辺の原子の位置を $r_i (i=1, \dots, 4)$ とすると、第0原子の周辺の原子に対する位置エネルギー U は次のような和で表わされる。

$$U(r_0/r_1, r_2, r_3, r_4) = \sum_{i=1}^4 U_i, \quad (2.1)$$

$$U_1 = V(r_{01}) \phi(\theta_1) \phi(\theta_2) \phi(\theta_3), \quad (2.2)$$

$$U_2 = V(r_{02}) \phi(\theta_1) \phi(\theta_4) \phi(\theta_6), \quad (2.3)$$

$$U_3 = V(r_{03}) \phi(\theta_2) \phi(\theta_4) \phi(\theta_5), \quad (2.4)$$

$$U_4 = V(r_{04}) \phi(\theta_3) \phi(\theta_5) \phi(\theta_6). \quad (2.5)$$

上式において、 $r_{0i} = |\mathbf{r}_{0i}| = |\mathbf{r}_0 - \mathbf{r}_i|$ ($i=1, \dots, 4$)である。また θ_i はFig. 1のようにボンド間の角であり例えば θ_1 は次のような関係式から定まる。

$$\mathbf{r}_{01} \cdot \mathbf{r}_{02} = r_{01} r_{02} \cos \theta_1. \quad (2.6)$$

(2.2~5)式において、 V はボンドの長さに依存したポテンシャル関数で中心力相互作用に対応しており、 ϕ はボンドの曲りに依存する位置エネルギーの変化を表し、平衡角 $\theta_0 = 109.47^\circ$ では $\phi(\theta_0) = 1$ 、他の角度では $0 < \phi < 1$ とする。従って、四面体配位の中央部の第0原子に働く力 \mathbf{F}_0 は次式で示される。

$$\mathbf{F}_0 = -\frac{\partial U}{\partial \mathbf{r}_0} = -\sum_{i=1}^4 \frac{\partial U_i}{\partial \mathbf{r}_0}. \quad (2.7)$$

(2.7)式の右辺の第一項だけを示すと次のようになる。

$$\begin{aligned} & \frac{\partial U_i}{\partial \mathbf{r}_0} - \frac{\partial V(\mathbf{r}_{01})}{\partial \mathbf{r}_0} \phi(\theta_1) \phi(\theta_2) \phi(\theta_3) \\ & + V(\mathbf{r}_{01}) \frac{\partial \phi(\theta_1)}{\partial \mathbf{r}_0} \phi(\theta_2) \phi(\theta_3) \\ & + V(\mathbf{r}_{01}) \phi(\theta_1) \frac{\partial \phi(\theta_2)}{\partial \mathbf{r}_0} \phi(\theta_3) \\ & + V(\mathbf{r}_{01}) \phi(\theta_1) \phi(\theta_2) \frac{\partial \phi(\theta_3)}{\partial \mathbf{r}_0} . \quad (2.8) \end{aligned}$$

(2.8)式の右辺第一項の微係数は中心力相互作用の場合と同様に(1.4)式のように表現され、 ϕ についての微係数は(2.6)式を考慮して次のように求まる。

$$\begin{aligned} \frac{\partial \phi(\theta_1)}{\partial \mathbf{r}_0} &= \left[-\frac{1}{r_{01}} \frac{\mathbf{r}_{01} \times (\mathbf{r}_{01} \times \mathbf{r}_{02})}{|\mathbf{r}_{01} \times (\mathbf{r}_{01} \times \mathbf{r}_{02})|} \right. \\ & \quad \left. - \frac{1}{r_{02}} \frac{\mathbf{r}_{02} \times (\mathbf{r}_{02} \times \mathbf{r}_{01})}{|\mathbf{r}_{02} \times (\mathbf{r}_{02} \times \mathbf{r}_{01})|} \right] \frac{d\phi(\theta_1)}{d\theta_1} \\ &= \left[\frac{\mathbf{r}_{01}}{r_{01}} \left(\frac{1}{r_{02}} - \frac{\cos\theta_1}{r_{01}} \right) + \frac{\mathbf{r}_{02}}{r_{02}} \left(\frac{1}{r_{01}} \right. \right. \\ & \quad \left. \left. - \frac{\cos\theta_1}{r_{02}} \right) \right] \frac{1}{\sin\theta_1} \frac{d\phi(\theta_1)}{d\theta_1} , \quad (2.9) \end{aligned}$$

$$\frac{\partial \phi(\theta_2)}{\partial \mathbf{r}_0} = \left[\frac{\mathbf{r}_{01}}{r_{01}} \left(\frac{1}{r_{03}} - \frac{\cos\theta_2}{r_{01}} \right) + \frac{\mathbf{r}_{03}}{r_{03}} \left(\frac{1}{r_{01}} \right. \right. \\ \left. \left. - \frac{\cos\theta_2}{r_{03}} \right) \right] \frac{1}{\sin\theta_2} \frac{d\phi(\theta_2)}{d\theta_2} , \quad (2.10)$$

$$\frac{\partial \phi(\theta_3)}{\partial \mathbf{r}_0} = \left[\frac{\mathbf{r}_{01}}{r_{01}} \left(\frac{1}{r_{04}} - \frac{\cos\theta_3}{r_{01}} \right) + \frac{\mathbf{r}_{04}}{r_{04}} \left(\frac{1}{r_{01}} \right. \right. \\ \left. \left. - \frac{\cos\theta_3}{r_{04}} \right) \right] \frac{1}{\sin\theta_3} \frac{d\phi(\theta_3)}{d\theta_3} , \quad (2.11)$$

$$\frac{\partial \phi(\theta_4)}{\partial \mathbf{r}_0} = \left[\frac{\mathbf{r}_{02}}{r_{02}} \left(\frac{1}{r_{03}} - \frac{\cos\theta_4}{r_{02}} \right) + \frac{\mathbf{r}_{03}}{r_{03}} \left(\frac{1}{r_{02}} \right. \right. \\ \left. \left. - \frac{\cos\theta_4}{r_{03}} \right) \right] \frac{1}{\sin\theta_4} \frac{d\phi(\theta_4)}{d\theta_4} , \quad (2.12)$$

$$\frac{\partial \phi(\theta_5)}{\partial \mathbf{r}_0} = \left[\frac{\mathbf{r}_{03}}{r_{03}} \left(\frac{1}{r_{04}} - \frac{\cos\theta_5}{r_{03}} \right) + \frac{\mathbf{r}_{04}}{r_{04}} \left(\frac{1}{r_{03}} \right. \right. \\ \left. \left. - \frac{\cos\theta_5}{r_{04}} \right) \right] \frac{1}{\sin\theta_5} \frac{d\phi(\theta_5)}{d\theta_5} , \quad (2.13)$$

$$\frac{\partial \phi(\theta_6)}{\partial \mathbf{r}_0} = \left[\frac{\mathbf{r}_{02}}{r_{02}} \left(\frac{1}{r_{04}} - \frac{\cos\theta_6}{r_{02}} \right) + \frac{\mathbf{r}_{04}}{r_{04}} \left(\frac{1}{r_{02}} \right. \right. \\ \left. \left. - \frac{\cos\theta_6}{r_{04}} \right) \right] \frac{1}{\sin\theta_6} \frac{d\phi(\theta_6)}{d\theta_6} . \quad (2.14)$$

数値計算においては、 dV/dr_{0j} や $d\phi/d\theta_j$ は数値テーブルとして、 V や ϕ のテーブルと共に与えられる。このように第0原子に対する力が決まると次のような運動方程式によって第0原子の軌道が定まる。

$$m \frac{d\mathbf{v}_0}{dt} = \mathbf{F}_0 + \mathbf{F}_s, \quad \frac{d\mathbf{r}_0}{dt} = \mathbf{v}_0, \quad (2.15)$$

ここで、 \mathbf{v}_0 は第0原子の速度であり、 \mathbf{F}_s は原子が結晶の

表面にある場合の表面力である。結晶の中のすべての原子はこのようにして四面体配位において力を受ける。力が定めれば、(2.15)式を付録1に示したように階差化して解く事により全粒子の軌道を求める事ができる。

次に、(2.2~5)式における V と ϕ の具体的な決め方を述べる。ここでは Keating²⁰⁾により提案された歪みエネルギーのポテンシャル関数を利用して V と ϕ を決める。ダイヤモンド結晶における四面体配位がわずかに変化した時、その全歪みエネルギーは結晶の回転と平行移動に独立であるように次のように表現される。

$$\begin{aligned} K.P. &= \frac{1}{2} \sum_0 \left[\frac{3\alpha}{16d^2} \sum_{i=1}^4 (r_{0i}^2 - d^2)^2 \right. \\ & \quad \left. + \frac{3\beta}{8d^2} \sum_{i<j}^4 (\mathbf{r}_{0i} \cdot \mathbf{r}_{0j} + \frac{d^2}{3})^2 \right], \quad (2.16) \end{aligned}$$

ここで、 \sum_0 は結晶内のすべての原子について和をとる事を表わし、 i と j は各原子の周辺の4個の原子を表わす。また α と β はボンドの伸縮と曲りの力に対する係数であり d は最近接距離を表わす(ここでは格子単位は $2a$ としているので $d = \sqrt{3} a/2$ となる)。この(2.16)式の歪みエネルギーを(2.2~5)式のポテンシャル関数の形式に表現するには、すなわち、伸張部分と変角部分を変数分離できるためには平衡からの高次の歪み $(\delta r_{0i})^3 = (r_{0i} - d)^3$ が無視できればよい。それで、歪みはそれ程大きくないと仮定し、更に、平衡なボンドを切断するのに要するエネルギー D を導入すると、 V と ϕ は次のように表わせる。

$$V(r) = -D + \frac{3\alpha}{4}(r-d)^2, \quad (2.17)$$

$$\begin{aligned} \phi(\theta) &= 1 - \frac{3\beta}{16D} d^2 \left(\cos\theta + \frac{1}{3} \right)^2 \\ &\cong 1 - \frac{3\beta}{16D} d^2 \sin^2(\theta - \theta_0), \quad (2.18) \end{aligned}$$

ここで、 θ_0 は平衡角で、 $\theta_0 = \cos^{-1}(-1/3) = 109.47$ 度である。

2.2 DGR コードの機能

ダイヤモンド型結晶のための分子力学コード、DGRは Part I, Part II および Part III からなり、その区分や流れは GRAPE¹⁾と同じ形式を採用した。Part I では、結晶とその初期条件の設定、原子間の力やポテンシャル関数のテーブル化および、相互作用する隣接原子を検索するテーブルの設定等を行う。Part II では運動方程式を解き、Part III では各原子の軌道や配位をプロットする。扱える原子の数は4,000個以内である。

運動方程式の階差化の手法は付録1にまとめた。運動方程式を解く時に、長さや速さを適当にスケール変換する。1種類の原子から成る結晶において単位を次のように設定する。

長さ：格子定数を2とする。

速さ : 1,000 eVの原子の速さを単位とする。
時間の単位は上の長さで速さの単位から決まる。シリコンの場合、原子量が 28.09 (1原子 = 4.644×10^{-23} g) であるので、単位速さは v は $mv^2/2 = 1,000$ eV の関係から決まり、格子長数 5.430 \AA を考慮すると、単位時間は 3.28×10^{-15} sec となる。ゲルマニウムの場合、原子量が 72.59、格子定数が 5.658 \AA であるので、単位時間は 5.50×10^{-15} sec となる。

2.2.1 DGR-Part I

ダイヤモンド結晶の構造は、Fig.1 の四面体配位を積み重ねたものであり、前記の単位で $(2 \times 2 \times 2)$ の大きさの面心立方格子に $(1/2, 1/2, 1/2)$, $(1/2, 3/2, 3/2)$, $(3/2, 1/2, 3/2)$ および $(3/2, 3/2, 1/2)$ の 4ヶ所に原子を付加した形になっている。それ故、 $(0, 0, 0)$ を原点とし、もう一方の頂点を (IA, IB, IC) とする立方体に含まれる原子数 N は次のように表わされる。

$$\begin{aligned} N = & (NX+1) \cdot (NY+1) \cdot (NZ+1) \\ & + (NX+1) \cdot NY \cdot NZ + NX \cdot (NY+1) \cdot NZ \\ & + NX \cdot NY \cdot (NZ+1) + 4NX \cdot NY \cdot NZ \\ & - NV + NR, \end{aligned} \quad (2.19)$$

ここで、 IA, IB, IC を偶数とすると

$$NX = IA/2, \quad NY = IB/2, \quad NZ = IC/2, \quad (2.20)$$

であり、 NV と NR はその結晶に含まれている空孔と格子間原子の数である。なお、格子間原子は必ずしも格子点にある必要はなく、また、空孔に置くこともできる。 NV が零でないならば、空孔の座標 $(INV(J, I), I = 1, \sim 3)$ を入力し次のように 1 語で表現する。

$$\begin{aligned} KV(J) = & 900 * INV(J, 1) + 30 * INV(J, 2) \\ & + INV(J, 3), \end{aligned} \quad (2.21)$$

ここで、結晶のいずれの辺の長さも 30 を越えないとする。全格子点原子も同様の定義により表現し、(2.21) 式の $KV(J)$ と比較する。もし両者が一致すれば、その格子点は空孔である。

次に、結晶の表面の原子は内部のものとは区別して扱わねばならないので、境界のタイプを次のように分類する。直方体には、6ヶの面、12ヶの稜、8ヶの頂点があるから、合計 26 の境界タイプがある。更に直方体の内部を 1 タイプとすると、合計 27 タイプとなる。これらの境界タイプを番号 $M (M = 0, 1, 2, \sim 26)$ で表わすと次のように書ける。

$$M = \alpha_3 + 3 \cdot \alpha_2 + 9 \cdot \alpha_1, \quad (2.22)$$

ここで、 α_i は整数を表わす $[\]$ を用いて次のように表現できる。

$$\alpha_i = 2 \left[\frac{I_i + M_i}{2M_i} \right] + \left[\frac{M_i - I_i + 1}{M_i} \right], \quad (2.23)$$

I_i : 原子座標の第 i 成分 + 1,

M_i : 原子座標の第 i 成分の最大値 + 1.

すなわち、 α_i は座標の最小値 1、座標の最大値で 2、その中間部が 0 となる。表面の第 2 層に対しても同様に分類できるが、第 1 層と区別するため M に負号をつける。

原子の座標は $X(I, J)$ で表わされる、 I は原子番号であり、 J は次元を表わす。運動方程式を解くには、第 I 番目の原子に相互作用を及ぼす原子の位置座標を知る必要がある。単純には、各原子に対して他のすべての原子を走査すればよいが、この方法では相互作用ポテンシャルの作用範囲外にある原子まで走査する事になり、効率が悪い。ここでは、各原子に対してその原子の近辺だけを走査する「箱検索」の方法を用いる。この方法では、先に述べた基本単位長 $(1/2$ 格子単位) の長さの稜を持った立方体で結晶を分割する。その立方体の箱は結晶よりも広い体積を覆い、その位置を (X, Y, Z) と書き、範囲を次のようにする。

$$\left. \begin{aligned} -0.45 \leq X < IA + 0.55, \\ -0.45 \leq Y < IB + 0.55, \\ -0.45 \leq Z < IC + 0.55. \end{aligned} \right\} \quad (2.24)$$

ダイヤモンド結晶の場合、半整数の位置座標に原子が存在する事があるので、検索箱の境界は半整数位置を避けている。各検索箱には次のような識別番号 J が付けられる。

$$J = 1 + [X + 0.45] + \alpha \cdot [Y + 0.45] + \beta \cdot [Z + 0.45], \quad (2.25)$$

$[\]$ は整数部分を表し、 $\alpha = IA + 1$, $\beta = \alpha \cdot (IB + 1)$ である。すなわち、 (X, Y, Z) にある原子は (2.25) 式により $Box(J)$ に対応させる事ができて、その原子番号をその $Box(J)$ に収納する。1 個の Box に 4 個まで収納できる。 $Box(J)$ に隣接した箱を $Box(J_n)$ とすると、箱の識別番号の差が次のように定義できる。

$$IK = J - J_n = [X - X_n] + \alpha \cdot [Y - Y_n] + \beta \cdot [Z - Z_n], \quad (2.26)$$

このような差ベクトル IK をあらかじめ準備しておき、各 $Box(J)$ に対する近接箱 $Box(J_n)$ を決める。その $Box(J_n)$ の中の原子番号により近接原子を決める事ができる。ダイヤモンド晶系の場合、最近接原子の共有結合のみを考慮すればよいので、ある箱を中心にした $(3 \times 3 \times 3)$ の範囲内でのみ IK を変化させて検索する。 IK を変化させる範囲は $Box(J)$ が表面にある場合は内部方向のみでよい。 IK のテーブルはサブルーチン GR1D20 で作成される。

ポテンシャル関数 V と ϕ は (2.17) と (2.18) 式により与えられるが、処理時間の節約のため、 $V, \phi, dV/dr, d\phi/d\theta$ および中心力ポテンシャルとその微分値はサブルーチン GR1D30 で各々 1,000 点の数値テーブルで与え、Part

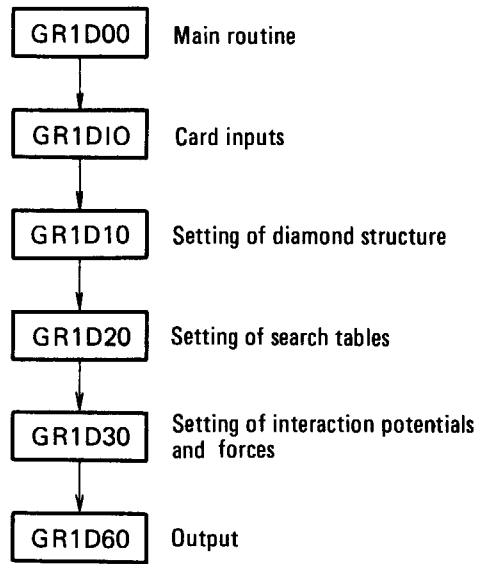


Fig. 2 Flow chart of the Part I of the DGR code.

IIではそれらを内挿して値を求める。これらの関数や係数を変更する際は直接にフォートランを変更するものとする。

Part Iのサブルーチンの流れを Fig. 2に示す。サブルーチン GR1D60からファイル F18への出力は Part IIへの入力となる。なお、DGR コードはすべて倍精度で計算される。

2.2.2 DGR-Part II

Part IIでは結晶を構成する各粒子に対する運動方程式を解き、種々のエネルギーを計算する。中心力の他に、共有結合における変角力を模擬するための非中心力相互作用を扱っている事が特徴である。Part IIの計算の流れは Fig. 3 に示す。

エレメント GR2D08がメイン・ルーチンであり、全体の流れを制御する。サブルーチン GR2D10ではカード入力を読み、GR2D10では Part Iからのデータをファイル F18から読み込む。第1時間ステップでの計算は Part Iで作成された初期条件から始まるが、それは INSEN=0のデータ終了記号で判定する。計算結果は各時間ステップ毎にファイル F18あるいは F19に記録するが、その際そのデータ・ブロックが最終ブロックでない場合は INSEN=1が、最終ブロックならば INSEN=0がそれらのブロックの最後に記入される。第2回目以降の計算では前回の結果が F18から入力されて INSENにより最終ブロックが判定されるが、前回のデータをすべて保存するか、捨てるかは Fig. 3の GR2D20において操作する。

相互に近接した結合相手を効率よく探す方法として検索箱の手法を Part Iで説明したが、サブルーチン GR2D30で各粒子を検索箱に収納する。収納は毎時間ステップに行われる。

非中心力相互作用を扱う事において中心力のみを扱う

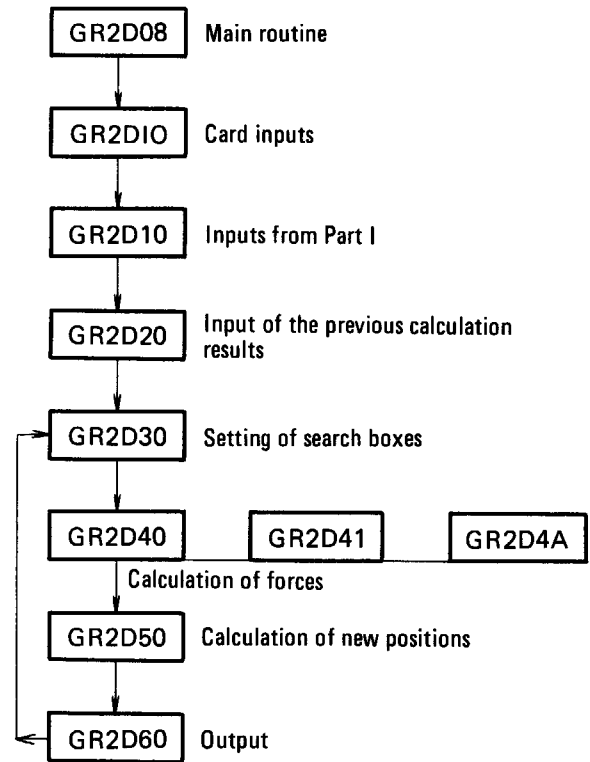


Fig. 3 Flow chart of the Part II of the DGR code.

従来のものと異なるところは、1個の原子は4本の結合手を持ち、4個の原子と結合し、更なるその結合手間の角度に依存した力を受けているので、いずれの2個も独立には扱えず、各原子対間に作用・反作用の法則が適用できない事である。それ故に、相互作用力を計算するルーチン GR2D41が従来とは大いに異なる。各原子に接近した原子をすべて見つけだし、そのうち最も近い4個とのみ相互作用する。この結合手の計数は各原子に付けてあるパラメーター ICONVにより行う。しかし、原子の配位が四面体配位からひどく歪んでくると、ある原子にとって最近接の4個が決まったとしても、選ばれた原子にとっては、選んだ主を最近接の4個に選ぶとは限らなくなってくる。このように歪んだ状態では実際には結合手が切れて、ダンダリングが生ずるが、プログラム上では結合手の計数に矛盾が生じて計算はストップする。しかし、結合角が平衡角よりひどく歪むと変角力が小さくなり、また同時に(2.8)式から分るように結合手の伸長力も弱くなり、結合手が切れたような状態になる。従って、変角力を考慮したシミュレーションは平衡状態からそれ程はなれていない状態に適しているけれども、結合手が動的に組み替わるカスケードのような場合にも近似的に適用できる。しかし、結合手の計数については工夫が必要となる。

空孔の形成や移動に伴う歪みを計算する際、結合手の組み替えが必要であるが、対称性により幾通りかの組み合わせが可能で、距離の判定だけでは最近接の4個を選ぶ事は不可能である。そのような場合には、どの原子と

結合するかをあらかじめ指定する事ができる。入力は GR2DIO で行なわれ、COMMON/COMBIN/ にデータが入るが、一度計算が始まると指定した原子同志が接近するから以後は距離の判定だけにより自動的に結合相手を見つける。

力の計算のためのサブルーチン GR2D41 では、中心力相互作用だけを扱う事もできる。この場合は相互作用しているいずれの対の原子間にも作用反作用の法則が成立するから、ある原子に作用する力を計算した時に相手の受ける力として負号を付けて ZZ1, ZZ2, ZZ3 に保存しておき、その原子についての力を計算する時にこれらの値を用いれば、半数の原子を扱うだけで計算は終る。中心力は GR2D41 の前半で扱われている。

非中心力相互作用は GR2D41 の後半で次のような手順で扱う。(A)各々の原子にたいして、相互作用する最近接の 4 原子を見つける。表面の原子やすでに指定された結合手を持つ原子はその分だけ結合手は少なくなる。(B)各原子がその最近接の 4 原子と共につくる四面体の 6 個の結合角を計算する。(C) 4 本の結合手と 6 個の結合角による位置エネルギーをテーブルから内挿法により求める。(D)各原子に働く結合手の伸縮による力を計算する。(E)各原子に働く変角力を GR2D4A で計算する。これらの力は多体間力であり 3 ケ以上の原子とかわかっており原子間対には作用反作用の法則が適用できないので、全原子についてそれぞれ計算しなければならない。ただし、全原子について加算した位置エネルギーは半分にしなければならない。

サブルーチン GR2D40 では、GR2D41 で計算した各原子に対する力に表面力の補正を行い、各原子の新しい位置を(A.9)式により求める。プログラムでは $VX(I, J)$ と表現される。

サブルーチン GR2D50 では、原子の新しい座標と古い座標とを比較し運動エネルギー(KNGKA)を計算する。他にポテンシャル・エネルギー(ENGPO)、表面につなぎとめるスプリング・エネルギー(ENGSP)、表面から散逸するエネルギー(ENGL0)、それに全エネルギー(ENGTO)を計算する。前回の時間ステップでの全エネルギーと比較して誤差(DISCN)も計算する。

更にこのルーチンでは安定解を早く求めるためのクエンチングを実行する。不安定な配位にある結晶を緩和させて安定な配位を見つけ出すためには、余計な運動エネルギーを除かねばならないが、結晶表面から散逸させるだけでは計算時間が長くなる。そこで次のような手段を講ずる。全運動エネルギーが次第に増加する過程はより安定な配位へ接近中であり、一方、次第に減少する過程は安定な配位より遠ざかりつつあると言える。そこで全運動エネルギーがまさに減り始めた瞬間に全原子の速度を零にする。このような操作を数回繰り返して運動が起らなくなれば安定な配位に達したと見なす。このクエンチングはパラメータ LSLT(5)=1 によって作動する

が、全原子に運動エネルギーがよく行きわたってから作動させないと却って収束を遅くするので注意を要する。

サブルーチン GR2D60 は出力のためのルーチンで、LSLT(1)=0 ならば、入力に用いたファイル F18 の後に出力され、LSLT(1)=1 ならば別のファイル F19 に出力される。この F19 のデータは次の継続計算の入力になる。

メイン・ルーチン GR2D08 では、各時間ステップでの全エネルギーの誤差 DISCR を入力した許容値 TOL と比較し誤差が大きい時には 1 ステップ戻る。しかし、1 ステップ戻るだけで問題が解決される事は少なく、結局始めから時間ステップ幅を小さくしたり、適宜条件を変えて試行せざるを得なくなる。非中心力を扱う場合は、(2.17)と(2.18)式におけるようにポテンシャル関数の結合手の伸張部分と変角部分が積で表現されており、更にこれらの各部分は内挿で得られた力やポテンシャルの値の多重積になっており、一般に中心力のみを扱う場合と比較して計算誤差が大きくなる。それでプログラムをコンパイルする時は倍精度で行い、計算を実行する時は時間ステップをできるだけ小さくすることが大切である。

DGR の Part III は Part II でファイル F18 または F19 に出力された結果を作図するためのコードである。結晶の x-y 面を出力する版と他の y-z, z-x 面を出力する版は各々別になっている。作図する面の厚さと面の数は入力で指示する。データの時系列の打ち切りはファイル上のブロック数で指示する。

2.3 DGR コードの使用方法

プログラム DGR の入力形式について以下に説明する。原子間相互作用のポテンシャル関数とその微分関数はサブルーチン GR1D30 で直接に与える。ポテンシャル関数やその係数を変更する時はフォートランを変更する。ポテンシャル関数の強度(eV)は 1/2000 で与える。

以下、Part I の入力形式を示す。

データ 1. (9I5) 1 枚

1. IPROB 問題識別番号.
2. MONTH 月.
3. KAY 日.
4. IEAR 年.
5. IA 結晶の X 方向の大きさ(半格子長単位).
6. IB 結晶の Y 方向の大きさ(半格子長単位).
7. IC 結晶の Z 方向の大きさ(半格子長単位).
8. NV 空孔の数, $1 \leq NV \leq 50$.
9. NR 格子点よりずれた原子数, 又は, 追加した原子数.

データ 2. (3I5) NV 枚

1. INV(1,1) 第1空孔の X 座標(1/4 格子長単位).
 2. INV(1,2) 第1空孔の Y 座標(1/4 格子長単位).
 3. INV(1,3) 第1空孔の Z 座標(1/4 格子長単位).
- NV 枚繰り返す. 1/4 格子単位により空孔は整数で指定できる.

データ 3. (3F10.4) NR 枚

- X(N-NR+1, I), I=1, 3
格子点よりずれた原子, 又は, 追加した原子の X, Y, Z 座標(半格子長単位).

データ 4. (6F10.4) 2 枚

1. RMIN(1) 共有結合伸張力のテーブル作成における結合距離の最小値.
2. RMIN(2) 共有結合変角力のテーブル作成における結合角の最小値.
3. RMIN(3) 金属結合力のテーブル作成における結合距離の最小値.
4. RMAX(1) 上記第 1 項の最大値.
5. RMAX(2) 上記第 2 項の最大値.
6. RMAX(3) 上記第 3 項の最大値.

2 枚目の(A1(I), B1(I), I=1, 2, 3)は, ポテンシャル関数の定数であるが未使用. カードは必要.

データ 5. (F10.4) 1 枚

1. DT 時間ステップ幅.

データ 6. (3F15.4) 156 枚

- A(1,1) 第 1 層 1 種原子に働く X 方向の定数の力.
B(1,1) " " 弾性定数.
C(1,1) " " 粘性定数.

{

- A(M,3) 第 1 層 M 種原子に働く Z 方向の定数の力.
B(M,3) " " 弾性定数.
C(M,3) " " 粘性定数.

- A2(1,1) 第 2 層 1 種原子に働く X 方向の定数の力.
B2(1,1) " " 弾性定数.
C2(1,1) " " 粘性定数.

{

- A2(M,3) 第 2 層 M 種原子に働く Z 方向の定数の力.
B2(M,3) " " 弾性定数.
C2(M,3) " " 粘性定数.

データ 7. (I5) 1 枚

1. MOV 初期に運動エネルギーを与える粒子の数.

データ 8. (6F10.4) MOV 枚

1. XM(1) 運動エネルギーを与える粒子の X 座標.
2. XM(2) " " Y 座標.
3. XM(3) " " Z 座標.
4. D(1) X 方向の速度.
5. D(2) Y 方向の速度.

6. D(3) Z 方向の速度.
[D(1)**2+D(2)**2+D(3)**2]*1000 が eV 単位になる.

次に Part II に対する入力形式を示す.

データ 1. (5I6) 1 枚

1. SLT(1)=0 入力と同じ F18 へ出力する.
=1 F19 へ出力する.
2. SLT(2)=1 イニシャルスイッチ.
=0 再実行のとき 0 とする.
3. SLT(3)=1 SLT(4)=1 と共に用いると時間ステップを変更しない.
=0 時間ステップを以前の値に戻す.
4. SLT(4)=1 とする.
5. SLT(5)=0 クエンチングを行わない.
=1 クエンチングを行う.

データ 2. (F10.4) 1 枚

1. TOL 許容されるエネルギー計算誤差の最大値.

データ 3. (6F10.4) 1 枚または 2 枚

1. TT(1) 初期設定の DT を変更する時刻.
2. DTN(1) 新しい時間ステップ幅. 零なら終了.
3. TT(2) DTN(1) を変更する時刻.
4. DTN(2) 新しい時間ステップ幅. 零なら終了.
:
- DTN(3) ≠ 0 なら次のカードを同様に読む. DTN(6) まで入力可能. DTN(6)=0.0 でなければならぬ.

データ 4. (I6) 1 枚

1. KK 指定する結合手の数.

データ 5. (2I6) KK 枚

- III1(K), III4(K) K 番目の結合手により結ばれる原子の粒子番号.

次に Part III に対する入力形を示す.

データ 1. (F15.4, 2F5.2, 2F6.2, I4)

1. EPS プロットする原子の最小移動距離.
2. ZS プロットする Z 層の最小値.
3. ZE プロットする Z 層の最大値.
4. XE プロットする X 軸の長さ(mm 単位).
5. YE プロットする Y 軸の長さ(mm 単位).
6. NT ファイル F18 の処理対象のデータ・ブロック数(全ブロック数より大きい時は全ブロックが処理される).

上記パラメータを変えたプロットを必要とする場合は上記カードを必要なだけ繰り返す.

2.4 DGR コードによる計算例*

ダイヤモンド型結晶における格子欠陥を扱う場合、非中心力相互作用を考慮に入れる事は必須である。すなわち、完全結晶の場合は中心力相互作用のみであっても対称性により系は安定しているが、欠陥のある場合は、遠い相互作用を考えない限り結合角を保持する抗力が生ぜず、歪みが広く伝わり、系の安定性が保証されないからである。

完全結晶の場合は結晶の対称性により次のような中心力のモース・ポテンシャル²²⁾を最近接原子間に仮定するだけで安定性は保たれる。

$$V(r) = D \left\{ \frac{\alpha_2}{\alpha_1 - \alpha_2} \exp[-\alpha_1(r-d)] - \frac{\alpha_1}{\alpha_1 - \alpha_2} \exp[-\alpha_2(r-d)] \right\}, \quad (2.27)$$

ここで、 D は結合手を切るのに要するエネルギー、 α_i は定数、 d は最近接距離である。このような完全結晶から次のように1原子を取り出し空孔を導入する。すなわち、中央部から4本の結合手を切断して1原子を取り出し空いた4本の手を2本ずつ組み合わせて、同様なモース・ポテンシャルを通じて引き合うものとする。このような条件のもとでDGRコードを用いて緩和計算を行うと、歪みが局所的に伝わり表面を陥没させてしまう。このため、表面を固定して同様な初期条件から緩和計算を行うと今度は安定した原子配列がFig.4のように得られる。しかし、この結果は固定された表面の支えにより見かけ上安定しているだけであって、結晶を大きくして行くと、Table 1 から分かるように空孔の形成エネルギーや空孔の半径は次第に小さくなる。(10×10×10)の大きさの系では空孔の形成エネルギーは非常に小さくなった。更に系を大きくすると歪みをわずかず広く分散させて、歪みエネルギーは零に近づくものと考えられる。これは、中心力だけでは、欠陥を支えて固有な安定性を保ち得ない事を示していると言えよう。Seegar等²²⁾は歪みは空孔の周辺部にとどまると仮定して、小さな結晶に設定した空格子の緩和を中心力のみを用いて解析したが、これは妥当な方法ではないと考えられる。ダイヤモンド型結晶における空孔は、空いた4本の結合手同志が相互に引き合うため、中心力相互作用では安定しないと言える。非中心力相互作用を考慮する事によりFig.5に示したように系の大きさに依存しない安定した空孔が在存し得ることを実証することができた。中心力のみでも、第2あるいは第3近接にまで及ぶ長い相互作用を考慮すれば安定した空孔が得られるかもしれないが、共有結合が100%を占めるダイヤモンド型結晶ではそのような仮定は成立しない。しかし、共有結合が部分的でしかない金属の場

Table 1. The formation energy E_{fv}^f and radii of a vacancy calculated for various sizes of Si crystal with the Morse potential* and the fixed surfaces

Size of cubic set	Number of atoms (movable atoms)**	E_{fv}^f	Radius of vacancy***
3×3×3	44 (16)	1.98	0.65
4×4×4	94 (44)	0.99	0.64
8×8×8	620 (426)	0.33	0.61
10×10×10	1165 (863)	0.16	0.61

* The potential parameters in (2.15) are $d=2.350\text{\AA}$, $\alpha_1=1.728\text{\AA}^{-1}$, $\alpha_2=0.984\text{\AA}^{-1}$ and $D=5.9\text{eV}$.

** Movable atom means the atoms other than those fixed on the surfaces.

*** Half lattice unit.

合には、金属結合が長距離力の中心力相互作用として現われ、この長距離力を適当に操作するならば、結晶は欠陥があっても固有の安定性を示し、非中心力を考慮する事は必ずしも必要でなかった。すなわち、体心立方格子では第2隣接原子にまで及ぶ中心力を考慮しないと完全結晶そのものが安定しないので、長距離の中心力を導入する事が必須となり、そのための中心力を調整することにより欠陥があっても安定が保たれ、その形成エネルギー等も計算する事ができた¹⁴⁾。面心立方格子の場合は、最稠密格子であるため最隣接原子とだけ相互作用する中心力により安定し、点欠陥があっても弾性球を固い箱の中に充てんしたような形で安定であった¹³⁾。しかし、中心力だけで問題が解決したわけではなく、空孔の広がり方やその周辺の原子のふるまい、あるいは転位の安定性など相互作用の様式が直接関係する問題についてはまだ検討の余地があるように思われる。特に、転位の安定な設定のために異常に長距離の中心力が仮定されるなど¹⁵⁾、非中心力の役割が期待されているように思われる。

ダイヤモンド型結晶において、中心力のみの場合の空孔(Fig.4)と非中心力をも考慮した場合の空孔(Fig.5)に対して、その周辺の歪みエネルギーの分布を計算してFig.6のように比較した。横軸は空孔の中心からの距離であり、縦軸は原子1個についての歪みエネルギーであり伸びの歪みと結合角の歪みに分けて示してある。中心力の場合は平衡角への復元力がないため、結合角の歪みは歪みエネルギーにならず、空孔の半径は新しい結合手の引き合いにより大きく歪んでいるけれども、歪みエネルギーの蓄積は大変少ない。非中心力があると、新しい結合手の引き合いに抗して、空孔は開いたままとなり、その周辺に歪みエネルギーが蓄積する。空孔の半径を示す矢印からわかるように、半径は非中心力を考慮した方が35%大きくなっている。次にこの様子を更に詳細に見るため、結合角の平衡角からの歪みを空孔の中心から距離の関数としてFig.7に示す。結合角の歪みは次のように定義した。

*ここでの計算例は参考文献(21)に報告したものが基本になっている。

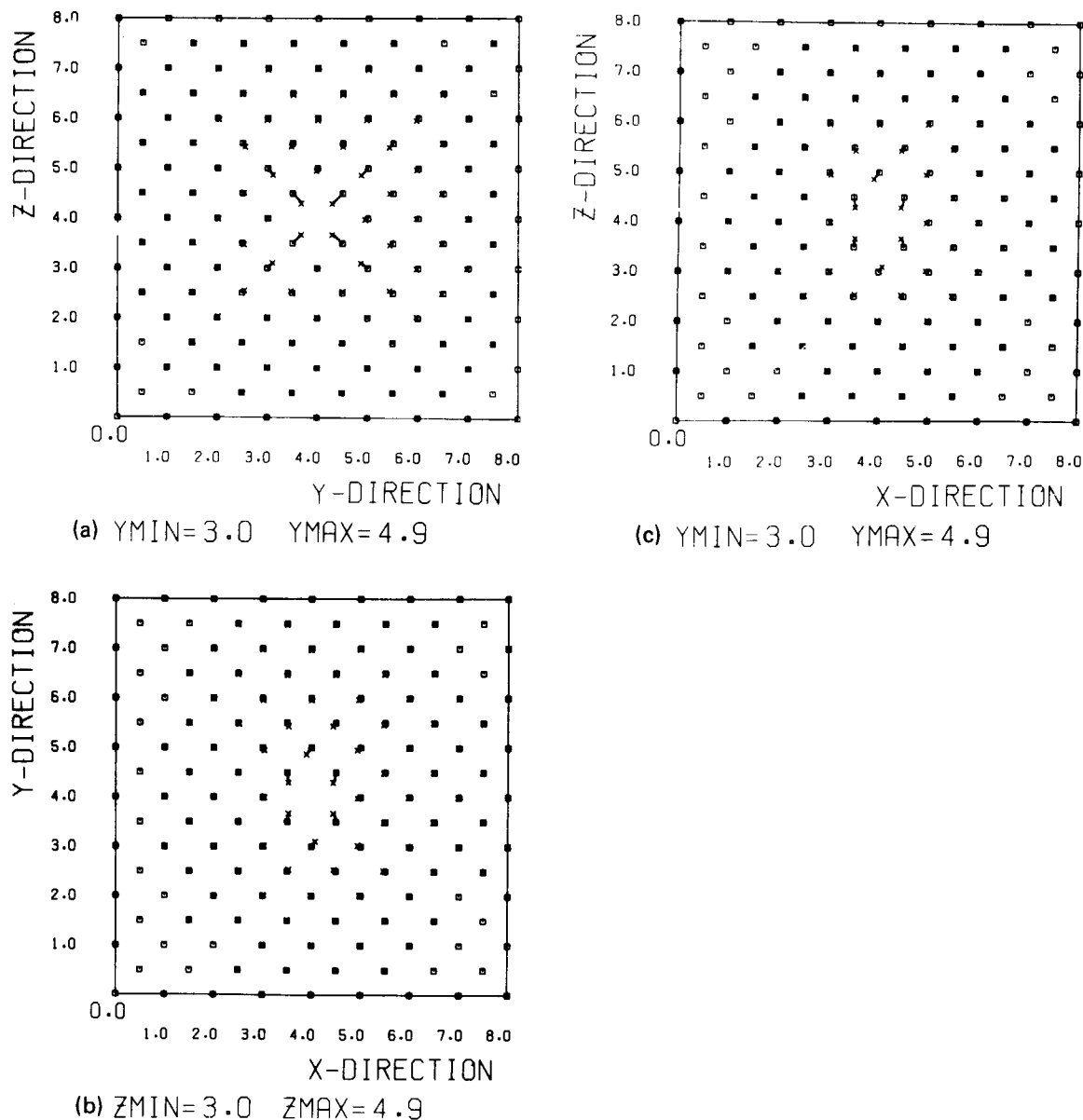


Fig. 4 Atom configuration around a vacancy calculated for the central force interaction in Si. The Morse potential in ref. 22 is used and the atoms on the surfaces are fixed. The configuration of the vacancy is projected to the three different directions. The signs □ and × denote the positions of atoms at the initial and the final stage of the relaxation calculation, respectively.

$$\overline{\Delta\theta} = \left[\sum_{i=1}^{6n} (\theta_i - \theta_0)^2 / 6n \right]^{1/2}, \quad (2.28)$$

ここで、 n は空孔の中心からある半径の殻(厚さ0.05格子長単位)の中に入る原子の数であり、 $(\theta_i - \theta_0)$ は平衡角からの歪み角である。結合角の歪みは非中心力を考慮した場合の方が小さく、また空孔周辺に集中している。中心から遠ざかるにつれて急速に小さくなっている。中心力のみの場合歪み分布は大きくゆらいているが、これは結合手の方向分布が中心からの距離によって異なり、働くモーメントが異なっているからである。

空孔の他に空孔対についても同様に非中心力を考慮し

た計算を行った²³⁾。安定した空孔対の原子配列を、Fig.8に示す。空孔と空孔対の形成エネルギーと空孔の移動エネルギーの計算結果をTable 2に示す。空孔の形成エネルギーは次のように定義する。

$$E_{1V}^f = W_{1V} - 2D - W_{\text{perfect}}, \quad (2.29)$$

ここで、 W_{1V} は空孔を含んで安定した状態での全位置エネルギーを表し、 D はボンド切断エネルギー、 W_{perfect} は完全結晶での全位置エネルギーである。 $2D$ の意味は4本のボンドを切断して1原子を抜き出し、残った4本の空いた手を2本ずつ結合させたので完全結晶状態よりも2本だけボンドが少ないという事である。空孔対の形成

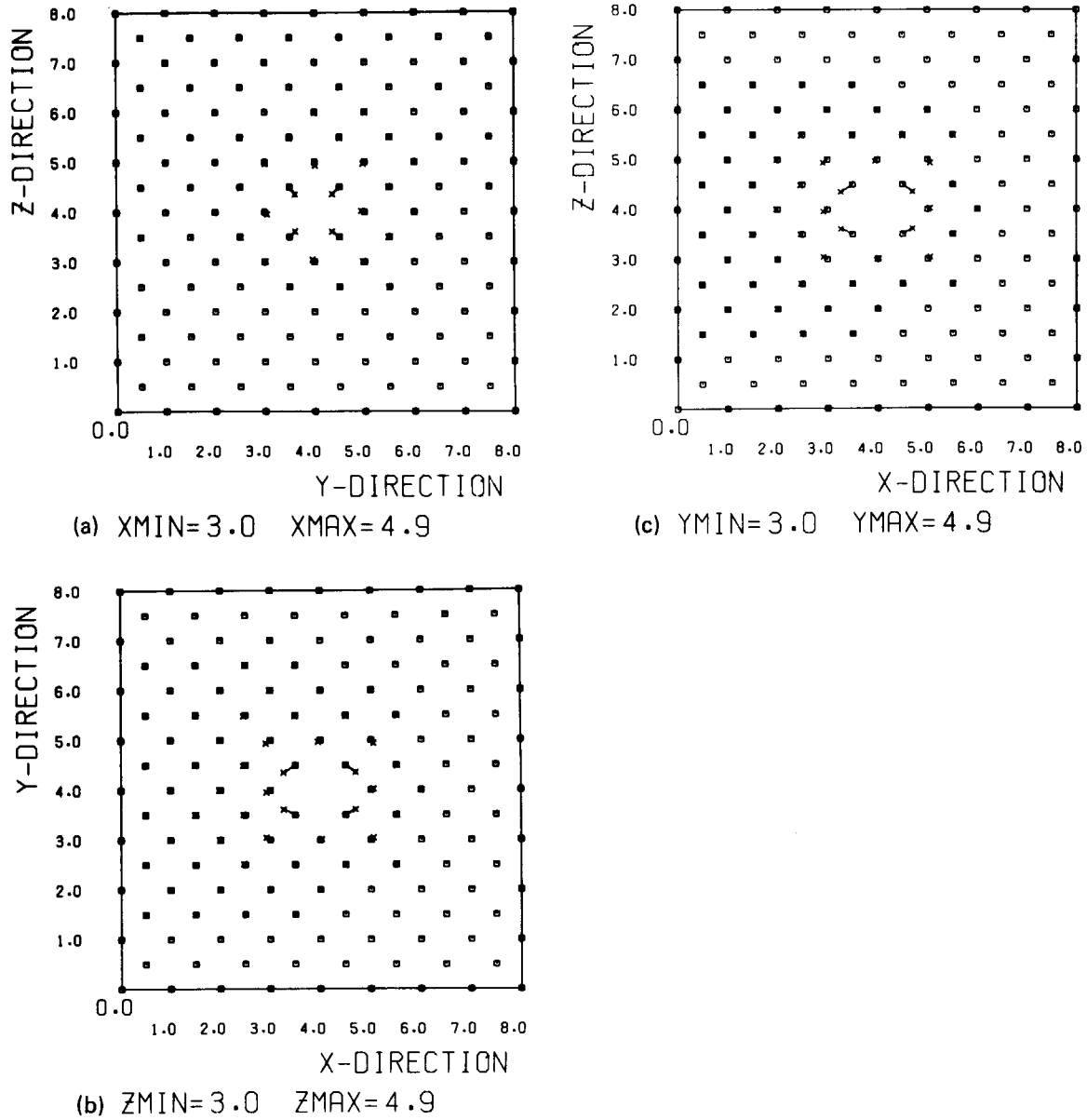


Fig. 5 Atom configuration of a vacancy calculated with the Keating potential for Si. The atoms on the surfaces are free from any external forces.

エネルギーは次のように定義される.

$$E_{2v}^f = W_{2v} - 4D - W_{\text{perfect}}, \quad (2.30)$$

ここで, W_{2v} は空孔対を含んで安定した状態での全位置エネルギーであり, 他の記号は(2.29)式と同じである. $4D$ の意味は空孔対を作るのに6本のボンドを切断して7本分の D を取り出し, 空いた6本の結合手同志を組んで3本のボンドを作ったので完全結晶状態よりも4本だけ少なくなっているという事である. 空孔対の結合エネルギーは次のように定義される.

$$E_{2v}^b = 2E_{1v}^f - E_{2v}^f. \quad (2.31)$$

次に空孔の移動エネルギーは, 空孔移動の活性化エネルギー Q を用いて次のように定義される.

$$E_{1v}^M = Q - E_{1v}^f, \quad (2.32)$$

ここで, Q は次のように表わされる.

$$Q = W_{1v}' - 2D - W_{\text{perfect}}, \quad (2.33)$$

ここで, W_{1v}' は(4, 4, 4)及び(4.5, 4.5, 4.5)を空孔にして, その中間の(4.25, 4.25, 4.25)に原子を固定して周辺を緩和させた時に得られる全位置エネルギーである. **Table 2** はすべて(8×8×8)の結晶における結果であり, Si^*, Ge_{24}^* は Keating のポテンシャルを, Si^{**}, Ge^{**} は Steinhalt の推定した力定数を用いて計算した結果である. また, 力定数の外にポテンシャル関数の定数項 D について2eVと6eVの場合を比較したが, それぞれ定常状態への接近の仕方は違っていたが空孔の形成エネルギーでは3%の差しか認められなかった. これは空孔周辺の定常なひずみは歪みポテンシャルのみで決まるためと考えられる.

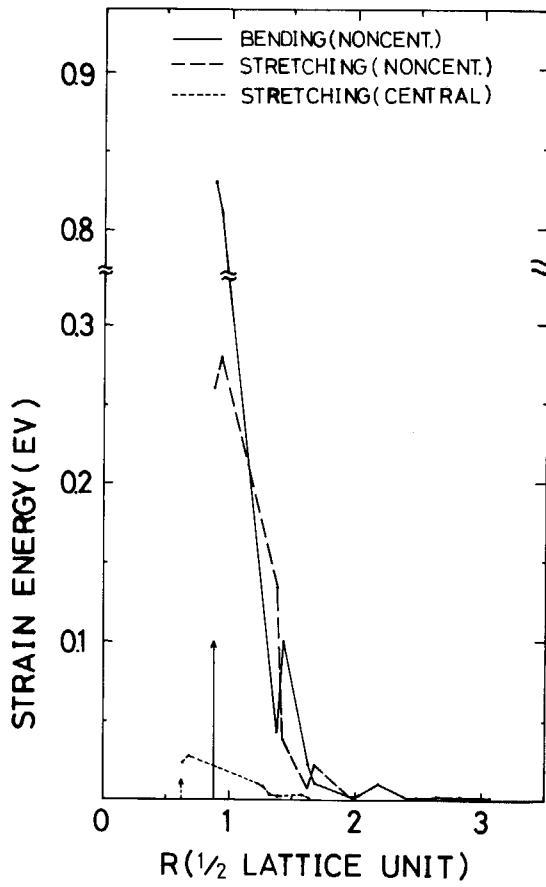


Fig. 6 Radial distributions of the strain energies around the vacancy. The solid and the broken lines show the strain energies due to bond-bending and bond-stretching, respectively, in Si for the case shown in Fig. 5. The dotted line shows the strain energy of bond-stretching calculated for the Morse potential shown in Fig. 4. The upward arrows indicate the radii of the vacancies.

Table 2. The single vacancy formation energy E_{1V}^f , the divacancy formation energy E_{2V}^f , the divacancy binding energy E_{2V}^b , and the single vacancy migration energy E_{1V}^M in eV

Material	E_{1V}^f	E_{2V}^f	E_{2V}^b	E_{1V}^M
Si*	3.44	6.40	0.48	0.61
Ge*	2.77	5.05	0.49	0.64
Si**	2.43	-	-	-
Ge**	1.80	-	-	-

* The force constants $\alpha=0.485 \times 10^5$ dyne/cm and $\beta/\alpha=0.29$ for Si, and $\alpha=0.38 \times 10^5$ dyne/cm and $\beta/\alpha=0.32$ for Ge by Keating⁸⁾.

** The force constants $\alpha=0.485 \times 10^5$ dyne/cm and $\beta/\alpha=0.20$ for Si, and $\alpha=0.38 \times 10^5$ dyne/cm and $\beta/\alpha=0.20$ for Ge (the ratio β/α is estimated by Steinhalt¹¹⁾).

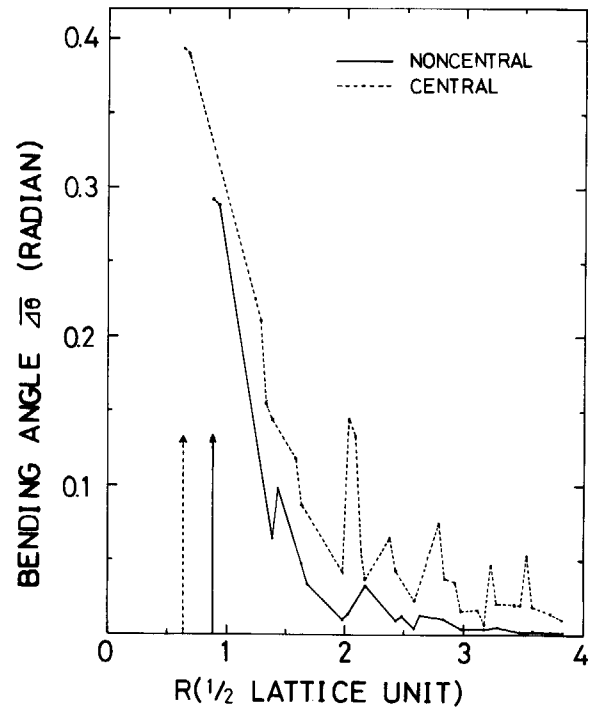


Fig. 7 Radial distributions of the bending angles. The solid line represents the bond-bending for the case of the noncentral force interaction in Si of Fig. 5. The broken line represents the case of the central force interaction of Fig. 4.

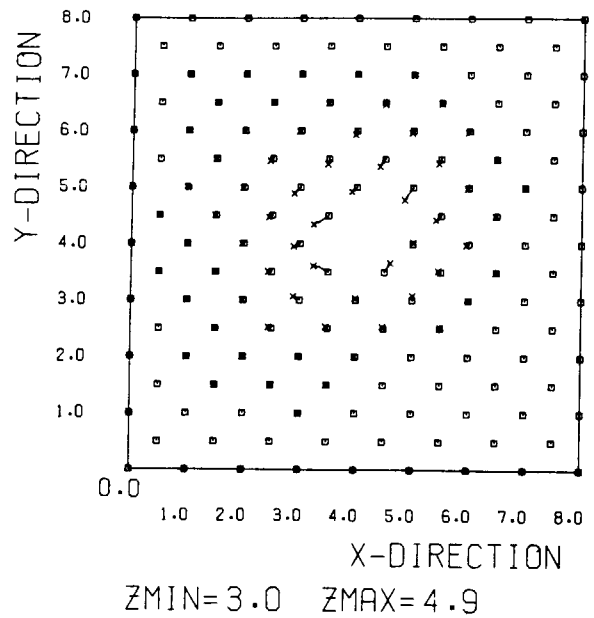


Fig. 8 Atom configuration around a divacancy. The Keating potential mentioned in Fig. 5 is used. The atoms on the surfaces are free from any external forces.

3. 黒鉛型結晶における分子動力学コード：GGR

黒鉛型結晶に属する結晶としては黒鉛と二元化合物 BN が知られている。黒鉛の結晶は共有結合が XY 面内に広がり、Fig.9 のように層状構造を形成する。各層で炭素原子は互に結合して六回対称環を作る。ボンドの長さはダイヤモンドのボンド長 1.54Å よりも短く、1.42Å である。なおベンゼン環ではもっと短く、1.40Å である。隣り合せの層間の炭素原子同志の距離は 3.4Å も離れており、ファン・デル・ワールス力により結合している。1つの層の格子を構成している原子は下の層の格子の環の中心の原子のない点の真上に位置する。本章では黒鉛型結晶における分子動力学コード：GGR(GRAPHITE GRAPE の略)について説明する。

3.1 黒鉛型結晶における分子動力学コード

黒鉛型結晶の場合は、少なくとも2種類の力を考慮しなければならない。同一面内にある原子は共有結合で結ばれ、異った面にある原子はファン・デル・ワールス力で相互作用しているからである。後者は中心力として従来の方法で扱える。共有結合による非中心力はダイヤモンド型結晶の場合と同様の近似方法、すなわち、2.1 節に述べたように完全結晶からの歪みは小さいと仮定して扱う。そこで黒鉛型結晶の場合は Fig.10 に示したよう

に4個の原子から成っている系を単位として扱う。注目している第0原子の位置を r_0 とし、この原子に直接影響する周辺の原子の位置を $r_i (i=1,2,3)$ とする。第0原子に対する非中心力による位置エネルギーは次のように表わされる。

$$U(r_0/r_1, r_2, r_3) = \sum_{i=1}^3 U_i, \tag{3.1}$$

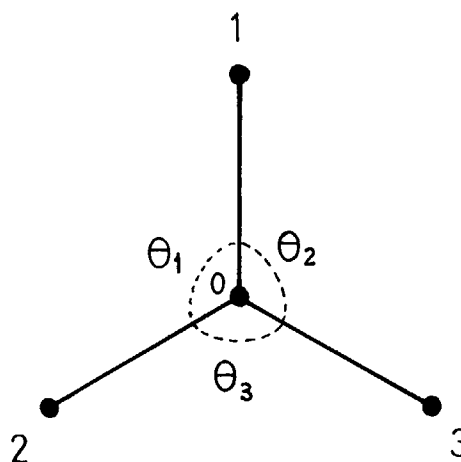


Fig.10 The unit cell for calculating the noncentral force acting on the 0-th atom.

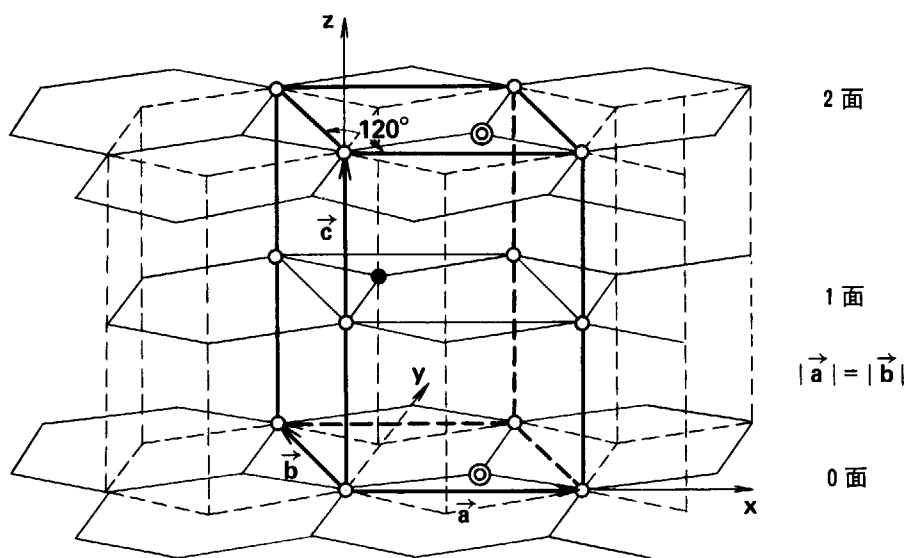


Fig.9 Crystal structure of graphite. The rectangular and skew coordinate systems are shown. $|\vec{a}| = |\vec{b}| = 2.456\text{\AA}$ and $|\vec{c}| = 6.696\text{\AA}$.

$$U_1 = V(r_{01})\phi(\theta_1)\phi(\theta_2), \quad (3.2)$$

$$U_2 = V(r_{02})\phi(\theta_1)\phi(\theta_3), \quad (3.3)$$

$$U_3 = V(r_{03})\phi(\theta_2)\phi(\theta_3). \quad (3.4)$$

上式において, $r_{0i} = |\mathbf{r}_{0i}| = |\mathbf{r}_0 - \mathbf{r}_i|$, ($i=1, 2, 3$)である. また θ_i は Fig. 10 のようにボンドとボンドの間の角度であり, 例えば θ_1 は次の式から定まる.

$$\mathbf{r}_{01} \cdot \mathbf{r}_{02} = r_{01} r_{02} \cos \theta_1. \quad (3.5)$$

上の(3.2)~(3.4)式において, V はボンドの長さに依存したポテンシャル関数であり, ϕ はボンドの曲りによる位置エネルギーの変化を表し, 平衡角 $\theta_0 = 120^\circ$ では $\phi(\theta_0) = 1$, 他の角度では $0 < \phi < 1$ とする. 従って, Fig. 10 の第0原子に働く非中心力 \mathbf{F}_0 は次のようになる.

$$\mathbf{F}_0 = -\frac{\partial U}{\partial \mathbf{r}_0} = -\sum_{i=1}^3 \frac{\partial U_i}{\partial \mathbf{r}_0}, \quad (3.6)$$

ここで右辺の第一項だけを示すと次のようになる.

$$\begin{aligned} \frac{\partial U_1}{\partial \mathbf{r}_0} = & \frac{\partial V(r_{01})}{\partial r_{01}} \phi(\theta_1)\phi(\theta_2) + V(r_{01}) \frac{\partial \phi(\theta_1)}{\partial r_{01}} \phi(\theta_2) \\ & + V(r_{01})\phi(\theta_1) \frac{\partial \phi(\theta_2)}{\partial r_{01}}. \end{aligned} \quad (3.7)$$

(3.6)式の $V(r_{0i})$, $\phi(\theta_i)$ の \mathbf{r}_0 での微分は次のようになる.

$$\frac{\partial V(r_{0i})}{\partial \mathbf{r}_0} = -\frac{\mathbf{r}_{0i}}{r_{0i}} \frac{dV(r_{0i})}{dr_{0i}}, \quad i=1, 2, 3, \quad (3.8)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial \phi(\theta_i)}{\partial \mathbf{r}_0} = & \left[-\frac{1}{r_{0i}} \frac{\mathbf{r}_{0i} \times (\mathbf{r}_{0i} \times \mathbf{r}_{0i+1})}{|\mathbf{r}_{0i} \times (\mathbf{r}_{0i} \times \mathbf{r}_{0i+1})|} \right. \\ & \left. - \frac{1}{r_{0i+1}} \frac{\mathbf{r}_{0i+1} \times (\mathbf{r}_{0i+1} \times \mathbf{r}_{0i})}{|\mathbf{r}_{0i+1} \times (\mathbf{r}_{0i+1} \times \mathbf{r}_{0i})|} \right] \cdot \frac{d\phi(\theta_i)}{d\theta_i} \\ = & \frac{d\phi(\theta_i)}{d\theta_i} \frac{1}{\sin \theta_i} \left\{ \frac{\mathbf{r}_{0i}}{r_{0i}} \left(\frac{1}{r_{0i+1}} - \frac{\cos \theta_i}{r_{0i}} \right) \right. \\ & \left. + \frac{\mathbf{r}_{0i+1}}{r_{0i+1}} \left(\frac{1}{r_{0i}} - \frac{\cos \theta_{i+1}}{r_{0i+1}} \right) \right\}, \end{aligned} \quad (3.9)$$

ここで $i=1, 2, 3$ とし, $i+1=4 \rightarrow 1$ とする.

従って, 第0原子に対する運動方程式は(3.5)式を用いて次のように書ける.

$$m \frac{d\mathbf{v}_0}{dt} = \mathbf{F}_0 + \mathbf{F}_w + \mathbf{F}_s, \quad \frac{d\mathbf{r}_0}{dt} = \mathbf{v}_0, \quad (3.10)$$

ここで, \mathbf{v}_0 は第0原子の速度, \mathbf{F}_w は異った結晶面にある原子による力, \mathbf{F}_s は原子が結晶の表面にある場合の表面力である. 結晶の中のすべての原子を(3.9)式の第0原子の位置において, その原子に働く力を計算する. そして(3.9)式を時間ステップ法により解く事により全原子の軌道を求める事ができる. 共有結合による歪みエネルギーポテンシャル関数は Keating の関数のような形式で表現できるとする. そして歪みが小さく, $(\delta r)^3$ が無視できる場合は(3.1)~(3.4)式のように表現できる. しかし, 黒鉛の場合は, 空孔が生じた時3本のダングリング・ボ

ンドができるのでダイヤモンド型結晶の場合のように空いた手を2本ずつ再結合して, 共有結合をつくるという事はできない. 黒鉛の空孔における3本の空いた手がどのようなふるまいをするかは色々推察する事はできるが, ここでは簡単にその3個の原子間に中心力が働く場合について検討する.

3.2 GGR コードの機能

黒鉛型結晶のための分子動力学コード GGR は Part I, Part II および Part III からなり, その区分や流れはダイヤモンド型結晶を扱う DGR と基本的に同じである. しかし, ダイヤモンド型結晶では直交座標系が基本となっているが, 黒鉛型結晶では直交座標系を基本にすると結晶の対称性を利用できない. 粒子の運動を記述するには直交座標系が適しており, 相互関係を検索するには結晶軸に沿って斜交座標系をとった方が便利である. それで両者をそれぞれ使い分ける. 運動方程式の階差化は直交座標系で従来どうり付録1に示したものが利用できる. その際, 長さと原子の速さは次のようにスケール変換する.

長さ: 格子定数 $a = b = 2.456 \text{ \AA}$ を2とする. Z 方向については $c = 6.696 \text{ \AA}$ を2とする場合もある.

速さ: 1000eV の炭素原子の速さを単位とする.

炭素の原子量は $12.011 (= 1.994 \times 10^{-23} \text{ g})$ であり, 上に述べた格子定数を考慮すると, 時間の単位は 1.94×10^{-15} 秒となる.

3.2.1 GGR-Part I

黒鉛型結晶における粒子の番号づけと粒子数の算定は斜交軸 $\vec{a}, \vec{b}, \vec{c}$ に沿って行う. 直交座標を x, y, z とすると, \vec{a} と \vec{c} 軸は x と z 軸にそれぞれ方向が一致する. \vec{b} 軸は (x, y) 面内にあるが, \vec{a} 軸と 120 度の角をなしている. ($\vec{a}, \vec{b}, \vec{c}$) 空間において, 原点を $(0, 0, 0)$ とし, 頂点を (IA, IB, IC) とする結晶を考える. これらの座標はすべて偶数にとり, $NA = IA/2, NB = IB/2, NC = IC/2$ とすると, Fig. 9 の原子記号のように3種類の配位において各粒子数は次のようになる.

- (1) $[\circ]$ $(NA+1) \cdot (NB+1) \cdot (2 \cdot NC+1)$,
- (2) $[\odot]$ $NA \cdot NB \cdot (NC+1)$,
- (3) $[\bullet]$ $NA \cdot NB \cdot NC$.

結局, $(IA \times IB \times IC)$ の結晶に含まれる原子数 N は次式で与えられる.

$$\begin{aligned} N = & (NA+1) \cdot (NB+1) \cdot (2 \cdot NC+1) \\ & + NA \cdot NB \cdot (NC+1) + NA \cdot NB \cdot NC - NV + NR, \end{aligned} \quad (3.11)$$

ここで, NV は空孔の数で, NR は格子間原子の数である.

次に $(IA \times IB \times IC)$ の大きさの完全な黒鉛型結晶を設

定する。IA, IB, IC を偶数とし、原子の斜交座標を (NX, NY, NZ) と書くと原子位置は

$$0 \leq NX \leq IA, \quad 0 \leq NY \leq IB, \quad 0 \leq NZ \leq IC, \quad (3.12)$$

のように制限される。一方、完全な黒鉛型結晶における原子の位置を直交座標系 (x, y, z) で表わすと以下のようになる。第1種の原子の場合は各Z層にあって、

$$\begin{pmatrix} x \\ y \\ z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 & -1/2 & 0 \\ 0 & \sqrt{3}/2 & 0 \\ 0 & 0 & C \end{pmatrix} \begin{pmatrix} NX \\ NY \\ NZ \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} \text{ or } \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ C \end{pmatrix}, \quad (3.13)$$

である。第2種の原子の場合は偶数のZ層にあって、

$$\begin{pmatrix} x \\ y \\ z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 & -1/2 & 0 \\ 0 & \sqrt{3}/2 & 0 \\ 0 & 0 & C \end{pmatrix} \begin{pmatrix} NX \\ NY \\ NZ \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} 1 \\ 1/\sqrt{3} \\ 0 \end{pmatrix}, \quad (3.14)$$

である。第3種の原子の場合は奇数のZ層にあって、

$$\begin{pmatrix} x \\ y \\ z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 & -1/2 & 0 \\ 0 & \sqrt{3}/2 & 0 \\ 0 & 0 & C \end{pmatrix} \begin{pmatrix} NX \\ NY \\ NZ \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} 0 \\ 2/\sqrt{3} \\ C \end{pmatrix}, \quad (3.15)$$

である。ここで、 $C=3.348\text{\AA}$ は面と面の間の距離である。

次に斜交軸 $\vec{a}, \vec{b}, \vec{c}$ で張られた結晶片の表面の扱いについて述べる。この結晶片の (x, y) 面は平行四辺形で、他の面は長方形であるが、立方晶系の場合と同様に扱うことができる。各粒子に対する境界タイプ M は次のように定義される。

$$M = 9 \cdot \alpha_a + 3 \cdot \alpha_b + \alpha_c, \quad (3.16)$$

ここで、 $\alpha_i (i=a, b, c)$ は各斜交軸における原子の表面パラメータであって次のように定義する。

$$\left. \begin{aligned} \alpha_i &= 0: \text{中間にあり,} \\ &= 1: \text{左端(原点)にあり,} \\ &= 2: \text{右端にあり.} \end{aligned} \right\} \quad (3.17)$$

この α_i の値は、例えば \vec{a} 軸では次のように計算される。

$$\alpha_a = 2 \cdot \left[\frac{NX + IA}{2 \cdot IA} \right] + \left[\frac{IA - NX + 1}{IA} \right], \quad (3.18)$$

ここで、 $[]$ は整数部のみを表す。他の軸についても (3.17) と同様に表現できる。従って、境界タイプは結晶内部に対する指標 0 を除いて 26 種に分類される。表面からもう一層内側の第2表面の原子についても同様な手法で境界タイプを分類し、第1表面と区別するため負号をつけて表わす。この境界タイプの分類に従って、表面の原子を安定させるための表面力を設定する。表面力としては定数力、スプリング力及び粘性力である。黒鉛の場合はZ方向の各層が互にずれており、Z座標の偶奇により表面力が異なっているため、Z座標の偶奇に従って2種

類の表面力を設定する。

次に相互作用する相手を早く見つける検索箱の手法を説明する。この検索においても斜交座標 $\vec{a}, \vec{b}, \vec{c}$ を用いるが、直交座標への変換においては (3.12), (3.13) および (3.14) のように3種類に分ける事は不便である。そこで注目原子の入っている検索箱の周辺を検索する時に、上の変換式の右辺の定数ベクトルの相違を覆う位に広く検索する事にすればこれらの定数ベクトルを無視することが可能で1種類の変換ですませる事ができる。

斜交座標で定義された結晶を単位検索箱で覆う。単位検索箱は斜交座標 $(\vec{a}, \vec{b}, \vec{c})$ において定義される単位斜方体である (\vec{a}, \vec{b} 方向は長さ a であり、 \vec{c} 方向は長さ c である)。この単位斜方体で覆う範囲は、斜交座標を実数 (X, Y, Z) で表わす時、次のようになる。

$$\left. \begin{aligned} -0.5 \leq X < IA + 0.5, \\ -0.5 \leq Y < IB + 0.5, \\ -0.5 \leq Z < IC + 0.5, \end{aligned} \right\} \quad (3.19)$$

今、ある原子が直交座標で (x, y, z) にある時、次のような変換により斜交座標 (k_1, k_2, k_3) に写像される。

$$\begin{pmatrix} k_1 \\ k_2 \\ k_3 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 & 1/2 & 0 \\ 0 & \sqrt{3}/2 & 0 \\ 0 & 0 & C \end{pmatrix}^{-1} \begin{pmatrix} x \\ y \\ z \end{pmatrix}. \quad (3.20)$$

この原子は次のように定義される番号 J を持った検索箱に収納される。

$$J = 1 + [k_1 + 0.5] + \alpha[k_2 + 0.5] + \beta[k_3 + 0.5], \quad (3.21)$$

ここで $[]$ は整数部分を表し、 $\alpha = IA + 1$, $\beta = \alpha \cdot (IB + 1)$ である。上の逆変換 (3.19) では (3.12) ~ (3.14) の変換での定数ベクトルが省かれているので、番号 J の検索箱の実際の位置は隣接した検索箱 2 個以内の誤差を生ずる。それで検索箱 J にある原子が相互作用する相手をさがすため、検索箱 J を中心に IK だけ離れた検索箱 J_n を次のように設定する。

$$J_n = J + IK. \quad (3.22)$$

そして IK を $\vec{a}, \vec{b}, \vec{c}$ の各方向共に -2 から 2 までを変化させて検索する。すなわち、J を中心に (5×5×5) の広い範囲までを検索して上の誤差の影響を受けないようにする。このようにして検索箱 J の近傍の原子番号をすべてリストする。原子の番号がわかれば、あらかじめその番号に対応してストアされた直交座標での原子の位置を得る事ができる。

近接した原子の直交座標が決まると、各粒子間の距離や結合角が決まり、相互作用が決まる。ポテンシャル関数の値やその微分値はすべてその変数の領域を 1000 個に均等に分割してテーブルで与える。六角形に配した面内の共有結合での伸長部分のポテンシャル関数 $V(r)$ はサブルーチン GR130 の中では $EE(1)$ で与えられてい

る。

$$EE(1) = D[\exp(-2\kappa(r-r_0)) - 2\exp(-\kappa(r-r_0))], \quad (3.23)$$

ここで、 $r_0 = 2/\sqrt{3}$ ($|\vec{a}|$ 単位)であり、 D と κ はパラメータである。共有結合の変角部分のポテンシャル関数 $\phi(\theta)$ は次の $EE(2)$ で与えられ、

$$EE(2) = 1 - \eta \cdot (\theta - \theta_0)^2, \quad (3.24)$$

ここで、 θ_0 は平衡角120度であり、 η は変角力を表わす定数である。異った面にある原子間においてはファン・デル・ワールス力が働くが、これはサブルーチン GR130 で $EE(3)$ として扱われている。 $E(i)$, $i = 1, 2, 3$ は各ポテンシャル関数の微分値を表わす。なお、結晶格子中の空孔周辺の原子間の相互作用を表わす第4のポテンシャル関数はプログラム上では使用頻度が少ないので、Part IIのサブルーチン GR247A において直接に組み込まれている。

動力学計算の初期条件を作成するための諸データはサブルーチン GR110 から入力する。それらは、結晶の大きさ、その中に含まれる空孔の数と位置、格子間原子の数と位置、ポテンシャル関数の作用半径の最小と最大値、時間ステップ幅、表面力、初期速度を与える粒子の数とその位置および速度である。これらのデータに基づいて動力学の計算に必要なデータがサブルーチン GR140 でファイル F18 に書かれて Part II への入力となる。Part I の計算の流れは Fig. 11 に示す。

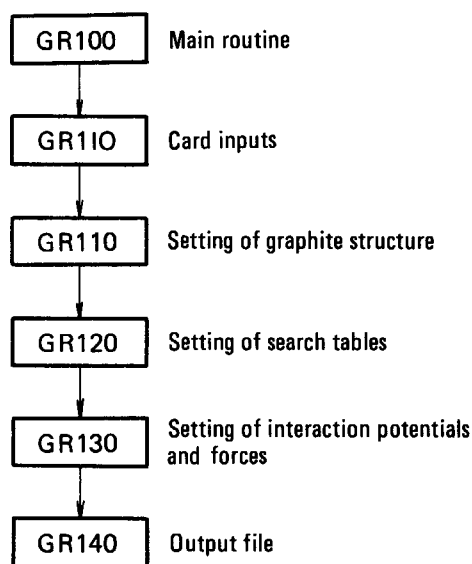


Fig. 11 Flow chart of the Part I of the GGR code.

3.2.2 GGR-Part II

Part II では結晶を構成する原子の運動方程式を解き、各原子の位置を時間を追って計算すると共に、全エネルギー等も計算する。計算の流れは基本的にはダイヤモンド型結晶の場合と同じであるが Fig. 12 に示したようになり合理化されている。

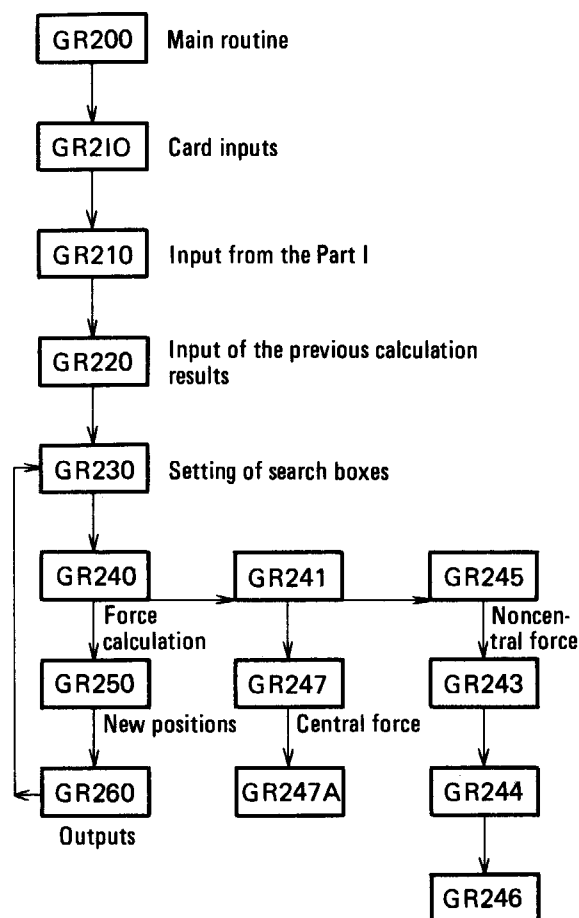


Fig. 12 Flow chart of the Part II of the GGR code.

エレメント GR 200 がメイン・ルーチンであり全体を統御する。各時間ステップ毎に全運動エネルギー、全ポテンシャルエネルギー、各種の損失エネルギー、全エネルギー、それに前ステップとの間の誤差エネルギー(DISCER)を計算する、また、誤差があらかじめ入力した許容量(TOL)を越えていないかを判定する。各ステップ毎に計算時間を新たに設定し、また入力に従って時間ステップ幅の変更を行う。

サブルーチン GR210 はカード入力のためのルーチンであり、次節で説明する。サブルーチン GR210 は Part I で作成されたデータをファイル F18 より読み込む。入力の指示により出力ファイルを F19 とする時は、F18 のデータは F19 に収納される。

サブルーチン GR220 は、継続計算の場合に以前の動力学計算の最終結果を読み込み、新しい計算の初期条件に転換する。

GR230 から GR260 までの各サブルーチンはループを形成し、各時間ステップ毎に通過する。GR230 は先に説明した検索箱の手法を用いるために、各粒子を箱に詰めるためのルーチンである。GR240 は、粒子の相互作用による各粒子に働く力を計算する諸ルーチン(GR241 等の 240 番代の番号の付いた 7 個のサブルーチン)の統括を行うと共に、それらの力と表面力による各原子の変位量

($VX(I, J)$, $J=1, 3$)を計算する. GR250 は, この変位量から各原子の新しい空間座標を算出すると共に, 運動エネルギーを計算する. 更に, 位置エネルギーと表面のスプリング・エネルギーや粘性エネルギーを全部集計して, 全エネルギーについて前回の値と比較し誤差を計算する. また, 入力指示により計算の収束を加速するためのクエンチングを行う. GR260 は, 各時間ステップのすべての計算結果を指示に従ってファイルF18かF19へ出力する. 以上が基本的な流れである.

GR241 は各粒子に働く力を計算するルーチンの中心となる. 3種類の力を設定したが, それらを原子間の距離だけで区別して計算する手法を説明する. 先ず, 空孔がある場合の空孔周辺の原子間に働く力は外部から原子の番号が指定され, GR247A で別個に計算されるので区別できる. 問題は, 異った層の原子間に働く長距離力と同じ層の中の原子間に働く共有結合の短距離力の区別の仕方である. 先に, 相互作用の相手を索す検索箱が(5×5×5)の大きさにとったが, これは層の面内では, ($a/2$)×2.5=3.075Åの範囲まで相手をさがす事を意味する. ところが \vec{c} 方向の層間の距離が 3.35Å であり, 長距離力の中心力の相互作用範囲の最小値を 3.1Å 位で切っておけば, 同一の層内の原子が中心力相互作用で結ばれる事はない. 従って, 検索箱により見付けた相手のうち, 2.5Å 以上離れているものは中心力により, それより近いものは非中心力により相互作用するように設定する事により完全に区別できる.

中心力相互作用は GR247 で計算し, 作用・反作用の法則によりすべての粒子の組み合わせの半分だけで計算は終る. 非中心力相互作用は, GR245, GR243, GR244 および GR246 で計算する. すなわち, 結合角は GR243 で, 位置エネルギーは GR244 で, そして各粒子に働く力を GR245 と GR246 で計算する.

GGR の Part III はプロットのためのルーチンであり, Part II で計算された粒子の軌道が X-Y 面に投影されて作図される. 詳しくは例題で示す.

3.3 GGR コードの使用法

プログラム GGR の入力形式について以下に説明する. ポテンシャル関数とその微分関数はサブルーチン GR130 で与える. 空孔が生じた所の原子間に働くポテンシャル関数は GR247A で与える. これらの関数や係数を変更する時はサブルーチンを直接に変更するものとする.

以下, Part I の入力形式を示す.

データ 1. (9I5)

1. IPROB 問題識別番号.
2. MONTH 月.
3. KAY 日.
4. IEAR 年.
5. IA X 方向の結晶の大きさ ($a/2$ 単位).

6. IB Y 方向(X 軸より 120° の方向)の結晶の大きさ ($a/2$ 単位).
7. IC Z 方向の結晶の大きさ ($c/2$ 単位).
8. NV 結晶に含まれている空孔の数.
9. NR 結晶に含まれている格子間原子の数.

データ 2. (3I5) NV 枚

1. INV(1,1) 第 1 空孔の X 座標 ($a/2$ 単位).
2. INV(1,2) 第 1 空孔の Y 座標 ($a/2$ 単位).
3. INV(1,3) 第 1 空孔の Z 座標 ($c/2$ 単位).

NV 枚くり返す.

データ 3. (3D10.4) NR 枚

X(N-NR+1,I), I=1,3

格子間原子の X, Y, Z 座標(3方向とも $a/2$ 単位), NR 枚繰り返す.

データ 4. (6F10.4) 2枚

1. RMIN(1) 共有結合伸張力のテーブル作成における結合距離の最小値.
2. RMIN(2) 共有結合変角力のテーブル作成における結合角の最小値.
3. RMIN(3) 金属結合力のテーブル作成における結合距離の最小値.
4. RMAX(1) 上記第一項の最大値.
5. RMAX(2) 上記第二項の最大値.
6. RMAX(3) 上記第三項の最大値.

2枚目の(A1(I), B1(I), I=1, 2, 3)はポテンシャル関数の定数であるが未使用. カードは必要.

データ 5. (10.4) 1枚

1. DT 計算の時間ステップ幅.

データ 6. (9F8.4) 104 枚

DO 10 I=1, M

10. READ(5, x)(A(I, J, 1), B(I, J, 1), C(I, J, 1), J=1, 3)

A(I, J, 1) 第 1 層 I 種原子に働く J 方向の定数の力 1 (J は X, Y, Z に対応し, 力 1 は偶数 Z の層を示す).

B(I, J, 1) 第 1 層 I 種原子に働く J 方向の弾性定数 1.

C(I, J, 1) 第 1 層 I 種原子に働く J 方向の粘性定数 1.

DO 11 I=1, M

11. READ(5, x)(A(I, J, 2), B(I, J, 2), C(I, J, 2), J=1, 3)

A(I, J, 2) 第 1 層 I 種原子に働く J 方向の定数の力 2 (力 2 は奇数 Z の層を示す).

B(I, J, 2) 第 1 層 I 種原子に働く J 方向の弾性定数 2.

C(I, J, 2) 第 1 層 I 種原子に働く J 方向の粘性定数 2.

DO 12 I=1, M

12. READ(5, x)(A2(I, J, 1), B2(I, J, 1), C2(I, J, 1).

- J=1, 3)
 A2(I, J, 1) 第2層I種原子に働くJ方向の定数の力1.
 B2(I, J, 1) 第2層I種原子に働くJ方向の弾性定数1.
 C2(I, J, 1) 第2層I種原子に働くJ方向の粘性定数1.
 DO 13 I=1, M
 13. READ(5, x)(A2(I, J, 2), B2(I, J, 2), C2(I, J, 2), J=1, 3)
 A2(I, J, 2) 第2層I種原子に働くJ方向の定数の力2.
 B2(I, J, 2) 第2層I種原子に働くJ方向の弾性定数2.
 C2(I, J, 2) 第2層I種原子に働くJ方向の粘性定数2.

データ 7. (I5) 1枚

1. MOV 初速を与える原子の数(≤ 100).

データ 8. (3D10.4, 3F10.4) MOV 枚

1. XM(1) 初速を与える原子の x 座標.
 2. XM(2) " " y 座標.
 3. XM(3) " " z 座標.
 (座標は直角座標で与え 0.1 以内の幅で同定する).
 4. D(1) x 方向の速度.
 5. D(2) y 方向の速度.
 6. D(3) z 方向の速度.
 [D(1)**2+D(2)**2+D(3)**2]*1000 が eV 単位になる.

次に Part II に対する入力形式を示す.

データ 1. (7I5) 1枚

1. IIFLG(1) 誤差が TOL を越えた時に,
 =0; 前のステップに戻りやり直す.
 =1; そのまま終了する.
 2. IIFLG(2) 出力ファイルの変更の指示.
 =0; 入力と同じ F18 へ出力する.
 =1; F19 へ出力する.
 3. IIFLG(3) クエンチング機能を働かすか否か.
 =0; 働かさない.
 =1; 働かす.
 4. IIFLG(4) 相互作用の微分の方法.
 =0; 解析的方法.
 =1; 数値微分法 I (未使用).
 =2; 数値微分法 II (未使用).
 5. IIFLG(5) 継続計算の出力において, 既存のレコードを廃棄するか否か.
 =0; 廃棄しない.
 =1; 廃棄する.
 6. IIFLG(6) ファイルへのシミュレーション・データの出力インターバル(≥ 1).

7. IIFLG(7) 表面の原子を固定する指示.
 =0; 固定しない.
 =1; 固定する.

データ 2. (F10.4) 1枚

1. TOL 各時間ステップにおいて許されるエネルギー誤差.

データ 3. (6F10.4) 2枚

1. TT(1) 初期設定の DT を変更する時刻.
 2. DTN(1) 新しい時間ステップ幅. 零なら終了.
 3. TT(2) DTN(1) を変更する時刻.
 4. DTN(2) 新しい時間ステップ幅. 零なら終了. TT(6), DTN(6) まで全部入力する. 不要な部分は零を入力する.

データ 4. (I5) 1枚

1. KK ダングリング・ボンド同志を結ぶ新しい結合手の数.

データ 5. (2I5) KK 枚

1. III1 新しい結合手を組む原子の粒子番号.
 2. III4 III1 の対となる原子の粒子番号.

データ 6. (I5, 6D10.3) 1枚

1. N 簡略計算において省略しない計算ステップ回数. N=1 なら簡略計算を行わない.
 2. X1 簡略計算しない領域の x の最小値.
 3. Y1 " y "
 4. Z1 " z "
 5. X2 簡略計算しない領域の x の最大値.
 6. Y2 " y "
 7. Z2 " z "

(計算簡略の機能は部分的(GR245)にしかないので効果はまだ小さい).

次に Part III に対する入力形式を示す.

データ 1. (リストダイレクト文で入力)

1. NT データ・ファイルの処理対象となるブロック数(ファイル中の全ブロック数より大きい値が指定される時, 全ブロックが処理される).
 2. ESP 移動距離の判定の最小値(この値より移動の大きな原子がプロットされる. $a/2$ 単位).
 3. ZS プロットする Z スライスの最小値($a/2$).
 " " 最大値($a/2$).
 5. XE 画面の X 軸長(mm).
 6. YE 画面の Y 軸長(mm).

上記パラメーターを変えたプロットを必要とする場合は, 上記カードを必要なだけ繰り返す.

3.4 GGR コードによる計算例

このコードによりまだ体系的なシミュレーションがなされた事がないので詳しい計算例を示す事はできない。黒鉛は炉材料としてよく使われ、物性や照射損傷の実験的研究^{26, 27, 28)}がかなり進んでいるが、GGR コードによりどのような問題が扱えるか、およびその限界について考えておく必要がある。最初の問題はポテンシャル関数の決め方である。従来から黒鉛の比熱や格子振動の研究のために弾性定数から推定されたポテンシャル関数がいくつかある。当然これらの関数を利用することができる。しかしながら、その基本とした弾性定数やその異方性は広範囲の格子歪みから定められたものであり、分子

動力学的な利用にはかならずしも十分ではない。歪みの小さい平衡配位の近傍ではよい近似と考えられる。GGR コードによりすぐ計算できる問題は、結晶の格子振動に関する事、空孔や空孔対および格子間原子の形成による格子の歪みやエネルギーに関する事、および PKA の入射によるはじき出しカスケードに関する事などがある。これらの問題について少し説明する。

Fig.13 および Fig.14 は GGR コードの機能テストとして PKA によるカスケード衝突をシミュレートしたものである。体系は(10×10×4)であり、図のような平行四辺形が5層になっている。ポテンシャル関数としては、共有結合の伸張力を表現する(3.22)式において、 $D=0.4 \text{ eV}$ および $\alpha=4.7 \text{ \AA}^{-1}$ を、また変角力を表現する(3.23)

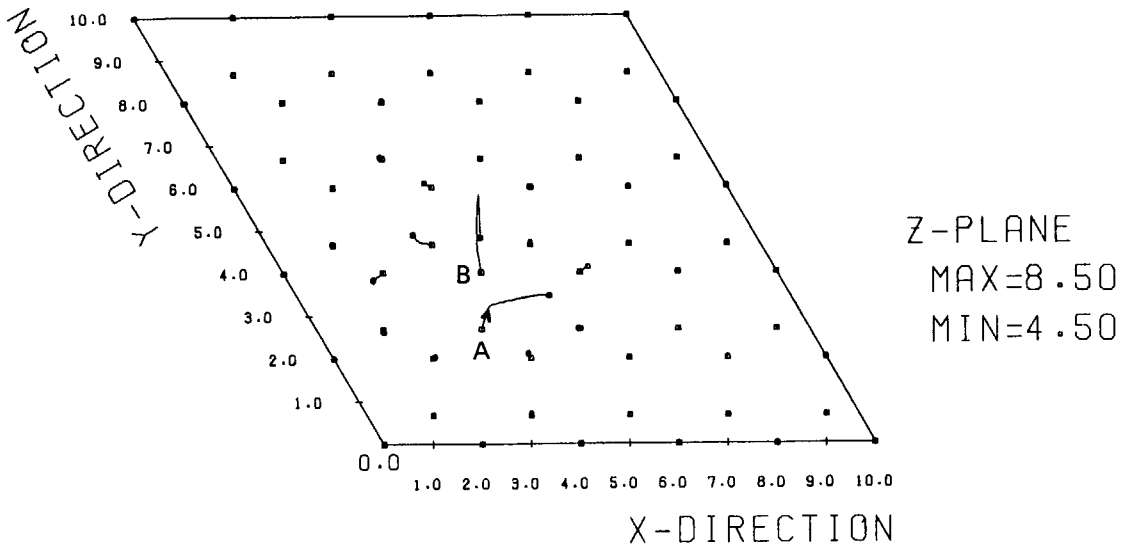


Fig. 13 Multiple collision process below the displacement threshold energy. The atom A starts with energy 35eV in the direction of <5, 18, 1>.

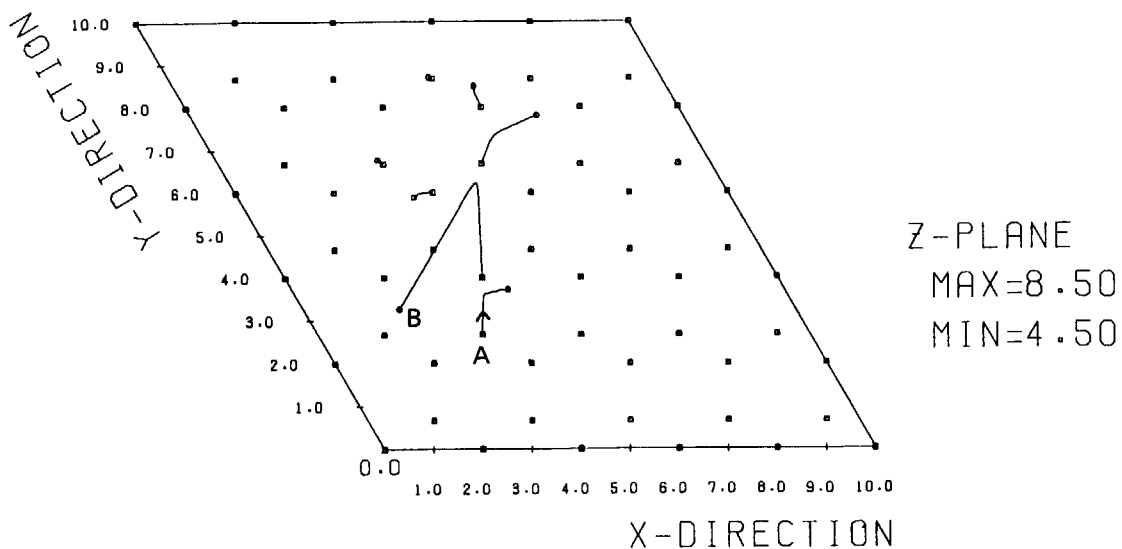


Fig. 14 Multiple collision process above the displacement threshold energy. The atom A starts with energy 160eV in the direction of <1, 40, 1>.

式において、 $a=0.05$ を用いた。なお計算は収束するまでは行っていないが、その理由は下で述べる。

Fig.13 は図中の原子 A に 35 eV の運動エネルギーを与えた場合である。方向は直角座標で $\langle 5, 18, 1 \rangle$ である。すべての原子は元の位置へもどるように見える。原子 A と B は最近接にあつて、フォーカス衝突のような様子を示している。**Fig.14** はフォーカス衝突を調べるために、原子 A に 160 eV のエネルギーを直角座標で $\langle 1, 40, 1 \rangle$ の方向、すなわちほぼ面内に x 軸に垂直に与えてみた場合である。原子 B は A から大きなエネルギーを受け取ってはじき出され、六角形を縦断して次の衝突へと向う。そして、六角形の中の長い飛行過程でフォーカスの位置よりずれると共に、後からの支えのない孤立した衝突を行う。一方、衝突相手の原子はすぐ後から別の原子に支られているから、B 原子は後方散乱を受ける。**Fig.14** の B 原子は面の下側へ後方散乱を受けて、下の層へと向っている。原子 A は B の跡へ入り、A の位置は空孔となる。簡単な例題であるが、層内においてはほとんどフォーカス衝突が起きず、後方散乱が生ずるとい

立方晶系では見られない特徴を示している。また、面内の原子は相互に固く結合しているので、カスケードの原子は面外へ散乱され、次の面へ移って行くという傾向が見受けられる。

以上のカスケード計算はエネルギーの大きな部分のみが実行されてまだ収束していない。すなわち、カスケードの各原子の安定な位置が決められていない。これはエネルギーの小さな PKA がある格子原子に接近した時、非中心力のポテンシャル関数の芯部の反撥によりはね返されて格子間原子となるか、あるいは相手をはじき出して共有結合を奪うかという判定が接近距離だけではできないためである。これにはエネルギーの判定が必要と考えられ、その方法について検討中である。すでに生成した空孔や格子間原子については、その欠陥部のボンドの組み合わせ方を固定して扱って良いから上記のような困難は生じない。これらに関する計算は別に報告する。また、完全および欠陥のある結晶における格子振動に対する非中心力の効果については興味ある問題であろう。

4. ま と め

ダイヤモンド型結晶と黒鉛型結晶における照射損傷をシミュレートする分子動力学コード DGR と GGR を開発した。これらのコードの特徴は共有結合による非中心相互作用を扱えるようにした事である。面心立方晶系や体心立方において中心力相互作用のみを扱う GRAPE コードが大きな成果をあげる事ができたのは、これらの結晶の対称性がよいために、結晶内部に欠陥があっても適当な表面力の支えにより安定した固有な配位を得ることができたためである。ダイヤモンド型結晶の場合は、設定した空孔は中心力だけでは体系の大きさや表面力のような外部から適当に与えた量に依存したものにしかならない事は第 2 章で詳しく議論した通りである。黒鉛のように対称性のよくない結晶でも同様の事が言えよう。こうして非中心力を扱う手法の導入によって、ダイヤモンド晶系や黒鉛晶系での分子動力学的シミュレーションが始めて可能になったと言っても過言ではない。共有結合の効果を取り入れようとした最初の目的は、単に中心力だけを考慮した計算の精度を少しでも上げようとする事であったが、空孔の形成エネルギーを計算して行く過程で、意外な事実がわかった。それは上に述べたようにダイヤモンド型結晶では空孔は中心力相互作用だけでは安定せず、非中心力相互作用によって安定しているという事であった。この事は単に形成エネルギーが系の大きさや表面の設定具合によらずに精度よく求めうるというだけでなく、分子動力学的手法に新しい側面をひらいたとも言えよう。こうして、非中心力を考慮した分子動力学手法を黒鉛型結晶に対しても適用した。それと同時に、これまで面心立方晶系と体心立方晶系に対しては完全だと思われてきた GRAPE コードについてその限界について考え直すことが必要となり、2.4 節で少し議論した。しかし、先にみたようにこれらの晶系では非中心力の効果は補助的なものであり、従来の手法で定量的にもかな

り良い結果を得ている事はよく知られているところである。³⁰⁾非中心力の効果は、欠陥の周辺部の原子配位の様子や転位等の大きな欠陥の安定性などに現れるものと考えられる。この面心および体心立方晶系に対しても非中心力を扱うことのできるコードの開発を進めたが、その意義がダイヤモンド型結晶の場合とは若干異っており、報告は別に行う予定である。

ここでの非中心力相互作用の扱い方の限界についてまとめとめておく。共有結合に対するポテンシャル関数はボンドの伸張部分と変分部分が常に変数分離できると仮定したが、これは $(\delta r)^3$ を無視できる限りにおいて正しい近似である。すなわち、歪みが小さい時に正しい近似である。ボンドが曲って切断に至るカスケード過程に対しては当然よくない近似と言えよう。しかし、黒鉛の例題に示したように、PKA のエネルギーが結合エネルギーに比軽して大きい時は中心力のみでよい近似となると考えられる。困難は PKA のエネルギーが小さい場合にボンドが切断されるかあるいは PKA がはじき返されるかの限界を決定しなければならない時に起る。これは上に述べたポテンシャル関数の近似の限界の故であるばかりでなく、共有結合の相手を決めるのに距離の判定のみに依っている手法の限界でもある。このように低いエネルギーの PKA の問題、すなわち、はじき出しの閾エネルギーの計算のためには更に工夫が必要と考えられる。格子間原子の場合も上と同様の理由のため、共有結合の格子中で特別に扱わねばならないし、そのポテンシャル関数も別に設定しなければならない。シリコン中の格子間原子は極低温で移動するという報告²⁵⁾もあるが、今後の問題である。なお、計算時間は非中心力の導入により大幅に長くなった。計算の効率的な実行のためには的確な見通しと忍耐が必要である。

謝 辞

本研究に対しては、元原子炉数値解析研究室朝岡卓見室長(現原子炉工学部長)、固体物理第 2 研究室岩田忠夫室長、同室の横田光史氏の方々から御指導、あるいは有益な御支援をしていただいた。原子力コード開発整備専門部会(昭和 57 年度)の諸委員には御討議をお願いした。

鈴木秀次東京大学教授にはポテンシャル関数などで貴重な御助言をいただいた。ここに謝意を表します。プログラムの作成は大興電子(株)の鈴木考利氏と石崎昇氏の御尽力によった。原稿の推敲においても関係者の御尽力を賜わった。ここで、合わせて謝意を表します。

参 考 文 献

- 1) Larsen A. : "GRAPE, A Computer Code for Classical Many-Body Problems in Radiation Damage," BNL-7979 (1964).
- 2) Taji Y. et al. : "SUPERTOG-JR, A Code Generating Transport Group Constants, Energy Deposition Coefficients and Atomic Displacement Constants with ENDF/B," JAERI-M6935 (1977).
- 3) Mack J.M. : "Computational Methods of Electron/Photon Transport," Advances in Reactor Computations Vol.2, p.595, ISBN: 0-89448-111-8 (1983).
- 4) Berger M.J. and Seltzer S.M. : "ETRAN, Monte Carlo Code System for Electron and Photon Transport through Extended Media," CCC-107, RSIC (1968).
- 5) Lindhard J. et al. : Kgl. Danske Vidensk. Selsk. mat.-fys. Medd., No.14, 33 (1963).
- 6) Brice D.K. : "Ion Implantation Range and Energy Deposition Codes COREL, RASE4 and DAMG2," SAND75-0622 (1975).
- 7) Winterbon K.B. : Ion Implantation Range and Energy Deposition Distributions, Vol.2 (Plenum, New York, 1975).
- 8) Besco D.G. and Baumgardt N.R. : "CASCADE and CLUSTER," GEMP-356 (1965).
- 9) Robinson M.T. and Torren I.M. : "Computer Simulation of Atomic-Displacement Cascades in Solids in the Binary-Collision Approximation," Phys. Rev. B, **9**, 5008 (1974).
- 10) Besco D.G. : "Computer Simulation of Point Defects Annealing in Metals," GEMP-644 (1967).
- 11) Asaoka T., Taji Y. et al. : "Computer Codes for Simulating Atomic-Displacement Cascades in Solids Subjected to Irradiation," JAERI-M8178 (1979).
- 12) Yoshida M. : "Distribution of Interstitials and Vacancies Produced by an Incident Fast Neutron," J. Phys. Soc. Jpn, **16**, 44 (1961).
- 13) Gibson J.B. et al. : "Dynamics of Radiation Damage," Phys. Rev., **120**, 129 (1960).
- 14) Erginsoy C. et al. : "Dynamics of Radiation Damage in a Body-Centered Cubic Lattice," Phys. Rev., **133**, A595 (1964); "Dynamics of Radiation Damage in a Body-Centered Cubic Lattices II. Higher Energies," Phys. Rev., **139**, A118 (1965).
- 15) Yamaguchi M. : "Computer Simulation Techniques for the Study of Dislocation Properties," Bulletin of the Jpn Institu. of Metals, **15**, 427 (1976).
- 16) Born M. : Proc. Cambridge Phyl. Soc., **36**, 160 (1940).
- 17) Bennet C.H. et al. : "On the Stability of Vacancy and Vacancy Clusters in Amorphous Solids," Philosoph. Mag. A, **40**, 485 (1979).
- 18) Koizumi H. and Ninomiya T. : "Dislocation Model of Amorphous Germanium," J. Phys. Soc. Jpn., **44**, 898 (1978).
- 19) Phillips J.C. : "Bonds and Bands in Semiconductors," Academic Press (1973), Trans. into Japanese by Komatsubara K., Yoshioka-shoten (1976).
- 20) Keating P.N. : "Effect of Invariance Requirements on the Elastic Strain Energy of Crystals with Application to the Diamond Structure," Phys. Rev., **145**, 637 (1966); *ibid.*, **149**, 674 (1966).
- 21) Taji Y. : "Stability of Vacancy Due to Noncentral Force Interactions in Diamond Structural Crystals," J. Phys. Soc. Jpn., **48**, 1237 (1980).
- 22) Seegar A. and Swanson M.L. : "Lattice Defects in Semiconductors," Univ. of Tokyo Press and Pennsylvania State Univ. Press, p.93 (1968).
- 23) Hashiguchi R.R. : "Lattice Defects in Semiconductors," *ibid.*, p.131 (1968).
- 24) Steinhardt P. et al. : "Relaxed Continuous Random Network Models," J. Non-Crystal. Solids, **15**, 199 (1974).
- 25) Ishino S. : "Point Defects in Silicon and Germanium," Oyo Butsuri, **46**, 458 (1977).
- 26) Iwata T. et al. : "Atomic Displacements by Electron Irradiation in Pyrolytic Graphite," J. Phys. Soc. Jpn., **31**, 1761 (1971).
- 27) Iwata T. : "Atomic Displacements by Irradiation in Graphite," J. Ato. Ene. Soc. Jpn., **5**, 231 (1974).
- 28) Kelly B.T. : "Physics of Graphite," Applied Science Publishers (1981).
- 29) Taji Y. : "Report of Workshop on Computer Simulation of Atomic Collision Processes in Solids," chap.6, JAERI-M 83-226 (1984).
- 30) Yokota T., Taji Y. and Iwata T. : *ibid.*, chap.5, JAERI-M 83-226 (1984).
- 31) Beeler J.R. and Jr., Besco D.G. : "Knock-on Cascades and Point-Defect Configuration in Binary Materials," in "Radiation Damage in Solids, Vol.1," IAEA (1962).
- 32) Robinson M.T. and Oen O.S. : "Computer Studies of the Slowing Down of Energetic Atoms in Crystals," Phys. Rev., **132**, 2385 (1963).

付 録

A.1 運動方程式の階差化

運動方程式を数値的に解くために階差化を行う。非中心力相互作用を表わす多体間ポテンシャルを扱うにしても、それらの伝達速度が無限である限り、Gibson et al.¹³⁾の中心力の場合と同じ手法を用いる事が出来る。

各自由度 i の空間座標 $x_i(t)$ と早さ $v_i(t)$ の時間微分を有限な時間幅 Δt 用いて次のように近似する。但し、差分の中央を \dot{v}_i は t に、 \dot{x}_i は $t + \Delta t/2$ にとる。

$$\dot{v}_i(t) \cong [v_i(t + \Delta t/2) - v_i(t - \Delta t/2)] / \Delta t, \quad (\text{A.1})$$

$$\dot{x}_i(t + \Delta t/2) \cong [x_i(t + \Delta t) - x_i(t)] / \Delta t. \quad (\text{A.2})$$

本文の(2.15)式は(A.1)式を用いると次のようになる。力には散逸力もあるものとする。

$$v_i(t + \Delta t/2) = v_i(t - \Delta t/2) + \Delta t m^{-1} F_i(x_i(t), \dots, v_i(t - \Delta t/2)). \quad (\text{A.3})$$

方程式(A.2)を次のように書き直す。

$$x_i(t + \Delta t) = x_i(t) + \Delta t \cdot v_i(t + \Delta t/2). \quad (\text{A.4})$$

方程式(A.4)より $v_i(t - \Delta t/2)$ についての方程式を導出し、(A.3)式に代入すると

$$v_i(t + \Delta t/2) = [x_i(t) - x_i(t - \Delta t)] / \Delta t + \Delta t \cdot acc_i(t), \quad (\text{A.5})$$

を得る。ここで acc_i は $m^{-1} F_i$ を表わす。方程式(A.5)を(A.4)に代入すると

$$x_i(t + \Delta t) = 2x_i(t) - x_i(t - \Delta t) + (\Delta t)^2 acc_i(t), \quad (\text{A.6})$$

これは運動の積分である。新しい量 $Z_i(t + \Delta t)$ を

$$Z_i(t + \Delta t) = 3x_i(t) - 2x_i(t - \Delta t) + (\Delta t)^2 acc_i(t), \quad (\text{A.7})$$

と定義し、(A.6)式に代入すると

$$x_i(t + \Delta t) = [x_i(t) + Z_i(t + \Delta t)] / 2, \quad (\text{A.8})$$

となる。方程式(A.8)を $Z_i(t)$ について解くと

$$Z_i(t) = 2x_i(t) - x_i(t - \Delta t), \quad (\text{A.9})$$

となる。方程式(A.9)を(A.7)式に代入すると

$$Z_i(t + \Delta t) = 2[(\Delta t)^2 acc_i(t) + Z_i(t)] - x_i(t), \quad (\text{A.10})$$

を得る。方程式(A.10)と(A.8)がプログラムの中で扱われる。

次に、(A.8)式を書き直すと

$$Z_i(t + \Delta t) - x_i(t + \Delta t) = x_i(t + \Delta t) - x_i(t), \quad (\text{A.11})$$

となり、(A.2)式に代入すると速度は

$$v_i(t + \Delta t/2) = [Z_i(t + \Delta t) - x_i(t + \Delta t)] / \Delta t, \quad (\text{A.12})$$

となる。運動エネルギーは(A.12)式より

$$(m/2)v_i^2(t + \Delta t/2) = (m/2)[Z_i(t + \Delta t) - x_i(t + \Delta t)]^2 / (\Delta t)^2, \quad (\text{A.13})$$

となる。

さらに、(A.4)式を2度用いると

$$v_i(t + \Delta t/2) + v_i(t - \Delta t/2) = [x_i(t + \Delta t) - x_i(t - \Delta t)] / \Delta t, \quad (\text{A.14})$$

を得て、(A.3)式の右辺第一項を左辺へ移した式とかけ合わせると、エネルギーのバランスについて

$$\begin{aligned} & (m/2)[v_i^2(t + \Delta t/2) - v_i^2(t - \Delta t/2)] \\ &= F_i(x_i(t), \dots, v_i(t - \Delta t/2)) \cdot [x_i(t + \Delta t) - x_i(t - \Delta t)] / 2, \end{aligned} \quad (\text{A.15})$$

を得る。

次に、全系のエネルギー・バランスについて記す。方程式(A.15)は、すべての粒子($i=1, \dots, N$)について、すべての時間ステップ $t = n\Delta t$ ($n=1, \dots, M$)で成り立つから、これらの和をとると、次のようなエネルギー保存則を得る。

$$K(T) - K(0) = -[\Phi(T) - \Phi(0)] - D(T), \quad (\text{A.16})$$

ここで、 $T = M\Delta t$ であり、 $K(T)$ は全運動エネルギーで次のように書ける。

$$K(T) = (m/2) \sum_{i=1}^N v_i^2(T + \Delta t/2). \quad (\text{A.17})$$

右辺の $[\Phi(T) - \Phi(0)]$ は保存場 F_i^c の働きであり

$$\begin{aligned} \Phi(T) - \Phi(0) &= \sum_{i=1}^N \sum_{n=1}^M F_i^c(x_i(n\Delta t), \dots, x_n(n\Delta t)) \\ &\quad \times [x_i(n\Delta t + \Delta t) - x_i(n\Delta t - \Delta t)] / 2 \\ &\xrightarrow{\Delta t \rightarrow 0} V(x_1(T), \dots) - V(x_1(0), \dots), \end{aligned} \quad (\text{A.18})$$

ここで F_i^c は原子間相互作用の他に格子を安定させるための定数の力やバネの力を含み, $F_i^c = -\partial V/\partial x_i$ とした. 方程式(A.16)の $D(T)$ は格子表面の粘性力 F_i^d による散逸エネルギーで次のようになる.

$$D(T) = -\sum_{i=1}^N \sum_{n=1}^M F_i^d (v_i(n\Delta t - \Delta t/2)) [x_i(n\Delta t + \Delta t) - x_i(n\Delta t - \Delta t)]/2. \quad (\text{A.19})$$

A.2 DGR コードのセットアップと入力

安定な空孔を得るための DGR の Part I と II のセットアップと入力形式を **Table A.1** に, その出力の一部を **Table A.2** に, そして原子配列を作図する DGR の Part III のセットアップと入力形式を **Table A.3** に示す.

A.3 GGR のセットアップと入力

はじき出しカスケードを計算するための GGR コードの Part I と II のセットアップと入力形式を **Table A.4** に, その出力の一部を **Table A.5** に, そして原子配列を作図する GGR の Part III のセットアップと入力形式を **Table A.6** に示す.

Table A.1 Card setup and inputs for part I and II of DGR to obtain stable vacancy

```

*****
***                               LIST OF USER JCL                               *
*****
*****
*** PART - I. ** DIAMOND ** RUNNING **
*****
//GRG01 EXEC FORTHE,
// SO='J1476.DGR1',
// A='SOURCE,AUTODBL(DBLPAD),ELM(*)'
*****
//GRL1 EXEC LKED,
// GRLIB=NO
//GG1G0 EXEC GO
*****
//FT05F001 DD DSN=J1476.DIA.DATA(GRTYPE11),
//          DISP=OLD
*****
//FT06F001 DD SYSOUT=*,
//          OUTLIM=0,HOLD=NO
*****
//FT18F001 DD DSN=J1476.ZGRAPE18.DATA,
//          DISP=(OLD,PASS)
*****
*** PART - II. ** DIAMOND ** RUNNING **
*****
//GRG02 EXEC FORTHE,
// SO='J1476.DGR2',
// A='SOURCE,AUTODBL(DBLPAD),ELM(*)'
*****
//GRL2 EXEC LKED,
// GRLIB=NO
//GR2G0 EXEC GO
*****
//FT05F001 DD DSN=J1476.DIA.DATA(GRTYPE21),
//          DISP=OLD
*****
//FT06F001 DD SYSOUT=*,
//          OUTLIM=0,HOLD=NO
*****
//FT18F001 DD DSN=J1476.ZGRAPE18.DATA,
//          DISP=OLD
*****
//FT19F001 DD DSN=J1476.ZGRAPE19.DATA,
//          DISP=OLD

```

1	8	20	1983	8	8	8	1	0	00000010
8	8	8							00000011
0.5000		0.3400		0.1000		1.8000		3.4800	10.0000
1.0000		1.0000		1.0000		1.0000		1.0000	1.0000
0.0200									00000040
0.0000		0.0000		0.0000		0.0000			00000050
0.0000		0.0000		0.0000		0.0000			00000051
0.0000		0.0000		0.0000		0.0000			00000052
0.0000		0.0000		0.0000		0.0000			00000053
0.0000		0.0000		0.0000		0.0000			00000054
0.0000		0.0000		0.0000		0.0000			00000055
0.0000		0.0000		0.0000		0.0000			00000056
0.0000		0.0000		0.0000		0.0000			00000057
0.0000		0.0000		0.0000		0.0000			00000058
0.0000		0.0000		0.0000		0.0000			00000059
0.0000		0.0000		0.0000		0.0000			00000060
0.0000		0.0000		0.0000		0.0000			00000061
0.0000		0.0000		0.0000		0.0000			00000062
0.0000		0.0000		0.0000		0.0000			00000063
0.0000		0.0000		0.0000		0.0000			00000064
0.0000		0.0000		0.0000		0.0000			00000065
0.0000		0.0000		0.0000		0.0000			00000066
0.0000		0.0000		0.0000		0.0000			00000067
0.0000		0.0000		0.0000		0.0000			00000068
0.0000		0.0000		0.0000		0.0000			00000069
0.0000		0.0000		0.0000		0.0000			00000070
0.0000		0.0000		0.0000		0.0000			00000071
0.0000		0.0000		0.0000		0.0000			00000072

Table A.1 continued

5

0.0000	0.0000	0.0000					00000183
0.0000	0.0000	0.0000					00000184
0.0000	0.0000	0.0000					00000185
0.0000	0.0000	0.0000					00000186
0.0000	0.0000	0.0000					00000187
0.0000	0.0000	0.0000					00000188
0.0000	0.0000	0.0000					00000189
0.0000	0.0000	0.0000					00000190
0.0000	0.0000	0.0000					00000191
0.0000	0.0000	0.0000					00000192
0.0000	0.0000	0.0000					00000193
0.0000	0.0000	0.0000					00000194
0.0000	0.0000	0.0000					00000195
0.0000	0.0000	0.0000					00000196
0.0000	0.0000	0.0000					00000197
0.0000	0.0000	0.0000					00000198
0.0000	0.0000	0.0000					00000199
0.0000	0.0000	0.0000					00000200
0.0000	0.0000	0.0000					00000201
0.0000	0.0000	0.0000					00000202
0.0000	0.0000	0.0000					00000203
0.0000	0.0000	0.0000					00000204
0.0000	0.0000	0.0000					00000205
0							00001090
.....*1.....*2.....*3.....*4.....*5.....*6.....*7.....00001110
0	1	1	1	0			00000010
10.							00000020
4.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	00000030
2							00000031
268	281						00000032
341	352						00000033
0							00000050
.....*1.....*2.....*3.....*4.....*5.....*6.....*7.....00000070

Table A.2 Parts of output prints from part I and II of DGR for the problem of **Table A.1**

```

IPROB = 1
DATE = 8 20 1983
IA = 8
IB = 8
IC = 8
NV = 1
NR = 0

INV = 8 8 8

RMIN = 0.5000 0.3400 0.1000
RMAX = 1.8000 3.4800 10.0000
A1,B1 = 1.0000 1.0000 1.0000 1.0000 1.0000 1.0000

DT = 0.0200
A,B,C = 0.0 0.0 0.0
A,B,C = 0.0 0.0 0.0
A,B,C = 0.0 0.0 0.0
A,B,C = 0.0 0.0 0.0
A,B,C = 0.0 0.0 0.0
A,B,C = 0.0 0.0 0.0
A,B,C = 0.0 0.0 0.0
A,B,C = 0.0 0.0 0.0
A,B,C = 0.0 0.0 0.0
A,B,C = 0.0 0.0 0.0

LSLT = 0 1 1 1 0 SENSE LIGHT(
TOL = 1.0000000D+01 TOLERANCE FO
TT = 4.0000000D+00 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0
DTN = 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0
COMBINE= 268 281
COMBINE= 341 352

BEGIN PROCESSING GRAPE 1 8 201983
0.0200000 0.0000055 -6128.5518683 0.0 0.0 -6128.5518628 0.0
0.0600000 0.0000716 -6128.5519066 0.0 0.0 -6128.5518350 -0.00
0.1000000 0.0002259 -6128.5519958 0.0 0.0 -6128.5517699 -0.00
0.1400000 0.0004682 -6128.5521360 0.0 0.0 -6128.5516678 -0.00
0.1800000 0.0007987 -6128.5523272 0.0 0.0 -6128.5515285 -0.00
0.2200000 0.0012172 -6128.5525693 0.0 0.0 -6128.5513521 -0.00
0.2600000 0.0017238 -6128.5528624 0.0 0.0 -6128.5511386 -0.00
0.3000000 0.0023184 -6128.5532065 0.0 0.0 -6128.5508882 -0.00
0.3400000 0.0030009 -6128.5536016 0.0 0.0 -6128.5506007 -0.00
0.3800000 0.0037713 -6128.5540475 0.0 0.0 -6128.5502762 -0.00
0.4200000 0.0046295 -6128.5545445 0.0 0.0 -6128.5499149 -0.00
0.4600000 0.0055755 -6128.5550923 0.0 0.0 -6128.5495168 -0.00
0.5000000 0.0066092 -6128.5556911 0.0 0.0 -6128.5490819 -0.00
0.5400000 0.0077305 -6128.5563408 0.0 0.0 -6128.5486103 -0.00
0.5800000 0.0089393 -6128.5570414 0.0 0.0 -6128.5481021 -0.00
0.6200000 0.0102354 -6128.5577922 0.0 0.0 -6128.5475568 -0.00
0.6600000 0.0116189 -6128.5585933 0.0 0.0 -6128.5469744 -0.00
0.7000000 0.0130895 -6128.5594451 0.0 0.0 -6128.5463555 -0.00
0.7400000 0.0146472 -6128.5603476 0.0 0.0 -6128.5457004 -0.00
0.7800000 0.0162918 -6128.5613008 0.0 0.0 -6128.5450089 -0.00
0.8200000 0.0180232 -6128.5623026 0.0 0.0 -6128.5442793 -0.00
0.8600000 0.0198413 -6128.5633549 0.0 0.0 -6128.5435136 -0.00
0.9000000 0.0217458 -6128.5644539 0.0 0.0 -6128.5427081 -0.00
0.9400000 0.0237367 -6128.5656028 0.0 0.0 -6128.5418661 -0.00
0.9800000 0.0258138 -6128.5668021 0.0 0.0 -6128.5409883 -0.00
1.0200000 0.0279768 -6128.5680511 0.0 0.0 -6128.5400743 -0.00
1.0600000 0.0302257 -6128.5693488 0.0 0.0 -6128.5391231 -0.00
    
```

Table A.3 Card setup and input for part III of
DGR to plot atom configuration

```

/*****
/** PART - III. ** DIAMOND ** RUNNING **
/*****
//GRG03 EXEC FORTHE,
//          SO='J1476.DGR3',
//          A='SOURCE,AUTO DBL(DBLPAD),ELM(*)'
/*****
//STEL EXEC LKED,GRLIB=PNL
//GRG0 EXEC GO
/*****
//FT05F001 DD *
5000 0.0 1.5 3.5 120.0 120.0
5000 0.0 3.6 5.5 120.0 120.0
5000 0.0 5.6 7.5 120.0 120.0
5000 0.0 7.6 9.5 120.0 120.0
0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0
/*
/*****
//FT06F001 DD SYSOUT=*,
//          OUTLIM=0,
//          HOLD=NO
/*****
//FT18F001 DD DSN=J1476.ZGRAPE18.DATA,
//          DCB=BFALN=F,
//          DISP=OLD
/*****
//          EXPAND GRNLP,LIM=0
/*****
++
//

```


Table A.4 continued

S

0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.000000000840
0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.000000000850
0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.000000000860
0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.000000000870
0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.000000000880
0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.000000000890
0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.000000000900
0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.000000000910
0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.000000000920
0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.000000000930
0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.000000000940
0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.000000000950
0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.000000000960
0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.000000000970
0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.000000000980
0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.000000000990
0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.000000001000
0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.000000001010
0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.000000001020
0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.000000001030
0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.000000001040
0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.000000001050
0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.000000001060
0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.000000001070
0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.000000001080
1								00001090
2.000D+00	2.309D+00	6.697D+00	0.0100	0.3000	0.0100			00001100
.....1.....*2.....*3.....*4.....*5.....*6.....*7.....*		00001110

 ** GRTYPE21 **

1	0	0	0	0	10	0		00000010
100.								00000020
20.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000		00000030
0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000		00000040
0								00000050
1-1.000D+02	-1.000D+02	-1.000D+02	1.000D+02	1.000D+02	1.000D+02	1.000D+02		00000060
.....1.....*2.....*3.....*4.....*5.....*6.....*7.....*		00000070

Table A.5 Parts of output prints from part I and II of GGR for the problem of **Table A.4**

```

IPROB = 1
DATE = 8 20 1983
IA = 10
IB = 10
IC = 4
NV = 0
NR = 0

RMIN = 0.7000 1.0472 2.5000
RMAX = 2.5000 3.1416 4.0000
A1 = 1.0000 1.0000 1.0000
B1 = 1.0000 1.0000 1.0000

DT = 0.0500
    
```

PROBLEM NO.
EXECUTION DA
SIZE OF CRYST

NUMBER OF VA
NUMBER OF RE

MINIMUM OF R
MAXIMUM OF R
CONSTANT IN

TIME STEP

5

DATA FOR GRAPHITE TYPE CRYSTAL
1 8 20 1983

PAGE

N	X	Y	Z	VX1	VX2	VX3
301	-0.3000Q+01	0.8660Q+01	0.1339Q+02	-0.3000Q+01	0.8660Q+01	0.1339Q+02
302	-0.1000Q+01	0.8660Q+01	0.1339Q+02	-0.1000Q+01	0.8660Q+01	0.1339Q+02
303	0.1000Q+01	0.8660Q+01	0.1339Q+02	0.1000Q+01	0.8660Q+01	0.1339Q+02
304	0.3000Q+01	0.8660Q+01	0.1339Q+02	0.3000Q+01	0.8660Q+01	0.1339Q+02
305	0.5000Q+01	0.8660Q+01	0.1339Q+02	0.5000Q+01	0.8660Q+01	0.1339Q+02

***** PROOF LIST OF GRAPHITE TYPE CRYSTAL *****

IIFLG = 1 0 0 0 0 10 0

TOL = 1.0000000D+02

TOLERANCE FO

TT = 2.0000D+01 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 TIME STEP (S)
DTN = 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 DELTA T (S)

KK = 0 NUMBER OF VA

```

N = 1
X1 = -0.1000Q+03 Y1 = -0.1000Q+03 Z1 = -0.1000Q+03
X2 = 0.1000Q+03 Y2 = 0.1000Q+03 Z2 = 0.1000Q+03
    
```

0.050000	40.200000	-182.999146	0.0	0.0	-142.799146	0.0
0.050000	40.200000	-182.999146	0.0	0.0	-142.799146	0.0
0.100000	40.199614	-182.998765	0.0	0.0	-142.799151	-0.0
0.150000	40.198436	-182.997589	0.0	0.0	-142.799153	-0.0
0.200000	40.196427	-182.995585	0.0	0.0	-142.799158	-0.0
0.250000	40.193543	-182.992706	0.0	0.0	-142.799163	-0.0
0.300000	40.189742	-182.988908	0.0	0.0	-142.799166	-0.0
0.350000	40.184976	-182.984150	0.0	0.0	-142.799174	-0.0
0.400000	40.179197	-182.978374	0.0	0.0	-142.799177	-0.0
0.450000	40.172355	-182.971539	0.0	0.0	-142.799185	-0.0
0.500000	40.164394	-182.963582	0.0	0.0	-142.799187	-0.0
0.550000	40.155259	-182.954455	0.0	0.0	-142.799196	-0.0
0.550000	40.155259	-182.954455	0.0	0.0	-142.799196	-0.0
0.600000	40.144891	-182.944090	0.0	0.0	-142.799200	-0.0
0.650000	40.133226	-182.932434	0.0	0.0	-142.799209	-0.0
0.700000	40.120198	-182.919413	0.0	0.0	-142.799215	-0.0
0.750000	40.105739	-182.904961	0.0	0.0	-142.799222	-0.0
0.800000	40.089774	-182.889005	0.0	0.0	-142.799231	-0.0
0.850000	40.072228	-182.871465	0.0	0.0	-142.799237	-0.0
0.900000	40.053018	-182.852267	0.0	0.0	-142.799249	-0.0
0.950000	40.032060	-182.831314	0.0	0.0	-142.799254	-0.0
1.000000	40.009264	-182.808531	0.0	0.0	-142.799267	-0.0

Table A.6 Card setup and input for part III of GGR to plot atom configuration

```

//JCLG JOB 00000010
// EXEC JCLG 00000020
//SYSIN DD DATA, 00000030
// DLM='++' 00000040
// JUSER 82261476,YU.TAJI,0431.200 00000050
// T.3 C.2 I.4 W.1 CLS GRP MTU 00000060
// DPTP PASSWORD=45241476 MSGCLASS=R 00000070
//***** 00000080
//** PART - III. ** GRAPHITE ** RUNNING ** 00000090
//***** 00000100
//GRG03 EXEC FORTHE, 00000110
// SD='J1476.ZGR13', 00000120
// A='NOSOURCE,AUTODBL(DBLPAD),ELM(*)' 00000130
//***** 00000140
//STEL EXEC LKED,GRLIB=PNL 00000150
//GRGO EXEC GO 00000160
//***** 00000170
//FT05F001 DD * 00000180
5000 0.0 -1.0 2.0 100.0 100.0 00000181
5000 0.0 2.0 4.5 100.0 100.0 00000190
5000 0.0 4.5 8.5 100.0 100.0 00000191
5000 0.0 8.5 12. 100.0 100.0 00000192
5000 0.0 12. 15. 100.0 100.0 00000193
0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 00000200
/* 00000210
//***** 00000220
//FT06F001 DD SYSOUT=*, 00000230
// OUTLIM=0, 00000240
// HOLD=NO 00000250
//***** 00000260
//*T18F001 DD DSN=J1476.ZGRAPE18.DATA, 00000270
//* DCB=BFALN=F, 00000271
//* DISP=OLD 00000280
// EXPAND TAPE,DDN=FT18F001, 00000291
// MTV=041969,DCB='BFALN=F', 00000292
// DSN='J1476.KOKUEN1' 00000293
//***** 00000300
// EXPAND GRNLP,LIM=0 00000310
//***** 00000320
++ 00000330
// 00000340

```