

令和 2 年 5 月 19 日現在

機関番号：10101

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2017～2019

課題番号：17K18965

研究課題名（和文）Diffusive solution法に基づく材料組織の逆問題的アプローチの開発

研究課題名（英文）Development of inverse design approach for microstructural processes in materials based on diffusive solution method

研究代表者

大野 宗一（Ohno, Munekazu）

北海道大学・工学研究院・教授

研究者番号：30431331

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 4,800,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、拡散方程式の時間反転プロセスを計算する手法（diffusive solution法）の開発を試みた。この手法は、組織形成シミュレーションの時間反転プロセスに応用することを目指したものであり、最終組織から、その発達途中の組織や初期状態に関する情報を得る手段の構築を目指したものである。その結果、diffusive solution法によって、ある条件下であれば、濃度プロファイルの短波長成分の増大を押さえながら、時間反転方向に計算をすることが可能になった。ただし、より高精度な解析のために、さらなる改善が求められる。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、反応拡散方程式の時間反転解析のための数値計算手法を発展させることを目的とし、一部の条件であれば拡散問題の時間反転過程を記述可能な手段を発展させた。この手法を組織形成シミュレーションに応用することで、最終的な（目的の）材料組織から、その過去の形成過程を予測できる手法が構築されると期待される。したがって、効率的な材料開発の方法や材料組織の学理の発展につながる手法が構築されることになり、現在の試行錯誤的な材料開発に代わる新しい手段の発展につながることを期待される。

研究成果の概要（英文）：In this study, a method called diffusive solution method is developed for calculating time reversal processes of diffusion equation. This method is intended to be applied to the time reversal process of microstructure simulations to obtain past evolution process of microstructure and initial state from the final microstructure. The diffusive solution method makes it possible to calculate the time reversal process of certain diffusion problems while suppressing the increase of the short wavelength component of the concentration profile (wave). Further improvement is required for more accurate analysis.

研究分野：計算材料科学

キーワード：拡散 材料組織 シミュレーション 時間反転 フェーズフィールド法

1. 研究開始当初の背景

構造用金属材料の強度や寿命を決めているのは「材料組織」である。材料組織とは、数十 μm から数 mm のスケールで観察される結晶や成分濃度の空間パターンである。鋳造・熱処理・塑性加工などの製造プロセスの各段階で様々な材料組織が形成する。そして、凝固中の冷却速度、凝固後の保持温度・保持時間、圧延温度など、製造プロセスの条件によって、材料組織は大きく変化する。新材料の開発において望みの材料組織を得るためには、合金成分の調整に加えて、製造プロセスの条件を最適化する必要があり、非常に多くの自由度の中での試行錯誤が求められる。

材料組織学の発展においては、すべての変態が終了した後に、最終的な材料組織の情報のみから、その形成プロセスを死体解剖的に推測することを余儀なくされる場合が多々ある。特に、鋳造、溶接、凝固プロセスで形成する組織は、その形成過程の途中を観察することが難しく、最終組織のみを頼りに組織形成を推定することが行われてきた。しかし、組織形成の問題は本質的にマルチフィジクスでマルチスケールであるため、最終組織のみの情報から組織形成の動的なプロセスを推測することは容易ではない。これは材料組織学の学理発展の大きな障害といえる。

試行錯誤による非効率的な既存の材料開発に代わる新しい材料開発の方法を進展させるために、さらには最終組織からその発達過程を推測する難しさを低減するためには、最終的な(目的とする)材料組織を解析の出発点として、その過去の形成過程を予測できる手法が必要である。そのような手法の発展は、材料開発における条件探索の効率化や材料組織学の学理発展における新機軸につながると期待される。機能材料の研究分野をみると、「インバース・デザイン」が米国で提唱されており、電子論計算を主たる手法として、望みの機能を発現する結晶や電子状態を求める逆問題の取り組みが始まっている[1, 2]。一方、構造材料に関しては、その開発や製造に材料組織が大きく関与する難しさがあり、インバース・デザインの取り組みは国内外で本格化していない。

2. 研究の目的

構造材料の研究・開発に革新をもたらすインバース・デザインを可能にするためには、目的の材料組織を発現させる合金成分・プロセス条件を速やかに求める手法が必要である。つまり、目的とする材料組織(最終組織)を出発点とし、インプットした合金成分・プロセス条件をもとに時間方向に遡って、形成プロセスを予測する手法である。図1にイメージを示したように、材料組織の形成過程を時間軸に対して逆方向に計算・予測する逆問題のアプローチを開発することが重要な課題である。本研究では、このアプローチの発展のプレイクスルーとなる最重要課題に取り組んだ。具体的には、反応拡散方程式の時間反転解析のための数値計算手法を進展させることを本研究の目的とした。後述するように、現在最も強力な組織形成シミュレーション手法は、反応拡散方程式に基づくため、この方程式の時間反転解析法が構築できれば図1の逆方向のアプローチが開発されることになる。

本研究は応用数学の分野における逆問題に相当する[3, 4]。逆問題では、解に一意性がない状況が生じる。すなわち、上記の解析において、最終組織を導くプロセスパラメータや初期組織が複数存在することが十分にあり得る。最終組織の多くは粗大化の過程を経るものであるから、そのような状況がむしろ一般的である。これは目的とする材料組織を得る際に選択肢が複数存在することを意味する。このことは、インバース・デザインの観点からはむしろ好ましい特徴とも考えられ、本研究では解に一意性が存在しないことを問題としていない。

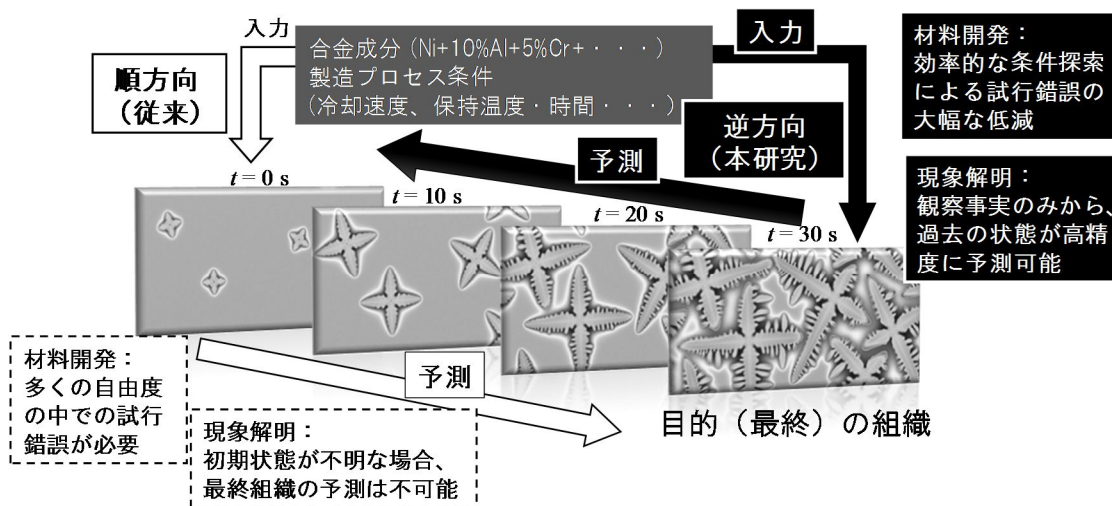


図1 合金材料の組織形成に関する順方向と逆方向のアプローチ

3. 研究の方法

図1に示した逆方向のアプローチを開発するためには、組織形成シミュレーション手法の時間反転解析を可能にする手法が必要である。様々な相変態過程の材料組織を計算する強力なモデルとしてフェーズフィールド・モデル[5-9]が発展している。フェーズフィールド・モデルは、異相界面や粒界を厚みのある境界(diffuse interface)として表現し、組織変化を計算する方法である。バルク中でも境界中でも同じ微分方程式を解くことで、複雑なマルチフィジックスの界面ダイナミクスが記述されることになり、自由境界問題を簡便に解くことを可能にする手法である。したがって、フェーズフィールド法を時間軸に逆方向に解くことができれば、多くの組織形成の時間反転過程が解析可能になる。

フェーズフィールド法では、秩序変数の時間変化を微分方程式で表し、その時間変化によって組織変化を記述する。一般に、秩序変数が非保存場するとき、その時間発展方程式によってGibbs-Thomson効果が再現され、秩序変数が保存場するとき、その時間発展は熱・溶質拡散やステファン条件を再現する。ここで重要な点は、非保存場および保存場の時間発展方程式は、ともに反応拡散方程式の形で与えられる。したがって、反応拡散方程式の時間反転プロセスを記述する手法が開発できれば、本研究の目的が達成されることになる。しかしながら、反応拡散方程式の時間反転方向の解を求める問題は、応用数学分野において良く知られた不良設定問題である[3,4]。過去に様々な研究が行われてきたが、特定の条件を除いて、この問題の解を得ることは難しい。本研究では、この古くからのチャレンジングな重要課題に取り組み組んだ。その方法を以下に説明する。

反応拡散系の逆問題における課題は、解の安定性の問題である。例えば、一次元の拡散問題

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} \quad (1)$$

を考える。ここで、 c は濃度、 D は拡散係数である。この式を時間反転方向に解くことを考えると、その解は計算の空間分解能(計算格子点間隔)の二倍の波長を持つ振動解であり、その振幅は時間ともに単調増加する。つまり、非現実的な状態が記述される。濃度プロファイルにおける短波長成分の増大がこの要因であり、拡散の物理を損なうことなく、この問題を防ぐが必要になる。それを可能にする方法として本研究ではオリジナルの方法(以下、diffusive solution法と呼ぶ)を開発することを目指した。

図2にその方法の概念図を示した。上図は濃度の一次元プロファイルを表している。この濃度プロファイルを、diffusive solution法で表したのが下図である。下図において $P(c, x) = 0$ の等高線を (c, x) 面上で表したものが上図の濃度プロファイルと一致する。この P は $[-1, 1]$ で連続的に変化し、その変化幅は (c, x) 空間内で一定値に制限する。濃度の時間変化は、 (c, x) 空間における P の等高線の移動に対応する。ここで、 $P(c, x) = 0$ 等高線の時間変化は、 $P(c, x) = A(A \neq 0)$ の等高線の時間変化に拘束されるため、逆問題における短波長成分の増大を防ぐことが可能になると期待される。この方法では、 P の時間変化を、曲率項の効果を除去したAllen-Cahn型の方程式で表現する。特に、解 $c(x, t)$ をdiffusiveに表現する方法であるため、ここではdiffusive solution法と呼ぶことにする。

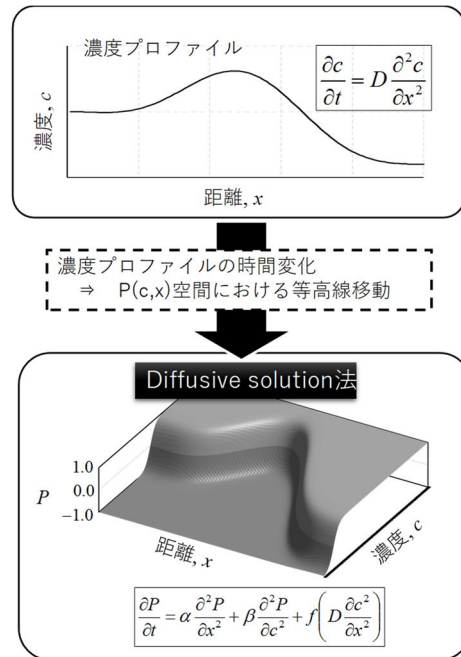


図2 Diffusive solution法による濃度プロファイルの表現方法

4. 研究成果

本研究では、diffusive solution法に基づき拡散方程式の逆解析を可能にするため、種々のモデリングを行い、解析を実施した。まず、拡散問題の逆解析として対象とした代表的な系を以下に記す。初期状態($t = 0$)の濃度プロファイルを下記の通り与えた。

$$c(x, 0) = \Delta c \sin^n\left(\frac{\pi x}{L}\right) + c_0 \quad (2)$$

$\Delta c = 0.5, n = 4, L = 1.0, c_0 = 0.2$ とし、式(1)を解いた結果を図3に示す。 $D = 1 \times 10^{-4}$ としたときの結果であり、濃度プロファイルが徐々に均一に向かっている。この $t = 100$ の濃度プロフ

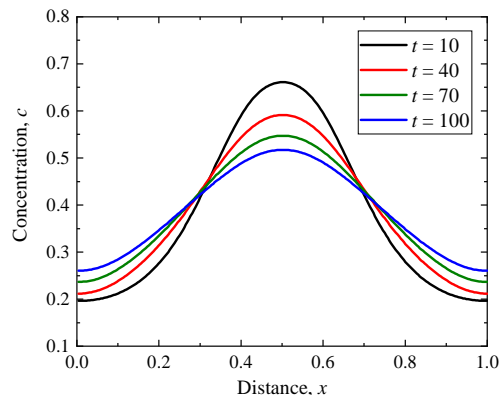


図3 濃度プロファイルの時間変化

イルから、それ以前の濃度プロファイルが再現できるか、様々なモデルで解析した。なお、本報告書では、物理量を特徴長さや時間で無次元化して述べる。また、一次元問題の解析結果のみを示すが、本手法を二次元や三次元の問題に拡張することは形式的には容易である。

本研究ではまず下記のモデルを考案した。

$$\tau \frac{\partial P}{\partial t} = W^2 \nabla^2 P - W^2 |\nabla P| \nabla \left(\frac{\nabla P}{|\nabla P|} \right) + (1 - P^2)P - (1 - P^2)m\Delta G \quad (3)$$

この方程式を、 $(x, y) = (x, c)$ 空間で解き、 $P(x, c) = 0$ の等高線をその時刻における $c(x)$ とみなす。式(3)において、

$$\Delta G = \frac{1}{\partial_y P} \nabla \left(\frac{\nabla P}{|\nabla P|} \right) \quad (4)$$

$$\tau = \frac{m}{D} \sqrt{2}W \quad (5)$$

であり、 m と W は計算の精度と安定性に関わるパラメータである。これを時間反転方向に解いた例を図4に示す。差分法を用い、時間方向は単純な前進オイラー法を用いた。図3の $t = 100$ のプロファイルを初期値として、 $t = 100$ から $t = 0$ までを計算した時の

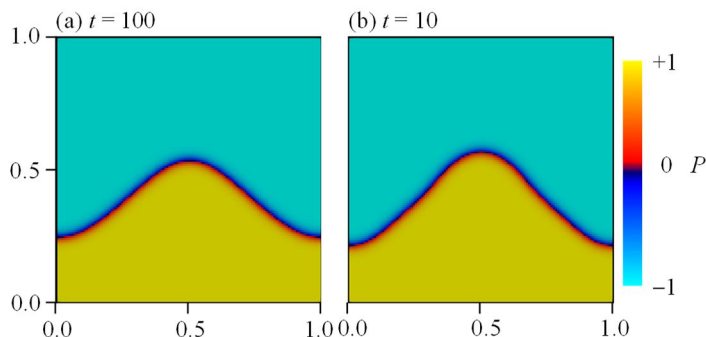


図4 式(4)による時間反転プロセスの計算結果

のプロファイルである。 $P(x, c)$ が変化し、 $x = 0$ の濃度ピークが若干高くなっている。この際の $P(x, c) = 0$ の等高線をプロットした結果を図5に示す。青色で示した $t = 100$ を初期状態として、それ以前の濃度プロファイルを計算した結果である。 $x = 0.5$ の濃度ピークが徐々に高くなっていることが分かる。この間、濃度プロファイルにおける短波長成分の増大は生じずに時間反転方向の濃度プロファイルが記述できており、当初の期待通り、本研究のdiffusive solution法によって逆解析への道が開けたと考えられる。本研究では、これに反応項を考慮した解析も実施した。反応拡散方程式を時間軸に対して逆方向に解けるようになると、フェーズフィールド法をはじめとする多くの手法に応用できるため、図1に示した逆方向アプローチが構築されたといえる。しかし、図3と図5を比較すると、 $t = 10$ の濃度プロファイルが一致していない。具体的には、逆解析から記述された濃度ピークが低い。上記の m や W といったパラメータを変化させたり、数値解法を変えたりすると濃度ピークの高さも変わるが、この不一致はそのような計算条件の最適化によって克服されるべき問題ではなく、式(3)のモデルでは拡散項の解析精度が十分ではないことが問題であると明らかになった。そこで、本研究ではこの単純拡散問題を対象に時間反転解析の高精度化に注力した。それを以下に記す。

まず、式(3)のモデルでは、 $\partial c / \partial t$ に過剰な成分が生じてしまい、式(1)の逆問題を忠実に解けていないことが方程式の数学的解析から明らかになった。そこで、式(3)を下記の通り改良した。

$$\frac{\partial P}{\partial t} = \left[W^2 \nabla^2 P + 2(1 - P^2)P + \left(D \left[\partial_{xx}^2 P - 2\partial_{xy}^2 P \frac{\partial_x P}{\partial_y P} + \partial_{yy}^2 P \left(\frac{\partial_x P}{\partial_y P} \right)^2 \right] - |\nabla P| W^2 \nabla \mathbf{n} \right) \frac{|\nabla P|^2}{(\partial_y P)^2} \right] \quad (6)$$

ここで、

$$\nabla \mathbf{n} = \frac{1}{|\nabla P|} \left(\nabla^2 P - \frac{\nabla P \cdot \nabla |\nabla P|}{|\nabla P|} \right) \quad (7)$$

である。このモデルにおいては解析上式(1)を忠実に再現する。そこでこのモデルを使って逆解析を行った。しかし、計算が不安定になる条件が多く現れ、多様な反応拡散系に適用できないと判断した。そこで、次のモデリングを行った。

式(3)及び式(6)の解は、 $(x, c) = (x, y)$ 空間において、tanh型の定常解をもつことを考慮し、

$$\Psi = W \tanh(P) \quad (8)$$

という変数を考えた。この Ψ は $P(x, c) = 0$ 等高線からなる曲線のsigned distance functionに相当する。この Ψ を使って時間発展方程式を書き表すと、

$$\frac{\partial \Psi}{\partial t} = \left[2W P (1 - |\nabla \Psi|^2) - \frac{D \nabla^2 \Psi |\nabla \Psi|^2}{(\partial_y \Psi)^4} \right] \quad (9)$$

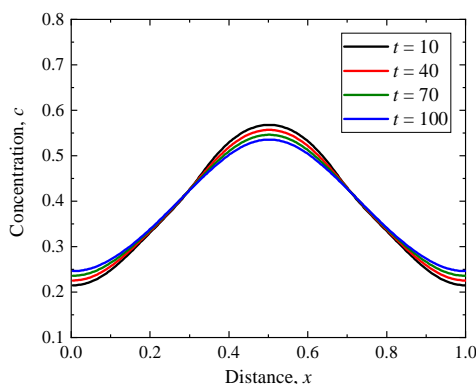


図5 濃度プロファイルの時間変化。
 $t = 100$ から $t = 0$ までを逆方向に解析した結果。

となる。この方程式もまた拡散方程式の解を diffusive に表すことが可能である。この signed distance function を使った方法は、diffuse interface モデルであるフェーズフィールド法の数値計算を安定化させる数値計算スキームである preconditioning と等価なものであり[10]、これより本解法の安定化が達成されると期待した。しかし、このモデルを使っても抜本的な安定化にはつながらなかった。そこで本研究ではさらに次のモデルを構築し、その解析を実施した。

$$\frac{\partial P}{\partial t} + u_y \partial_y P = b \left[\nabla^2 P + \frac{P(1-P^2)}{w^2} - |\nabla P| \nabla \left(\frac{\nabla P}{|\nabla P|} \right) \right] \quad (10)$$

ここで、 b は計算の精度や安定性に関わるパラメータであり、

$$u_y = -D \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} = -\frac{D}{\partial_y P} \left[\partial_{xx}^2 P + 2\partial_{xy}^2 P \frac{\partial_x P}{\partial_y P} - \partial_{yy}^2 P \left(\frac{\partial_x P}{\partial_y P} \right)^2 \right] \quad (11)$$

である。このモデルは $P(x, c)$ を u_y による“移流”で変化させるものであり[11]、式(10)の左辺第二項がその移流項に相当する。このモデルを用いて解析を行った。移流項の計算には、5次精度の WENO スキームを使った。また、単純な前進オイラー差分を用いた。このモデルでも一部の条件で解析の高精度化が確認されたものの、広い計算条件で安定な解を求めることはできなかった。

上記の通り、本研究では、拡散方程式の時間反転プロセスを計算する手法(diffusive solution 法) の開発を試みた。この手法は、フェーズフィールド法の時間反転プロセスに応用することを目指したものであり、最終組織の情報から、その発達途中の組織や初期状態に関する情報を得る手段の構築を目指したものである。その結果、diffusive solution 法によって、一部の条件下であれば濃度プロファイルの短波長成分の増大を押さえながら、時間反転方向に計算をすることが可能になった。本研究の最大の成果はここにある。ただし、多様な計算条件に適用するためには計算コストが高いため種々の条件でも安定に計算できるようにすること、さらにはより高精度な解析ができるようになることを目指して、いくつかのモデリングを行い、その解析を実施した。その結果、有力なものも開発できたが、さらなる改善が求められる。数値解法上の工夫やモデル・パラメータの最適化などいくつかの課題に取り組むことで本研究に知見がより有益なものになると期待される。

参考文献

- [1] A. Franceschetti and A. Zunger, Nature, 402 (1999), 60.
- [2] S.V. Dudiy and A. Zunger, Phys. Rev. Lett., 97 (2006), 046401.
- [3] S.M. Kirkup and M. Wadsworth, Appl. Math. Model., 26 (2002), 1003.
- [4] 半場藤弘, 安部諭, 北澤大輔, 加藤信介, 生産研究, 63 (2011), 69.
- [5] W.J. Boettinger, J.A. Warren, C. Beckermann and A. Karma: Annu. Rev. Mater. Res., 32 (2002), 163.
- [6] M. Ohno and K. Matsuura: Phys. Rev. E, 79 (2009), 031603.
- [7] M. Ohno and K. Matsuura: Acta Mater., 58 (2010), 5749.
- [8] M. Ohno: Phys. Rev. E, 86 (2012), 051603.
- [9] M. Ohno, T. Takaki, and Y. Shibuta: Phys. Rev. E, 96 (2017), 033311.
- [10] K. Glasner: J. Comput. Phys., 174 (2001), 695
- [11] Y. Sun and C. Beckermann, J. Comput. Phys. 220 (2007), 626.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Munekazu Ohno, Yasushi Shibuta, Tomohiro Takaki	4. 巻 60
2. 論文標題 Multi-Phase-Field Modeling of Transformation Kinetics at Multiple Scales and Its Application to Welding of Steel	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Materials Transactions	6. 最初と最後の頁 170-179
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.230/matertrans.ME201711	査読の有無 有
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2件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 大野宗一、高木知弘、澁田靖
2. 発表標題 合金材料における凝固・結晶粒成長の超大規模計算
3. 学会等名 日本セラミックス協会 第52回基礎科学部会セミナー
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 大野宗一
2. 発表標題 スパコンで加速する新材料開発 -マイクロ組織の予測と制御-
3. 学会等名 日本工学アカデミー北海道・東北支部 講演会
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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
---------------------------	-----------------------	----