

塑性変形による温度上昇の分子動力学法を用いた解析

李 響

大阪大学 大学院工学研究科 マテリアル生産科学専攻

1. はじめに

近年、加工後の材料の組織および特性を高精度で予測することが重要となっている。そのためには、加工中および加工後の温度が正確に予測される必要がある。材料に付与される塑性変形仕事 W^P は、その大部分が熱 ΔQ に変換され、材料の温度を上昇させる。このとき、塑性仕事が熱に変換される割合は熱変換効率 Taylor-Quinney coefficient (TQC) β と呼ばれる。したがって、正確な TQC を温度予測に用いることが必要となる。

従来（特に市販の有限要素解析ソフト）では、材料によらず TQC は一定で $\beta = 0.9$ と仮定されることが多かった。すなわち、エネルギー散逸の量は W^P の 90% であると経験的にされていた。しかし最近、実験的研究が多く行われるようになり、TQC は定数ではなく、変形のモード、速度、材料の種類などへの依存性があることが報告されている⁽¹⁾。

これまでの TQC の実験的測定では、変形中の材料の温度上昇 ΔT をその場測定して次式で β を求めるのが一般的である（積分式 β^{int} ）。

$$\beta^{\text{int}} = \frac{\Delta Q}{\Delta W^P} = \frac{c\Delta T}{\Delta W^P} \quad (1)$$

ここで、 c ($\text{JK}^{-1}\text{m}^{-3}$) は比熱、 ΔT は材料の温度上昇、 ΔW^P は塑性仕事の増加である。また、TQC は、温度上昇および塑性変形仕事の時間微分でも定義される（微分式 β^{diff} ）。

$$\beta^{\text{diff}} = \frac{dQ}{dW^P} = \frac{cdT}{dW^P} \quad (2)$$

実験で TQC を評価する場合には、変形中における試験片の温度上昇を正確に測定することが必要であり、変形と同時に起こる熱伝導と熱膨張による温度変化への影響をほぼ 0 に抑制する必要がある⁽²⁾。すなわち、断熱定積の熱力学的境界条件がその前提となる。そのため、ほとんどの

TQC の実験的研究は、高速変形（ひずみ速度 $\dot{\epsilon} \geq 10^3 \text{s}^{-1}$ ）を施すことによって、熱伝導・熱膨張に時間を与えず、近似的に断熱定積の条件を満足させる手法を用いていた。ただし、現在、正確な TQC が必要となる場面はほとんど開放系（低速変形など）であり、この評価手法は断熱定積の境界条件がその前提であるから、その結果をそのまま開放系（低速変形など）に応用することが難しい。

ところで、分子動力学（MD）計算では、熱力学的境界条件を事前に規定すれば、温度、応力（圧力）、エネルギーなどの熱力学量が正確に計算できるそのため、あらゆる熱力学的境界条件での TQC を正確に求められる可能性がある。そこで、本稿では MD 法を用いて TQC を求め、その結果を実験値と比較検討する。そして、TQC の熱力学的境界条件への依存性について考察する。

2. 解析方法

2.1 TQC の計算方法

変形仕事（弾性仕事 ΔW^e と塑性仕事 ΔW^P の和）は系内にとどまり、その一部が蓄えられる（ ΔW^S ）。その他は熱 ΔQ として散逸される。そのエネルギーの保存則は、

$$\Delta W^e + \Delta W^P = \Delta Q + \Delta W^S \quad (3)$$

と表すことができる。さらに、 ΔQ は、

$$\Delta Q = \Delta E_c + \Delta E^e + \beta \Delta W^P \quad (4)$$

と表すことができる。ここで、 ΔE_c 、 ΔE^e はそれぞれ熱伝導、熱膨張によるエネルギー収支を表す。従来の TQC の実験的研究は、Split Hopkinson Pressure Bar (SHPB) などを用いて、試験片に高速変形を施すことによって、 ΔQ を ($\Delta Q = \beta \Delta W^P$) に近似するような手法で行われてきたが、これから TQC を高精度に予測するために、熱伝導、熱膨張の影響を考慮することが必要である。

分子動力学シミュレーションでは、モデルを構

成する個々の原子のポテンシャルエネルギー E_p 、運動エネルギー E_k を計算できる。モデルの内部エネルギーは、

$$U = E_p + E_k \quad (5)$$

と定義される。 W^s は、内部エネルギーの収支に、温度の変化をもたらすエネルギーの収支 ($c\Delta T$) 除外したもので、

$$\Delta W^s = \Delta U - c\Delta T \quad (6)$$

と表すことができる。また、TQC は、塑性変形仕事が熱として散逸した割合を表すもので、その反面のエネルギー蓄積 E^{stored} を計算する際に、内部エネルギーの収支から、弾性エネルギーを除去する必要がある。

$$\Delta E^{\text{stored}} = \Delta U - \Delta W^e - c\Delta T \quad (7)$$

したがって、エネルギー蓄積による TQC の計算式 β_1 は、

$$\beta_1^{\text{int}} = 1 - \frac{\Delta U - \Delta W^e - c\Delta T}{\Delta W^p} \quad (8)$$

$$\beta_1^{\text{diff}} = 1 - \frac{dU - dW^e - cdT}{dW^p}$$

である。温度の変化を反映する項 $c\Delta T$ (cdT) では、熱伝導によるエネルギー収支が考慮される。

本稿では、TQC の従来の定義式 (式 1) を β_0 、新しい計算式 (式 8) を β_1 で表す。

分子動力学シミュレーションの応力-ひずみデータから、塑性仕事を計算する。まず、応力とひずみ増分から変形仕事の増分を計算する。

$$dW = \sum_{i=1}^6 \sum_{j=1}^6 \delta_{ij} \sigma_{ij} d\epsilon_{ij} \quad (9)$$

$$\Delta W = \int_0^t dW$$

そして、弾性エネルギー W^e は、剛性マトリックス C_{ijkl} および応力 σ_{kl} によって

$$W^e = C_{ijkl} \sigma_{kl} \sigma_{kl} \quad (10)$$

のように計算することができる。 W^e は、応力で計算するものであり、体積が一定な境界条件では、熱膨張の効果に相当するエネルギー収支も含まれている。 ΔW (dW) から ΔW^e (dW^e) を引いたものが ΔW^p (dW^p) となる。

2.2 MD の計算条件

アルミニウム (Al) の原子モデルを新たに構築して、分子動力学シミュレーションに用いた。モデルは完全結晶である。モデルの原子数は 27,000,000 であり、結晶構造は面心立方格子 (FCC) である。

LAMMPS ⁽⁴⁾を用いて MD シミュレーションを行う。原子間相互作用を表すポテンシャルは EAM ポテンシャル ⁽⁵⁾を用いた。それぞれ断熱定積 (NVE アンサンブル) と定温定積 (NVT アンサンブル) の熱力学的境界条件で単純せん断変形を施す。

ここで、完全結晶モデルの分子動力学法による変形の計算では、エネルギーの収支に転位の形成エネルギーが含まれる。これを避けるために、安定な初期欠陥を導入しておく必要がある。そこで、本研究では表 1 に示す条件で著者らが提案した P-P-D (Pre-Pause-Deform) 法 ⁽³⁾という計算ステップを用いる。P-D-D 法では、TQC の計算のための本変形 (Deform) を行う前に、完全結晶のモデルに予変形 (Pre) を施し初期欠陥を自発的に形成させてから変形を止め (Pause)、除荷 (すなわち応力を 0 にする。表 1 では $\sigma = 0$ と表す) して初期欠陥が平衡になるまで構造緩和させる。P-P-D 法によって、モデルに熱力学的に安定な初期欠陥を導入しておくことができる。Pause では、除荷によって予変形による弾性ひずみ ϵ^e が 0 に戻る。そして、本変形 (Deform) において TQC を評価する。ここでは、本変形の開始点でのひずみは 0 ($\epsilon = 0$) とする。

表 1 : MD シミュレーションの条件

Stage	Pre	Pause	Deform
Ensemble	①	②	
Deformation	Shear		Shear
Time, t / ps	700		500
Pressure, p / Pa	-	$\sigma_{13} = 0$	-
Strain, $\Delta\epsilon$	0.35	$-\epsilon^e$	0.25
Strain rate, $\dot{\epsilon}$ / s ⁻¹	5×10^8	0	5×10^8

※アンサンブル : ①-NVT、②-NPH

2.3 計算リソース

本研究では、LAMMPS による分子動力学シミュレーションはすべて、大阪大学 D3 センターのスーパーコンピュータ SQUID の CPU ノード群を利用して行った。計算リソースは一回あたり、64 ノードで 8 時間程度であり、ストレージは約 250GB である。

3. 解析結果

3.1 P-D-D 法

図 1 に、P-P-D 法を用いて得られた応力-ひずみ曲線を示す。Pre-deformation は、モデルの初期状態は完全結晶であるため、大きな応力オーバーシュートが発生した。一方、Deform の段階では、応力オーバーシュートが起らず、応力-ひずみ曲線は弾完全塑性に近い挙動を示している。よって、本研究では、P-D-D 法によって応力オーバーシュートを最小化することができた。

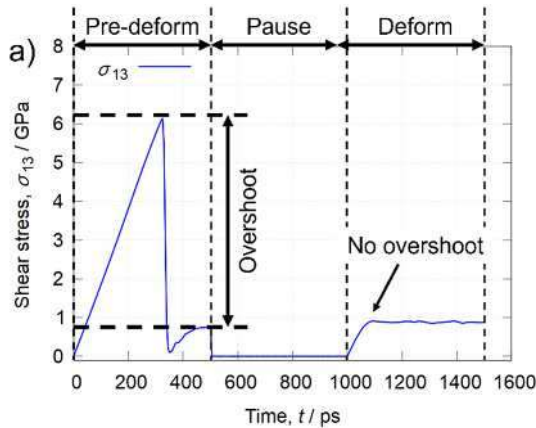


図 1 : P-P-D 法による応力オーバーシュートの最小化

3.2 新しい定義式による TQC の予測

小正準集団 (NVE アンサンブル) および正準集団 (NVT アンサンブル) 下の TQC を予測する。塑性流動が安定な領域 (せん断ひずみ $\varepsilon_{13} > 0.05$) では、 β_0 と β_1 の予測結果が一致している。せん断ひずみ $\varepsilon_{13} > 0.20$ の領域では、 β の曲線がすでに収束したと考えられ、 $\varepsilon_{13} > 0.20$ での平均値 $\bar{\beta}$ を TQC の予測値とする。NVE アンサンブルでは、 $\bar{\beta}^{\text{int}}_0 = \bar{\beta}^{\text{int}}_1 = 1.02$ ($\bar{\beta}^{\text{diff}}_0 = \bar{\beta}^{\text{diff}}_1 = 1.05$)、NVT

アンサンブルでは、 $\bar{\beta}^{\text{int}}_0 = \bar{\beta}^{\text{int}}_1 = 0.97$ ($\bar{\beta}^{\text{diff}}_0 = \bar{\beta}^{\text{diff}}_1 = 1.03$) の結果が得られた。

4 考察

4.1 TQC の境界条件への依存性

NVE では、TQC の予測結果は NVT での予測結果より大きい。図 2 に、NVE と NVT での変形中の転位密度の変化を示す。両方とも、転位密度はまず増加し、時間が 100~200 ps の間に最大値に到達してから減少していた。これは、変形中に動的回復 (Dynamic Recovery) が発生したと示している。動的回復は、変形仕事を駆動力とした転位の再配置による転位構造の最適化の過程である。NVE アンサンブルでは、その転位密度の最大値、およびその最終値は NVT の場合より小さい値を示している。

NVE では、変形中で発生した熱 Q はモデルの中に原子の内部エネルギーとしてとどまり、その後の変形プロセスに影響する。一方で、NVT では、 Q は発生した時点ですぐにサーモスタットによって除去され、その後の変形プロセスに影響しない。したがって、NVE モデルでの動的回復の駆動力が塑性仕事全体 W^p で、NVT モデルは、その動的回復の駆動力が熱にならなかった塑性仕事 ($W^p - Q$) である。NVE モデルはその動的回復の駆動力が大きく、転位密度の減少量が大きいことが、TQC の予測値が 1 を超えた原因として考えられる。

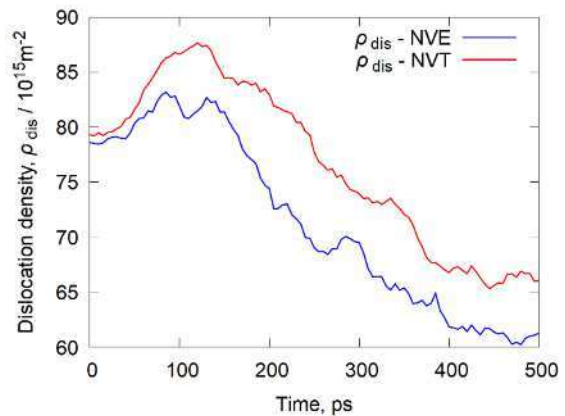


図 2 : 小正準集団 (NVE) および正準集団 (NVT) での変形に伴う転位密度 ρ_{dis} の変化。

4.2 TQC の分子動力学モデルの最適化

本研究では、計算結果の精度を保ちつつ計算リソースの利用効率の向上を図り、異なる原子数のモデルを用いて、NVE アンサンブルで同じ条件で単純せん断変形の分子動力学シミュレーションを行った。ここでは、NVE アンサンブルを使用した原因は、その計算時間が最も短いからである。

それぞれのモデルの原子数、1回の計算に必要な計算リソースとその TQC の予測値を表 2 に示す。原子数が 1,720,000 のモデルが文献値 $\beta_{\text{Ref.}}$ に最も近い値を得た。ただし、Ref. (6)では、高速変形(近似的な断熱条件)での試験片の温度上昇をその場測定し、TQC の定義式 β_0 で TQC を計算するような手法を用いた。Ref. (6) では、熱伝導・熱膨張が無視され、熱力学的境界条件が断熱定積に近似されていた。熱伝導については考察されなかったため、温度上昇の測定結果および TQC の予測結果が過小評価された可能性がある。そのため、Ref. 7 の実験からの正確な TQC の予測結果は、0.96 より大きいと考えられる。本研究で調査されたモデルは、原子数が 1,720,000 のものから $\beta_{\text{Ref.}}$ と一致した TQC の予測値、原子数が 27,000,000 のものから 1.00 を超えた TQC の予測値を得た。

原子数が 576,000 と 1,720,000 のモデルでは、そのモデルの体積が小さく、その格子欠陥が互いの弾性場に影響されやすく、その進展が実際の材料と異なる可能性があり、その密度の計算結果も瞬時的に発散する恐れがあるが、原子数が 27,000,000 のモデルでは、その MD 計算およびその結果データの後処理に膨大な計算リソースが必要であるため、汎用的ではないと考えられる。よって、さらなる考察は必要であるが、本研究では、原子数が 1,720,000 の原子モデルが最も適切であると考えられる。よって、これからの TQC の MD 計算では、原子数が 100 万個以上の超大規模原子モデルを用いる必要があると考えられる。

表 2：モデルの原子数および計算リソースが

TQC の予測結果への影響

The number of atoms, N	Node×time, t / hours	$\bar{\beta}_0^{\text{int}}$	$\beta_{\text{Ref.}}$
576,000	17.6	0.95	0.96 ⁽⁶⁾
1,720,000	34.4	0.96	
27,000,000	221.9	1.02	

5. おわりに

塑性仕事の熱変換効率 (Taylor-Quinney coefficient, TQC) を正確に予測するために、純アルミニウムの大規模原子モデルを新たに構築して、それぞれ断熱定積 (NVE)、定温定積 (NVT) の境界条件で分子動力学計算を行い、以下の知見を得た：

- ・塑性変形の分子動力学計算によくある応力オーバーシュートを避けるために、P-P-D 法を提案した。超大規模原子モデルを用いた P-P-D 法によるシミュレーションでは、応力オーバーシュートが完全に抑制された。
- ・ β の計算結果は、分子動力学シミュレーションの境界条件に依存する。TQC の正確な実験値は、NVT での計算結果と NVE での計算結果の間にあると考えられる。
- ・TQC の計算結果はモデルの原子数に依存性がある。これから、計算結果の妥当性と計算の効率向上を両方考慮して、モデルの原子数は少なくとも 100 万個以上が必要であると考えられる。

参考文献

- (1) D. Rittel et al., J. Mech. Phys. Solids, 107 (2017), 96.
- (2) D. Rittel, Mech. Mater., 31 (1999), 131.
- (3) 李響ほか: JIMM 2023 年春期講演大会, (2023), p98.
- (4) S. Plimpton, J. Comp. Phys., 117 (1995), 1-19.
- (5) M.I. Mendeleev et al., Phil. Mag., 88-12 (2008), 1723.
- (6) T. Zhang et al., Acta Mech. Sin., 34 (2018), 327.