

令和 4 年 6 月 23 日現在

機関番号：10101

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19H02486

研究課題名(和文)原子・組織アプローチのデータ同化に基づく非平衡固液界面物性の学理開拓

研究課題名(英文) Interfacial properties out of equilibrium estimated based on data assimilation of atomistic and microstructural approaches

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) 12,500,000円

研究成果の概要(和文)：金属材料における界面エネルギーや界面移動度といった固液界面物性は、凝固組織の形成過程を支配する重要な因子である。しかし、非平衡状態における固液界面物性の全容を解明する方法は開発されていなかった。そこで本研究は、組織形成予測の高精度化を目指し、原子シミュレーションと組織形成シミュレーション、そしてデータ同化を組み合わせることで、非平衡状態の固液界面物性値を“on-the-fly”で算出する手法を構築した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

国内外で計算機シミュレーションによる組織予測技術の開発が鋭意進められている。本研究が開発した非平衡界面物性の推定方法は、材料組織予測技術の高精度化と汎用化に直結する。また、本研究で開発した手法は、現在まで未解明であった非平衡状態の界面物性を明らかにするものであるから、材料組織学の新しい展開や界面物性の新たな学理発展につながることも期待される。

研究成果の概要(英文)：Solid-liquid interfacial free energy and mobilities are important quantities that determine solidification microstructures in metallic materials. However, it is currently not possible to obtain these quantities in non-equilibrium states and a method for computing them needs to be developed. In this study, the method for computing the interfacial properties were developed by combining atomistic simulations, microstructural simulations and data assimilation techniques.

研究分野：計算材料科学

キーワード：データ同化 フェーズフィールド法 分子動力学法 界面物性 凝固組織

### 1. 研究開始当初の背景

実用合金の多くは casting・凝固プロセスによって製造されており、材料の高機能化・高品質化を達成するために、凝固組織の高精度制御が求められている。近年、フェーズフィールド(Phase Field, PF)法を初めとする組織形成シミュレーション法の発展によって凝固組織予測が可能になりつつあり、国内外でその開発と応用が進められている。しかし、組織の計算に必要な界面物性の実測値・計算値の精度が乏しいことや値そのものが欠如していることで、シミュレーションの適用範囲が著しく限定されている。既存の実験技術で固液界面物性を高精度に求めることは非常に困難である。そこで、分子動力学法(Molecular Dynamics, MD)シミュレーションによって界面物性を求めることが試みられてきた。しかしながら、全ての界面物性を求めるためには、複数種類のシミュレーションを駆使した高度な解析が必要であり、多大な労力を要することから、全ての界面物性が算出された系はわずかしかない。したがって、全ての界面物性を同時に、そして簡便かつ高精度に求める方法の開発が望まれる。

組織形成は非平衡現象である。したがって、組織形成の議論・予測においては、「非平衡状態の界面物性」を考慮する必要がある。例えば、純物質の凝固は過冷状態で生じるため、界面物性値も過冷状態における値を組織の計算に入力する必要がある。しかし、界面エネルギーの温度依存性に関してはいくつかの研究が報告されているものの、その異方性強度や界面移動度の温度依存性に関しては十分に理解が進んでいない。したがって、非平衡状態における全ての界面物性値を簡便かつ高精度に算出する手法の開発が必要である。特に、界面ダイナミクスを正しく理解するためには、組織変化の動的過程において“その場”で物性値を算出できるような手段が求められる。

### 2. 研究の目的

本研究の目的は、凝固組織予測に必要な非平衡の界面物性値を算出する手段を開発し、非平衡界面物性の詳細を明らかにすることである。具体的には、MD シミュレーション、PF シミュレーションをデータ同化によって組み合わせ、原子間ポテンシャルの情報のみから組織変化中の界面物性値を直接推定する方法を開発すること、そしてその手法を使って界面物性値の温度依存性に関する知見を得ることを目的とした。これを達成するため、以下の項目を実施した。

#### (1) 界面物性値推定方法の開発

双子実験による個々の界面物性値の推定手法の開発を行い、それに続いて双子実験による全ての界面物性値の同時推定手法の開発を実施した。そして、MD の組織変化に基づく推定と精度の検証を実施した。

#### (2) 非平衡状態における界面物性の調査

Fe、Al、Ni の等温凝固を MD シミュレーションによって解析し、その結果をデータ同化における観測データとして、固液界面エネルギーと異方性強度、界面移動度とその異方性パラメータの温度依存性を調査した。

### 3. 研究の方法

本研究では、情報科学の手法であるデータ同化を用いた。これは気象学や海洋学の分野で応用が進んでいる手法であり、観測データをシミュレーションに同化させることで、シミュレーションの精度を向上させたり、シミュレーションに必要な入力パラメータを推定したりするのに用いられる方法である。本研究では、MD から計算された組織変化を観測データとして、PF シミュレーションに同化させることで固液界面物性値の推定を試みた。その概要を図1に模式的に示す。大規模 MD シミュレーションから数十 nm ~ 数百 μm のシステムにおける凝固組織の時間変化を計算し、その結果を用いて PF シミュレーションとデータ同化することで、固液界面物性値を算出する手法である。これは、原子・組織レベルの手法を融合する新しいマルチスケール手法である。

PF 法は diffuse interface に立脚した組織の計算方法であり、界面位置を直接追跡することなく組織変化を計算できる手法である。特に、自由境界問題を正確に解く手法として発展している。

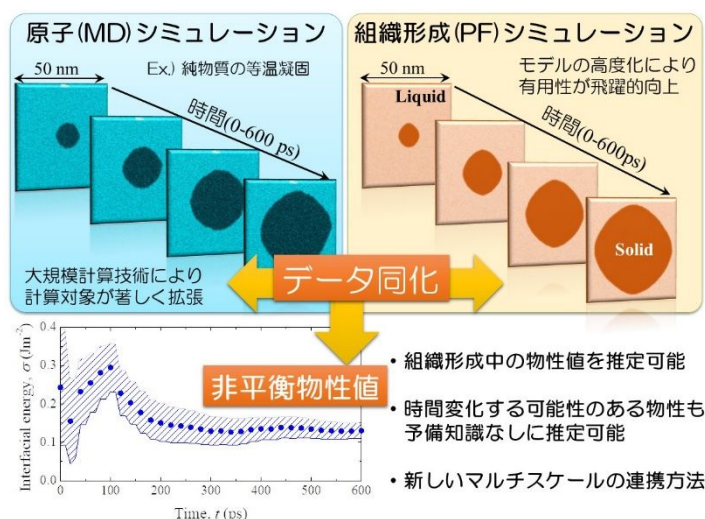


図1 本手法の概要

PF 法において純物質の等温凝固は、下記の方程式で記述される。

$$\begin{aligned} a\beta_0 a_c(\mathbf{n}) a_k(\mathbf{n}) \partial_t \phi = \nabla(W^2 a_c(\mathbf{n})^2 \nabla \phi) + \sum_{i=x,y,z} \partial_i \left( |\nabla \phi|^2 W^2 a_c(\mathbf{n}) \frac{\partial a_c(\mathbf{n})}{\partial (\partial_i \phi)} \right) \\ + \phi - \phi^3 - \lambda(1 - \phi^2)^2 u + \xi(\mathbf{n}) \end{aligned} \quad (1)$$

ここで、 $\phi$ は秩序変数であり、 $\phi = +1$ で固相、 $\phi = -1$ で液相を表す変数である。また、 $a$ は定数、 $W$ は界面幅、 $\lambda$ はカップリング定数であり、これらは界面エネルギー $\sigma_0$ と関連づけられる。 $\beta_0$ は界面移動度と関係する動力学係数である。また、 $u$ は無次元過冷度である。また、 $\mathbf{n}$ は固液界面の単位法線ベクトルを表し、 $a_c(\mathbf{n})$ と $a_k(\mathbf{n})$ はそれぞれ以下のように与えられる。

$$a_c(\mathbf{n}) = (1 - 3\epsilon_4) \left( 1 + \frac{4\epsilon_4}{1 - 3\epsilon_4} (n_x^4 + n_y^4 + n_z^4) \right) \quad (2)$$

$$a_k(\mathbf{n}) = (1 + 3\epsilon_k) \left( 1 - \frac{4\epsilon_k}{1 + 3\epsilon_k} (n_x^4 + n_y^4 + n_z^4) \right) \quad (3)$$

ここで、 $n_i$ はベクトル $\mathbf{n}$ の成分、 $\epsilon_4$ と $\epsilon_k$ はそれぞれ界面エネルギーと動力学係数の異方性パラメータである。式(1)を解くと、凝固中の Gibbs-Thomson 効果が再現されることになる。本研究では、固液界面エネルギー $\sigma_0$ 、動力学係数 $\beta_0$ 、さらに二つの異方性パラメータ $\epsilon_4$ と $\epsilon_k$ の全ての固液界面物性値を MD とデータ同化を組み合わせて求めた。

ここでは、純 Fe の研究成果を例として説明する。過冷液体における単一の固相の二次元成長過程を MD シミュレーションによって解析した結果[1]をデータ同化の観測データとした。ポテンシャルには Finnis-Sinclair(FS)ポテンシャルを用い、系全体の原子数(約百万原子)、温度、そして圧力を一定に保ち(NPT アンサンブル)、 $53.4 \times 53.4 \times 4.3$  nm の擬二次元空間における過冷液体中の固相の成長過程を解析した。系全体の過冷度 $\Delta T$ は $\Delta T = 200$  K、 $300$  K、 $500$  K の三種類とした。本研究では、それらの計算結果をデータ同化に用いた。ここで、MD から出力されるデータは、原子の座標と速度であり、そのままではフェーズフィールド法とのデータ同化に適さない。そこで、MD の計算結果を  $128 \times 128$  格子からなる二次元空間における秩序変数の空間プロファイルに変換してデータ同化に用いた。凝固時間  $300$  ps の組織変化を  $10$  ps 毎に観測データとして用いた。

データ同化として、逐次型手法であるアンサンブル・カルマンフィルタ(Ensemble Kalman Filter, EnKF)と粒子フィルタの二つを用い、それぞれに関して双子実験によって界面物性値の推定精度を検証し、実際の MD の結果を用いて物性値の推定を行った。

#### 4. 研究成果

EnKF から推定した結果の例を説明する。EnKF では、初期状態と対象パラメータの値が異なる多数のシミュレーションを同時に実行し、観測データがある時刻でフィルタリングを行うことで、それらのシミュレーションの状態とパラメータを修正していく。そのシミュレーションを粒子と呼び、粒子数が多ければ一般に推定精度の向上が期待できる。ただし、粒子数が多ければ計算コストが増加する。本研究では、双子実験において粒子数を  $128$  から  $2048$  まで変化させて推定精度を検証した。その結果、粒子数が  $512$  以上であれば、精度に大きな差が生じなかったため、それ以降粒子数を  $512$  として解析を行った。

双子実験では、EnKF におけるハイパーパラメータを最適化した。そして、四つの界面物性値を同時に推定できることが示された。そこで、MD の計算結果を用いた推定を実施した。まず、二つのパラメータのみが推定可能であるかを検証した。そこで、FS ポテンシャルを用いた過去の MD 研究[1]で求められた温度平均値 $\beta_0 = 6.15 \times 10^{-3}$  s/m 及び $\epsilon_k = 0.085$ を用いて、 $\sigma_0$ と $\epsilon_4$ を推定した。その推定結果を図 2 に示す。プロットが各時刻の推定値、斜線部は標準偏差内の領域を表す。また、(a)における青い実線は、FS ポテンシャルを用いた過去の研究で、核生成理論に基づいて算出した $\sigma_0$ の温度平均値を表す。 $\sigma_0$ と $\epsilon_4$ が時間とともに一定値に収束する挙動を示している。そして、 $\sigma_0$ の収束値は過去の計算結果と一致している。このことより、本手法で界面物性値を精度良く求められることが分かる。そこで、四つの界面物性値を同時に推定することに取り組んだ。

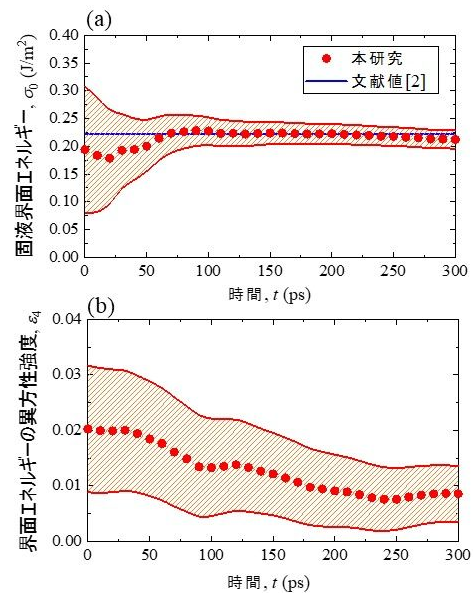


図 2 純Feにおける $\sigma_0$ と $\epsilon_k$ の推定結果

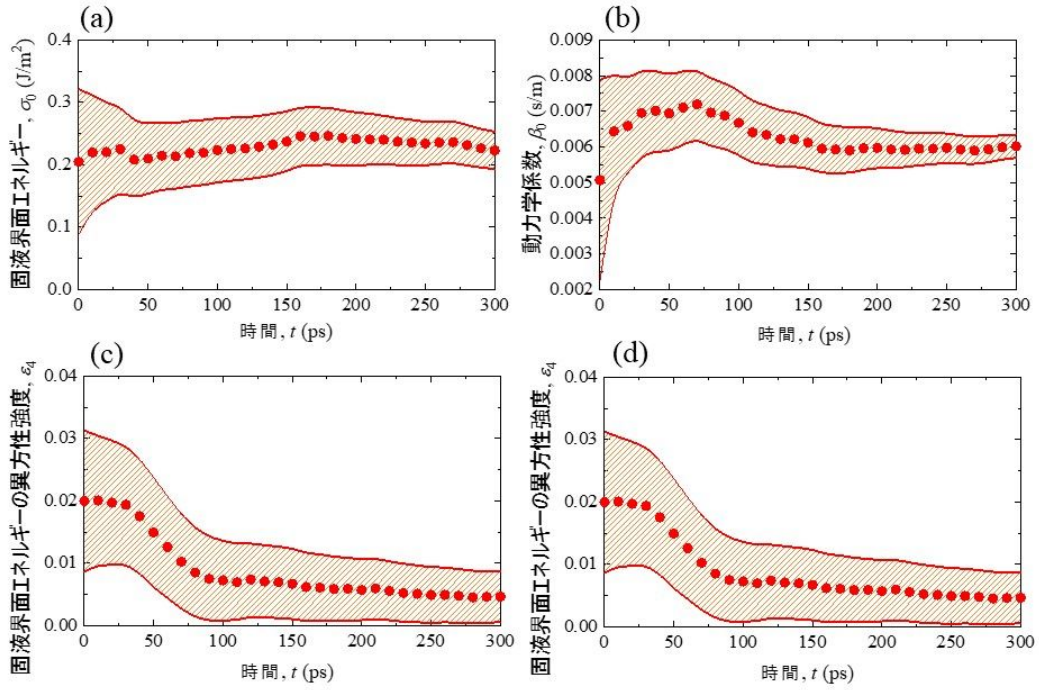


図3 純Feの $\Delta T = 200 K$ における界面物性値の推定結果

図3に示したのは、 $\Delta T = 200 K$ におけるMDデータを用いた推定結果の例である。プロットが各時刻における推定値、斜線部は標準偏差の領域を表す。全ての物性値が凝固の後期に一定値に収束している。つまり、四つの固液界面物性値を単一のMDシミュレーションから推定することに成功した。特に、組織変化中の過冷状態の界面物性値が推定できることもこの手法の特長の一つである。

界面物性値の温度依存性の結果を図4に示す。図4(a)に示したのは固液界面エネルギーの温度依存性である。横軸は無次元過冷度であり、0が純Feの融点に相当する。緑色のプロットは過去のMD研究や実験から得られた値を示しており、MDで用いた原子間ポテンシャルの種類に応じてプロットの種類を変えている。赤色のプロットが本研究から求めた結果である。本研究の結果は、固液界面エネルギーが融点近傍で負の温度依存性を示すことを示している。青い点線で示したのは、FSポテンシャルによって過去のMD研究[2]で求められた値である。その研究では、古典核生成理論に基づいて臨界核サイズと過冷度の関係から界面エネルギーを算出している。これは温度平均値であるため、各過冷度における臨界核サイズのデータから、各温度における固液界面エネルギーを再計算し、その結果を青色のプロットで示した。この結果も負の温度依存性を示しており、本研究の結果を支持する事実が得られた。

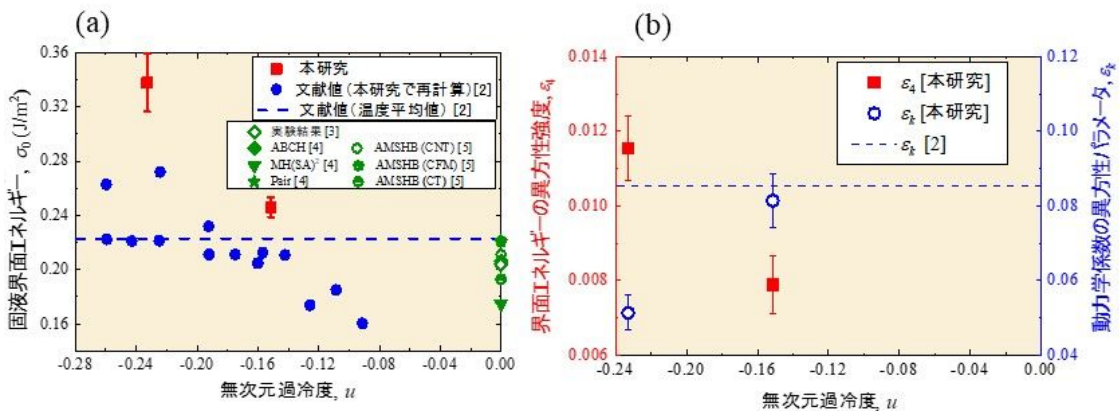


図4 純Feの界面物性値の温度依存性

図 4(b)は $\epsilon_4$ と $\epsilon_k$ の温度依存性を表す。破線は $\epsilon_k$ の文献値であり、温度平均値である。本研究から推定した値は、この平均値と矛盾しない。特に重要な点は、 $\epsilon_4$ は負の温度依存性、 $\epsilon_k$ は正の温度依存性を示すことが明らかになったことである。このような温度依存性は過去に十分議論されていなかったものであり、今後本手法を応用することで、非平衡状態の界面物性値に関して多くの知見が得られると期待される。なお、 $\beta_0$ は温度に対してほぼ一定であったため、ここではその結果を割愛する。

以上まとめると、本研究では、MD シミュレーション、PF シミュレーションをデータ同化によって組み合わせ、原子間ポテンシャルの情報のみから組織変化中の界面物性値を直接推定する方法を開発した。これによって、単一の MD シミュレーションから、固液界面エネルギーと界面移動度、さらにそれらの異方性パラメータの値を推定することが可能になった。本手法の特長は、組織の解析に必要な非平衡状態の界面物性値を推定可能であることにもある。本研究では、純金属における界面物性値の温度依存性を調査し、固液界面エネルギーが融点近傍で負の温度依存性を示すこと、さらに異方性パラメータにも温度依存性が生じることが明らかになった。本研究の成果によって、今後、材料組織予測技術の高精度化と汎用化がより一層進展すると期待される。

#### 参考文献

- [1] Y. Shibuta, K. Oguchi, and M. Ohno, *Scr. Mater.* 86, 20 (2014).
- [2] Y. Watanabe, Y. Shibuta, and T. Suzuki, *ISIJ Int.* 50, 1158 (2000).
- [3] D. Turnbull, *J. Appl. Phys.* 21, 1022 (1950).
- [4] D. Y. Sun, M. Asta, and J. J. Hoyt, *Phys. Rev. B* 69, 174103, (2004).
- [5] J. Liu, R. L. Davidchack, and H. B. Dong, *Comput. Mater. Sci.* 74, 92 (2013).

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 5件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Ohno Munekazu, Oka Yukimi, Sakane Shinji, Shibuta Yasushi, Takaki Tomohiro	4. 巻 101
2. 論文標題 Bayesian inference of solid-liquid interfacial properties out of equilibrium	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review E	6. 最初と最後の頁 52121
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevE.101.052121	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 -
1. 著者名 Lee Jaehoon, Ohno Munekazu, Shibuta Yasushi, Takaki Tomohiro	4. 巻 558
2. 論文標題 Uniquely selected primary dendrite arm spacing during competitive growth of columnar grains in Al-Cu alloy	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Crystal Growth	6. 最初と最後の頁 126014 ~ 126014
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.jcrysgro.2020.126014	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 -
1. 著者名 大野宗一、澁田靖、高木知弘	4. 巻 59
2. 論文標題 凝固組織のハイパフォーマンス・コンピューティングとクロススケール・アプローチへの新展開	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 まてりあ	6. 最初と最後の頁 139-144
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.2320/materia.59.139	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 -
1. 著者名 Nagatsuma Yuhi, Ohno Munekazu, Takaki Tomohiro, Shibuta Yasushi	4. 巻 11
2. 論文標題 Bayesian Data Assimilation of Temperature Dependence of Solid-Liquid Interfacial Properties of Nickel	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Nanomaterials	6. 最初と最後の頁 2308
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.3390/nano11092308	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 Kim Geunwoo, Yamada Ryo, Takaki Tomohiro, Shibuta Yasushi, Ohno Munekazu	4. 巻 207
2. 論文標題 Inverse analysis of anisotropy of solid-liquid interfacial free energy based on machine learning	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Computational Materials Science	6. 最初と最後の頁 111294
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.commatsci.2022.111294	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 -

1. 著者名 Yamada Ryo, Kudo Mikihiro, Kim Geunwoo, Takaki Tomohiro, Shibuta Yasushi, Ohno Munekazu	4. 巻 204
2. 論文標題 Time invariance of three-dimensional morphology of equiaxed dendrite: A phase-field study	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Computational Materials Science	6. 最初と最後の頁 111173
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.commatsci.2021.111173	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12件 (うち招待講演 4件 / うち国際学会 5件)

1. 発表者名 大野宗一、岡ゆきみ、坂根慎治、澁田靖、高木知弘
2. 発表標題 分子動力学法とフェーズフィールド法のデータ同化による純Feの固液界面物性値の推定
3. 学会等名 日本鉄鋼協会 第181回春季講演大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 M. Ohno, Y. Oka, T. Takaki, S. Sakane, Y. Shibuta
2. 発表標題 Solid-liquid interfacial properties estimated from phase-field and molecular dynamics simulations
3. 学会等名 The 4th International Symposium on Phase-Field Modelling in Materials Science (PF19) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 大野宗一
2. 発表標題 最近の組織予測とデータ同化に基づくパラメータ推定
3. 学会等名 第5回鑄造CAE研究部会（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 岡ゆきみ、大野宗一
2. 発表標題 データ同化に基づいた固液界面エネルギーと液相内熱拡散率の同時推定
3. 学会等名 日本鉄鋼協会 第178回秋季講演大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 M. Ohno, T. Takaki and Y. Shibuta
2. 発表標題 Data assimilation of phase-field and molecular dynamics simulations: Estimation of solid-liquid interface properties out of equilibrium
3. 学会等名 2021 International Conference on Phase-Field Method and Related Methods（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 大野宗一
2. 発表標題 鑄造・凝固における組織形成シミュレーションの高度化と高精度化
3. 学会等名 日本金属学会 2022年春季(第170回)講演大会（招待講演）
4. 発表年 2022年



1. 発表者名 大野宗一
2. 発表標題 データ科学による組織形成シミュレーションの高精度化及び高度化の試み
3. 学会等名 021年度日本金属学会・日本鉄鋼協会両北海道支部合同冬季講演大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 大野宗一
2. 発表標題 定量的フェーズフィールド・モデルの基礎、応用および限界
3. 学会等名 日本学術振興会製鋼第19委員会凝固プロセス研究会第85回会議
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 工藤 幹央、山田 亮、澁田 靖、高木 知弘、大野 宗一
2. 発表標題 三次元等軸デンドライトの形態変化のシミュレーション解析
3. 学会等名 日本金属学会 2021年秋期講演大会（第169回）大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 M. Ohno
2. 発表標題 Phase-field modeling and high-performance computing of dendritic growth
3. 学会等名 The 11th International Conference on the Science and Technology for Advanced Ceramics (STAC-11), (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 G. Kim, T. Takaki, Y. Shibuta, S. Sakane, M. Ohno
2. 発表標題 Phase-field simulation on morphological diversity of solidification structure with different preferred growth directions
3. 学会等名 The 4th International Symposium on Phase-Field Modelling in Materials Science (PF19) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 M. Ohno, Y. Oka, S. Sakane, T. Takaki, Y. Shibuta
2. 発表標題 Bayesian Interference of Solid-liquid Interface properties Out of Equilibrium Based on Phase-field and Molecular Dynamics Simulations
3. 学会等名 TMS 149th Annual Meeting \$ Exhibition, TMS2020 (国際学会)
4. 発表年 2020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
研究分担者	澁田 靖 (Shibuta Yasushi) (90401124)	東京大学・大学院工学系研究科(工学部)・教授  (12601)	

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