

令和 7 年 6 月 23 日現在

機関番号：33924

研究種目：学術変革領域研究(B)

研究期間：2022～2024

課題番号：22H05041

研究課題名（和文）金属ガラスのレオロジー：計算科学によるアナンケオン動力学の構築

研究課題名（英文）Rheology of Metallic Glasses: Computational Approach to Anankeon Kinetics

研究代表者

椎原 良典 (Shiihara, Yoshinori)

豊田工業大学・工学（系）研究科（研究院）・准教授

研究者番号：90466855

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 20,200,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、未解明である金属ガラスの塑性変形要素の探索を目的とした。せん断帯に成長するShear transformation zone (STZ) はそうした要素であると考えられてきたものの、その特定には曖昧さが残されてきた。本研究では凍結原子法と名付けた独自手法を開発し、協調運動そのものを検出することにはじめて成功した。この要素をSTZコアと名付けた。CuZr金属ガラスへ適用した結果、コアのサイズが約10-100原子となること、力学的特性は周囲の原子と明確な差を示さないこと、STZコアの大きさは応力降下の規模やひずみに依存しないこと、その応答が非線形で過渡的であることを示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究は、長年不明瞭であった金属ガラスの塑性変形単位の本質が協調運動であることを明確にした。単なる事後解析ではなく、協調運動そのものを検出できるという点に原子凍結法の新規性がある。様々な組成を有する金属ガラスにおいてそのSTZコアをより深く調査・解析することを通じて、それらでのSTZの起こりやすさを明らかとでき、ひいてはそこで起こる塑性現象の理解へ大きく貢献できる。そこで得られる知見は、強靱で長寿命のガラス質材料の設計指針となる。本手法はその他の非晶質材へも展開できる、そのことを通じて、幅広い産業や研究分野での技術進展およびイノベーションの促進が期待される。

研究成果の概要（英文）：This study aims to explore the plastic deformation units in metallic glasses, which have remained poorly understood. Although shear transformation zones (STZs) that evolve into shear bands have long been considered such units, their precise identification has remained ambiguous. In this work, we developed a novel approach called the "frozen atom method" and successfully detected the cooperative atomic motions for the first time. We named this element the STZ core. Applying this method to a CuZr metallic glass, we found that the STZ core consists of approximately 10-100 atoms. Its mechanical properties do not show a distinct difference from the surrounding atoms, its size is independent of the magnitude of the stress drop or the applied strain, and its response is nonlinear and transient.

研究分野：機械工学

キーワード：金属ガラス 塑性変形 分子動力学法

1. 研究開始当初の背景

塑性および非弾性変形のメカニズムを解明する上で、変形要素の理解は重要である。結晶性材料において、これらの変形要素はよく知られており、明確に同定されている。例えば、結晶中の転位は、塑性変形の主要な担い手となる。一方、ガラス質材料の場合、状況はより複雑となる。結晶とは異なり、ガラス質材料は長距離秩序を欠き、原子構造が高度に無秩序である。このため、原子シミュレーションを用いても、具体的な変形要素を特定することは困難となる。

金属ガラスにおいては、せん断帯が、金属ガラスの塑性変形を誘発する。このせん断帯は、せん断変形ゾーン (Shear Transformation Zone, STZ) と呼ばれる原子集団の雪崩的励起によって形成されると考えられている。結晶性金属の塑性を理解する上でその変形要素、転位が本質的役割を果たすことと同様に、STZ は金属ガラスの塑性を理解する上で鍵となる。しかし、依然として次のようないくつかの基本的問題が残されている：どのような原子群が STZ として機能するのか、それらの原子群は力学的に軟質あるいは硬質なのか、その典型的なサイズはどの程度なのか、局所的な結合環境はどのようであるのか、そして、異なる STZ は互いにどのように相互作用するのか。これらの疑問に答えるためには、STZ をその周囲の原子から区別する必要がある。そのためには、STZ を構成する原子群を明確かつ一意的に同定する手法が求められている。

過去数十年にわたり研究者たちは、STZ を同定するための様々な指標を提案してきた。これには、非アフィン自乗変位 (D^2_{\min})、ボロノイベースの指標、局所応力降下、局所剛性変化、原子変位、ヘッセ行列の対角化によるソフトモードなどが含まれる。そうした努力にもかかわらず、これらの定義はいずれもある程度の曖昧性を有している。 D^2_{\min} はその中でも最も広く用いられている指標の一つであるが、閾値の違いによって特定される原子群は大きく変化する。同様の問題を D^2_{\min} 以外の指標の多くが有しており、それによる変形要素の一義的な定義は難しい。このような従来指標の限界は、ガラス質材料の変形要素を明確に定義できる新たな概念の必要性を示唆している。

2. 研究の目的

本研究は、STZ を誘発する変形要素「STZ コア」を同定する手法を提案することで数十年来の問題を解決した。この STZ コアを、せん断によって最初に活性化され、その後、周囲の原子へ影響を及ぼして完全な STZ を形成する原子群であると定義した。このような STZ コアを同定する手法は次の二つの主要条件を満たさなくてはならない。第一に、同定される STZ コアが明確な物理的意味を有していること。第二に、STZ コアを他の原子から明確に識別できること。これらの条件を満たすため、開発した手法が、「凍結原子解析」である。本手法は、原子の協調運動に着目して STZ コアを抽出する。この協調運動を示す原子群が、STZ を誘起するそのトリガーとなる。金属ガラスに対して STZ コアを軸とした解析を実施することで、先に述べた STZ を巡る謎の解明に挑んだ。

3. 研究の方法

せん断変形下のガラス様材料において、原子が協調的に運動する現象はよく知られている。原子シミュレーションにより、一部の原子が同時に運動を開始する様子が観察できる。このような原子集団を変形要素として捉えるのは自然である。我々は、この協調運動を示す原子集団こそが STZ コアであると仮定し、以下の手順により協調運動の抽出を試みた。図 1 にそのアルゴリズムの模式を示した。もしある原子集団が協調運動していると仮定したとき、そのうちの一つの原子の運動を凍結したとする。その結果、その原子が動けなくなるだけでなく、後続の原子も引き戻されるため、協調運動そのものが消失する。同様に、他の原子の運動を凍結した際も、同様の影響が現れる。したがって、ある原子の運動を凍結した際に、その後の原子の変位が消失する（つまり、協調運動が発生しなくなる）のであれば、その原子が協調運動に関わるものと判断できる。

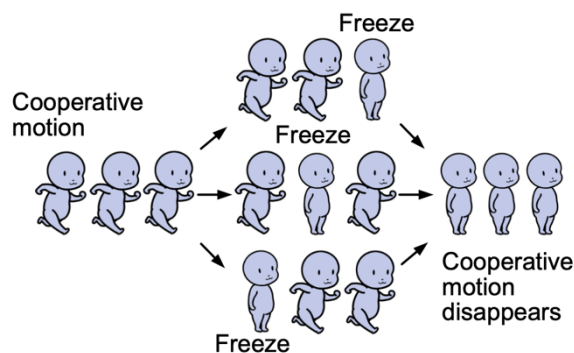


図 1 協調運動の模式図。ある原子の運動を凍結するとその協調運動自体が凍結される。

このアイデアを実現するために開発した独自手法が「凍結原子解析」である。その手順は以下のとおりである。まず、せん断変形下におけるガラスで起こる応力緩和イベントにおいて、その緩和前の原子構造を取得する。次いで、系に存在する n 個の原子のうち一つの原子 i を選ぶ。その原子の運動を凍結し、その他の原子の位置を緩和する。そこで起こる原子変位ノルムの和（ここでは Displacement のパラメータ、 D パラメータと呼ぶ）をとり記録する。この手順をすべての原子について繰り返す。その結果、個々の原子に対して D パラメータが求められる。何故、こ

の D パラメータによって STZ コアを変形要素として同定できるのか。もし、ある原子が協調運動に関与しているなら、その運動を凍結した際、 D パラメータはゼロとなると予想される。何故なら、凍結により協調運動が消失しイベント自体が発生しないためである。一方で、その原子が協調運動に関与していないのであれば、 D パラメータはゼロにはならない。したがって、 D パラメータがゼロとなる原子を検出することによって、協調運動に関与する原子群を STZ コアとして同定できる。

計算条件について説明する。凍結原子解析の有効性を示すために、 $\text{Cu}_{50}\text{Zr}_{50}$ 組成から成る 2000 原子の 3 次元金属ガラスモデルの分子動力学シミュレーションを実行した。EAM (埋め込み原子法) ポテンシャルを相互作用モデルとして、LAMMPS ソフトウェアパッケージ上でシミュレーションを実施した。サンプルは 10^{-9} K/s の速度で急冷した後、応力のない初期状態となるまでセル構造を含めて緩和し、斜方晶系のセルを得た。次いで、Athermal Quasi-Static (AQS) 法を用いて単純せん断変形を印加した。本研究では、合計 36 イベントを調査対象とした。このイベントとは、AQS 過程で発生する応力降下を意味する。6 方向のせん断それぞれで 36 イベントを取得した。それらに対して原子凍結解析を実施し、STZ コアを同定した。

4. 研究成果

凍結原子解析を用いて、系内の全ての原子について D パラメータを算出した結果を図 2 に示した。図 2a のヒストグラムは、あるイベントで得られた規格化した D パラメータの出現頻度分布を示している。ここから、三種類の原子集団が抽出できる。一つ目の集団は、その運動を凍結した際、協調運動そのものが消失し、事象が発生しなくなる原子から成る。これが、変形要素としての STZ コアである。二つ目の集団は、凍結されても影響を受けず、STZ コアとは関わりのない原子から成る。この集団が系の大部分を占める。三つ目の集団は、協調運動によって動かされる原子である。これらの原子を凍結した際、他の原子の相対運動が発生し、その結果、大きな D パラメータを示す。特筆すべき特徴は、このヒストグラムに現れる明瞭なギャップであり、STZ コアに属する原子とその他の原子を明確に区別している。実際、検討した 36 サンプルのうち約 90% は、本ヒストグラムと同様の結果を示した。残りのサンプルも、本ヒストグラムとは若干異なるものの、同様のギャップが観察されている。これらの結果は以下 2 つの事実を示唆する。第一に、変形要素が確かに協調運動として捉えられること。第二に、本研究で検討した D パラメータは、変形要素となる STZ コアを明確に同定できる有効な指標となることである。

STZ コアの同定手法として、本研究で提案した手法の優位性を示すため、従来の指標である原子ミーゼス応力および D_{\min}^2 と比較した。結果は省略するが、これらのヒストグラムには明確なギャップが存在せず、STZ コアを他の原子から明確に区別することができなかった。従来の指標ではしきい値の設定によって変形要素のサイズが大きく変化することも確認できた。一方、本研究で提案したパラメータ D は明確なギャップを示しており、STZ コアの同定において他の指標を凌駕する性能を有しているといえる。

次に、STZ コアの特徴をボロノイ解析により検討した結果を図 3 に示す。STZ の示す特徴を抽出するために、ボロノイ解析は先行研究においてよく用いられてきた。ここに示すように、STZ コアの大きさと面の数および体積といったボロノイ解析により取得できる構造特徴の間に

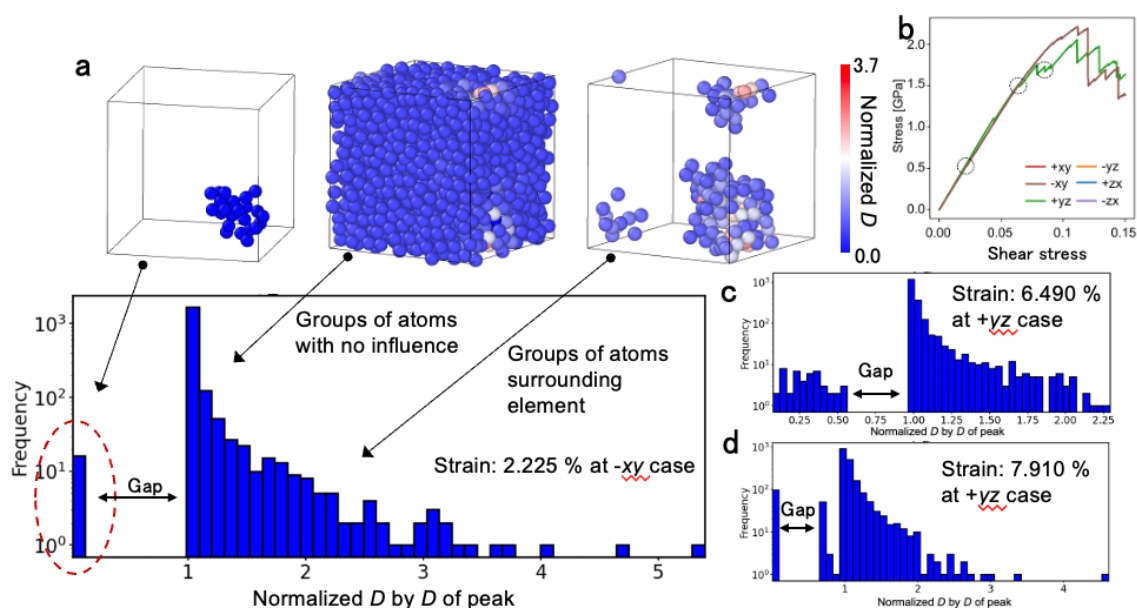


図 2 a) D パラメータのヒストグラムとそこで特定された原子群。b) サンプルの応力ひずみ線図。点線の円で示された最初のイベントでの値を a にプロットした。c), d) その他のイベントにおけるヒストグラム。図 2b 中の 2 番目と 3 番目の円で相当する。

明確な相関がないことがわかる。これは、ボロノイ解析による事象の起点となる原子集団の特定がこれまで困難であったことから予想される。図 4 には、STZ コアのサイズ分布、および、STZ コアサイズとイベントサイズの関係を示した。図 4a に示すように、この系での STZ コアのサイズは平均して約 40 原子となった。このことは、これまで曖昧となっていた STZ コアの大きさを、凍結原子解析によって一意的に定義できることが意味している。従来、STZ コアの抽出は容易ではなかったが、凍結原子解析の手法を用いることで、その明確な定義と特定が可能となった。また、図 4b は、事象の引き金となるコアのサイズがその後発生する STZ 規模と必ずしも相関しないことを示唆している。

STZ コアの同定が可能となったことで、その特性について詳細に検討できるようになった。従来の仮説では、STZ は周囲のマトリックスと比較して、結合が弱い力学的に柔軟な領域であるか、あるいは硬質で脆性的な領域であると考えられてきた。本研究では、STZ コア内の原子のせん断剛性をその周囲の原子のせん断剛性と比較する解析も実施している。結果は省略するが、その解析を通じて STZ コアのせん断剛性は、周囲の原子と比較して特段柔らかくも硬くもないことが明らかとなった。このことは、これまで STZ コアの特定が困難であった理由を裏付けている。同様に、せん断下での STZ コアの局所エネルギーおよび応力の変化についても調査を実施した。同様に結果は省略するがこの解析から、ガラスの固有の構造的不均質性の影響により、STZ コアがそれぞれ異なる力学的状態にあること、およびその変形応答が一樣でないことが明らかになった。さらに、ある STZ コアの力学的状態は、他の STZ が活性化されることで変化しうることが明らかとなった。これらの特性は、結晶性材料における転位の挙動とは著しく対照的である：金属ガラスの変形単位は、せん断応力のもとで非線形で過渡的な応答を示す。

以上要するに、我々は、協調運動に着目して変形要素 (STZ コア) を抽出する凍結原子法を開発した。その有効性を金属ガラスを対象とした検証によって示した。主な成果は以下である。

- (1) STZ コアは、協調運動を示す原子集団として定義される。
- (2) 凍結原子法は、従来の指標では困難であった STZ コアを一義的に同定する。
- (3) 変形要素のサイズは、平均 40 原子程度であった。また、そのサイズはひずみの大きさや応力降下の規模には依存しなかった。
- (4) ボロノイ解析による構造特徴と変形要素の間には明確な相関が見られなかった。
- (5) STZ コアは力学的に特段硬質でも柔軟でもない。また、そのせん断応答は、非線形で過渡的であった。

本研究は、長年不明瞭であった金属ガラスの塑性変形単位の本質が協調運動であることを明確にした。単なる事後解析ではなく、協調運動そのものを検出できるという点に原子凍結法の新規性がある。様々な組成を有する金属ガラスにおいてその STZ コアをより深く調査・解析することを通じて、それらでの STZ の起こりやすさを明らかとでき、ひいてはそこで起こる塑性現象の理解へ大きく貢献できる。そこで得られる知見は、強靱で長寿命のガラス質材料の設計指針となる。本手法はその他の非晶質材へも展開できる、そのことを通じて、幅広い産業や研究分野での技術進展およびイノベーションの促進が期待される。

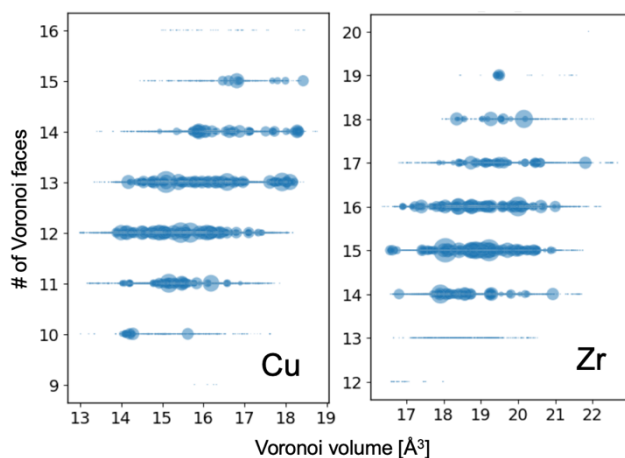


図 3 ボロノイ解析により得た各原子 (計 72000 原子) のボロノイ面の数とボロノイ体積を Cu と Zr でプロットしたもの。円の大きさは D パラメータの逆数に比例する。

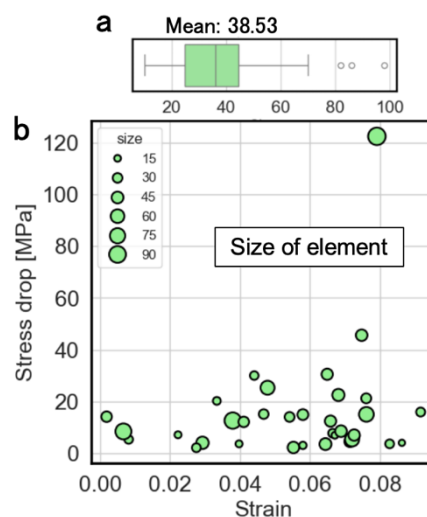


図 4 a) STZ コアのサイズ分布. b) STZ コアサイズとそのイベントサイズの相関. 円の大きさは STZ コアサイズを示す。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 2件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Lobzenko Ivan, Tsuru Tomohito, Shiihara Yoshinori, Iwashita Takuya	4. 巻 10
2. 論文標題 First-principles atomic level stresses: application to a metallic glass under shear	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Materials Research Express	6. 最初と最後の頁 085201 ~ 085201
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/2053-1591/acf2da	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Lobzenko Ivan, Tsuru Tomohito, Mori Hideki, Matsunaka Daisuke, Shiihara Yoshinori	4. 巻 64
2. 論文標題 Implementation of Atomic Stress Calculations with Artificial Neural Network Potentials	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 MATERIALS TRANSACTIONS	6. 最初と最後の頁 2481 ~ 2488
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2320/matertrans.MT-M2023093	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Lobzenko Ivan, Shiihara Yoshinori, Mori Hideki, Tsuru Tomohito	4. 巻 219
2. 論文標題 Influence of group IV element on basic mechanical properties of BCC medium-entropy alloys using machine-learning potentials	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Computational Materials Science	6. 最初と最後の頁 112010 ~ 112010
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.commatsci.2023.112010	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計6件（うち招待講演 2件 / うち国際学会 4件）

1. 発表者名 Yoshinori Shiihara, Takuya Iwashita
2. 発表標題 Exploring Plastic Deformation Elements in Metallic Glasses through Molecular Dynamics Simulations
3. 学会等名 The 30th International Conference on Computational & Experimental Engineering and Sciences (国際学会)
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 Yoshinori Shiihara, Takuya Iwashita
2. 発表標題 Identifying and Characterizing Deformation Elements in Metallic Glasses through Molecular Dynamics
3. 学会等名 The 11th International Conference on Multiscale Materials Modeling (国際学会)
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 谷口慈英, 椎原良典
2. 発表標題 変位・応力・結合解析：金属ガラスの応力緩和現象
3. 学会等名 第34回日本MRS年次大会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 Yoshinori Shiihara, Takuya Iwashita
2. 発表標題 Molecular Dynamics Simulation Identifying Deformation Elements in Metallic Glass
3. 学会等名 Eleventh international conference on Materials Structure and Micromechanics of Fracture
4. 発表年 2025年

1. 発表者名 Yoshinori Shiihara, Takuya Iwashita
2. 発表標題 Identification of Deformation Elements in Metallic Glasses through Frozen Atom Analysis
3. 学会等名 International Conference on PROCESSING & MANUFACTURING OF ADVANCED MATERIALS Processing, Fabrication, Properties, Applications (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2025年

1. 発表者名 Yoshinori Shiihara
2. 発表標題 Uncovering the Atomic Triggering Elements of Plastic Deformation in Metallic Glasses via Frozen Atom Analysis
3. 学会等名 2025 SES Annual Technical Meeting (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2025年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

構造不規則系のレオロジー：アナンケオン動力学の確立
<https://www.anankeon.com/>
 Y. Shiihara, T. Iwashita, N. Adachi, Y. Todaka, and T. Egami, Author, arXiv preprint arXiv:2503.14903 (2025).

6. 研究組織			
	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	Ivan Lobzenko (Ivan Lobzenko) (30802293)	国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 原子力科学研究所 原子力基礎工学研究センター・博士研究員 (82110)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------