

令和元年6月14日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16H04490

研究課題名(和文) 超大規模分子動力学法解析に立脚した合金組織形成過程の俯瞰的理解と高精度制御

研究課題名(英文) Very large scale molecular dynamics simulations for revealing and controlling of microstructure formation of alloys

研究代表者

澁田 靖 (Shibuta, Yasushi)

東京大学・大学院工学系研究科(工学部)・准教授

研究者番号：90401124

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,600,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では合金組織のさらなる高精度制御に向けて、核生成・凝固、粒成長過程の複合的ダイナミクスを系統的に解析し、合金組織形成過程の支配因子を原子スケールの動力学解析により解明することを目的とし、具体的に10億原子分子動力学(MD)計算により均質核生成過程における不均質性など古典核生成理論の範囲を超えた核生成の原子論的描像を明らかにした。また結晶粒淘汰過程における幾何学因子、粒界モビリティ・粒界エネルギーの時間変化を解析し、理想粒成長の二乗則からのずれの原因を明らかにした。さらに合金系ポテンシャルの溶質分配特性を考察し、合金系大規模MD計算実現の足掛かりを作った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

現在、国内外における組織生成過程の計算研究のほとんどがフェーズフィールド法などの現象論的手法に留まっているのに対し、ミクロ力学に厳密に従う決定論的手法の立場から核生成・組織生成過程を解析し、均質核生成中における不均質性など古典理論では議論できなかった原子論的描像を明らかにした点など学術的意義が大きい。また国内外に先駆け、世界最大スケールの大規模計算に基づく独創的な研究に率先して取り組み、当該分野のイニシアティブを取り続けていることは、来るべきポスト「京」(次世代スパコン)時代に計算機支援による材料設計の実現に向けたロードモデルを確立するという大きな意義がある。

研究成果の概要(英文)：In this study, complex dynamics in nucleation, solidification and grain growth is studied to understand key factors on microstructure formation of alloy systems from atomistic viewpoint for the better control of microstructure in alloy products with a high degree of accuracy. Practically, unique atomistic pictures in nucleation (e.g., heterogeneity in homogeneous nucleation), which are not conceived by conventional classical nucleation theory, are revealed based on billion-atom MD simulation. In addition, deviation from parabolic law during the grain growth is discussed focusing on geometric factor, mobility and energy of grain boundary. Moreover, the solute partition at the solid-liquid interface is examined for interatomic potentials for alloy system for further large-scale MD simulation for alloy system.

研究分野：マテリアルモデリング

キーワード：金属物性 大規模分子動力学 凝固 粒成長 核生成

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

合金材料の更なる高機能化・高品質化を達成するため、製造プロセス初段階の凝固過程における材料組織の高精度制御が強く求められている。しかし凝固現象は流動・伝熱・溶質拡散等のマルチ・フィジックスが関与することから凝固組織を高精度で制御することは大変困難である[1]。また凝固過程のダイナミクスを直接観察することが困難なことから、凝固・組織生成過程のダイナミクスは主 Pott モデルに基づくモンテカルロ(MC)法やギンツブルグ・ランダウ自由エネルギー変分に基づくフェーズフィールド法(PFM)シミュレーションにより議論が進んできた。PFM では界面エネルギー、カインティック係数やその異方性などの界面パラメータが生成物形態に大きく影響するが、一部の定量的解析を除き、基本的に得られる解析結果が実験形態と合致するようにパラメータを経験的に決定する。このような現象論的手法の弱点を克服すべく、近年、分子動力学(MD)法などの原子スケール解析手法によりパラメータを決定する試みが盛んである。例えば Capillary fluctuation method や Gibbs-Thomson 効果を利用した CNT 法などにより実験的に高精度で測定することが困難な固液界面エネルギーを系統的に求められるようになった。

残された課題の一つに核生成が挙げられる。PFM では核生成の取り扱いが原理上困難であり、予め決められた確率で初期核を配置するのが一般的である。一方 MD で核生成を取り扱うことは可能であるが、時空間スケールが一般に十分でなく定量的な議論は長年困難であった。近年の計算機環境の飛躍的向上により、核生成・凝固、粒成長過程を超大規模 MD 法で解析することが期待されるが、組織形成過程の支配因子を原子スケールで特定する段階には至っていないのが研究開始当初の現状であった。

2. 研究の目的

上記の現状を踏まえ、本研究では合金組織のさらなる高精度制御に向けて、核生成・凝固、粒成長過程の複合的ダイナミクスを系統的に解析し、合金組織形成過程の支配因子を原子スケールの分子動力学解析により解明することを目的とする。(1) 1億原子以上の超大規模分子動力学法により核生成・凝固・粒成長過程の全原子軌跡を解析し、原子スケールの様々な静的・動的因子の中から組織形成ダイナミクス支配因子を特定する。(2) 核生成・相変化・粒成長に関する経験則を全原子軌跡のみから抽出し、マクロ経験則とミクロ力学の対応を正しく理解する。(3) 合金組織凝固・結晶成長過程における溶質分配の影響を明らかにすべく、合金固液界面における溶質分配の動的挙動を明らかにする。これらの知見を俯瞰的に統合し、原子スケール計算研究に立脚した合金組織高精度制御実現を目指す。

3. 研究の方法

上記の目的(1)~(3)について MD 法をメインに解析を行う。具体的には(1)に関しては1億原子以上の超大規模 MD 計算を実行すべく、マルチ GPU に対応した超大規模 MD 法解析コードの開発を行う。開発したコードを用いて一辺 100~数 100 nm 程度(1~10億原子)の系における立方体セルを用いた純鉄三次元核生成・粒成長過程計算を行う。また高精度な原子属性判別手法を開発し、原子軌跡から三次元粒成長規則を MD 計算結果より直接導出する。さらに膨大な物理量を格子へマッピングすることで、データ量圧縮を考慮した可視化ツールを構築する。(2)については(1)の結果を基に成長次元指数や経験式指数を抽出し、核生成・相変化に関する経験則とミクロ力学との因果関係を俯瞰的に考察する。(3)については原子スケールの情報のみから直接的に合金固液界面物性を導出する方法の確立を目標とし、圧力温度一定条件下での固液共存系を保持して長時間 MD 計算を行い、固液界面近傍の溶質濃度分布の時間変化を調べ、一定濃度に収束した後の各相溶質濃度から固相線・液相線を導出する。さらに得られた平衡濃度の固液界面を作成し、Capillary fluctuation 法および Fehner と Vosko の関係式より合金系の固液界面エネルギーを導出する。

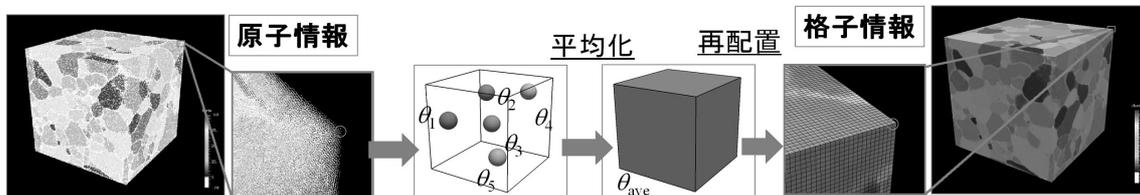


図1 原子情報から格子情報へのマッピングイメージ

4. 研究成果

(1) 核生成・凝固・粒成長過程の超大規模分子動力学法シミュレーション

まず、純鉄過冷融液からの同時多発的な核生成が多結晶組織を形成する過程を解析した。GPU で並列可能な MD コードを開発し、1,040,000,000 原子からなる立方体系(一辺約 0.24 nm)において純鉄過冷融液を 2,000 ps (時間刻み 5 fs) の間 $0.58T_m$ (T_m は FS ポテンシャルの融点)に保持して均質核生成を発生させ、得られた全結晶粒の方位解析を行った。計算には GPU スパコン TSUBAME 2.5 上で 512 GPU を用いて、マルチ GPU 並列計算を実行した。

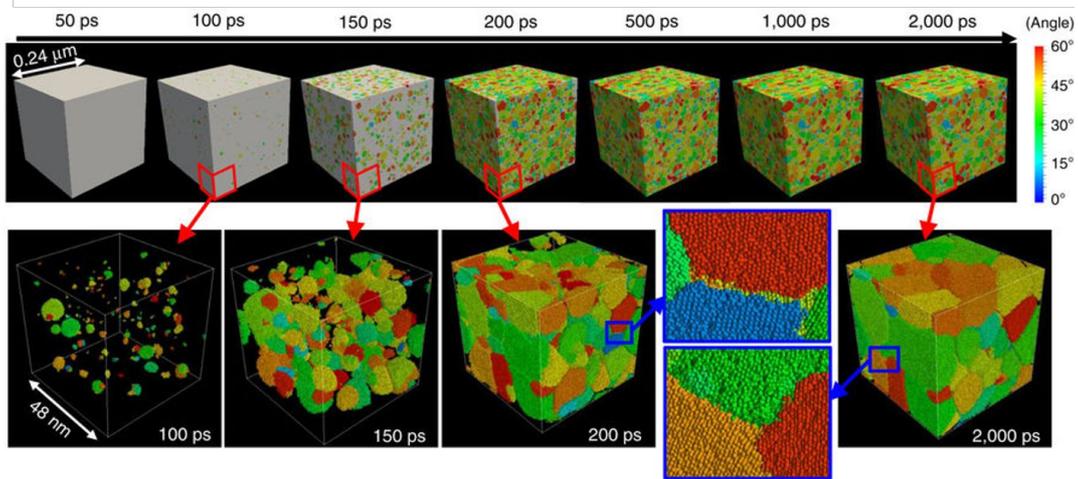


図2 純鉄過冷却融液からの均質核生成・凝固過程の超大規模 MD シミュレーション [1]

図2に計算セルのスナップショット及び一部原子の拡大図を示す。100 ps あたりから過冷却融液中より複数の核が同時発生し、凝固成長する様子が確認された。500 ps までにはほぼすべての過冷却融液が凝固し、多結晶組織が生成された。図3に核生成・凝固過程で発生した全結晶粒について隣接結晶粒との方位差角を出現頻度の関数としてまとめたものである。隣接粒との関係が完全にランダムであれば Mackenzie 分布(図中の点線) [2]となる。MD の計算結果から得られた分布は大部分において Mackenzie 分布と一致し、多くの隣接粒の方位差関係はランダムであるといえる。しかし 60°付近に明らかなピークがみられることから一部特定の方位差関係が頻出していることが予想される。方位差関係 60°で定義される粒界には $\Sigma 3$ となる粒界が含まれる [3]。そのうち(112) $\Sigma 3$ 粒界 (<110>軸に対して傾角 109.47°) は粒界エネルギーが他の対称傾角粒界に比べ極端に小さい [4]。実際、傾角 109.47°の粒界を介した複数結晶粒の集合体が多数確認された [1]。

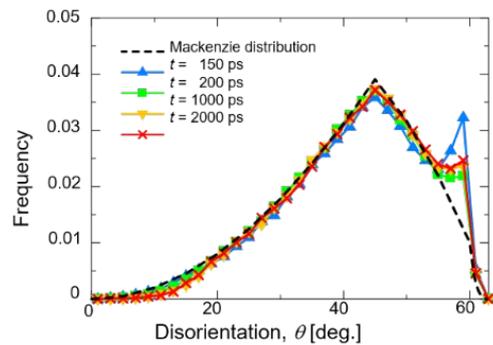


図3 隣接粒間の方位差関係 [1]

(2) 原子情報のみからのマクロ経験則パラメータ抽出

次に長時間 MD 計算により、自発的な核生成を経て生成された微細組織構造において結晶粒が淘汰される過程を解析した図4(a)に 113,246,208 原子からなる純鉄過冷却融液を 110 nm³ の立方体セル中で、0.58T_m で 30,000 ps 間保持して得られた結晶粒組織構造を示す [5]。同時多発的な核生成により微細組織構造が得られた後 (500 ps)、小さな結晶粒が消滅・淘汰され、大きな粒が優先成長する様子が確認できる。理想粒成長では平均粒径の二乗が時間比例する [6] ことが知られるが、実際の多くの事例では二乗則からずれ、本研究結果も二乗則からずれる。その原因を考察するため、二乗則の比例係数に含まれる幾何学因子 α 、及び粒界モビリティ M と粒界エネルギー σ の積 $M\sigma$ (reduced mobility) の時間変化を MD から求めたところ (図1(b))、 α は粒成長過程においてほとんど変化しないのに対し、 $M\sigma$ は大きく減少することが分かった。

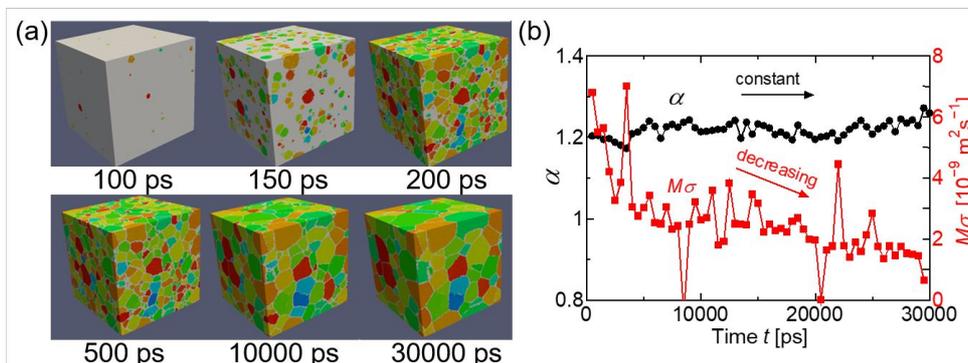


図4 (a) 長時間 MD による粒成長過程 (b) α (幾何学因子), $M\sigma$ (reduced mobility)の時間変化

(3) 合金固液界面物性の導出

合金系に関しては溶質分配を考慮したポテンシャル関数が確立していないことから、合金組織凝固・結晶成長過程の解析例は皆無である。そこで合金固液界面の動的挙動に着目し、溶質分配に関する特性を調査した。具体的に semi grand canonical Monte Carlo(SGCMC)法および、長時間 MD 計算による溶質分配動的挙動より Fe-Cr 合金の溶質分配組成の導出を行い両者の比較を行った(図 5)。SGCMC 法では純 Fe に近い Cr 濃度の範囲でのみしか固相線・液相線温度を導出でき

なかったのに対し、MD 計算からは全組成区間にわたり固相線・液相線温度を導出することができた[7]。さらに、得られた状態図の溶質分配組成を基に、固液界面エネルギーの Cr 濃度依存性を検討した。Cr 濃度の増加に伴い固液界面エネルギーは一旦減少し、19at%Cr あたりで極小を取った後、増加するという事を明らかにした(図 3)。一方で、Cr 濃度に関わらず、固液界面エネルギーの値が(100), (110), (111)面の順に小さくなることも明らかにした[8]。

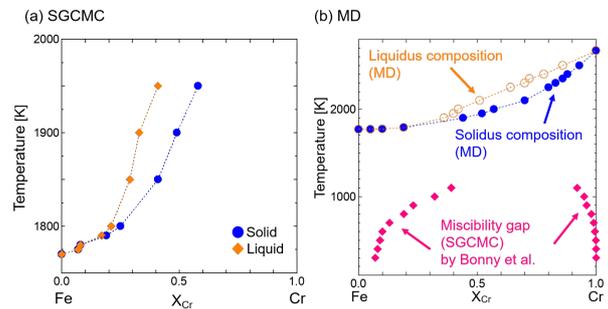


図 5 SGCMC ・ MD による固相線・液相線の導出[7]

<引用文献>

- [1] Y. Shibuta, S. Sakane, E. Miyoshi, S. Okita, T. Takaki, M. Ohno, Nat. Commun., 8 (2017) 10 (5-).
- [2] J.K. Mackenzie, Biometrika, 45 (1958) 229.
- [3] D.L. Olmsted, S.M. Foiles, E.A. Holm, Acta Mater., 3694 (2009) 3694.
- [4] D. Wolf, Philos. Mag. A, 62 (1990) 447.
- [5] S. Okita, E. Miyoshi, S. Sakane, T. Takaki, M. Ohno, Y. Shibuta, Acta Mater., 153 (2018) 108 (5-).
- [6] M. Hillert, Acta Metall. 13 (1965) 227.
- [7] K. Ueno, Y. Shibuta, Materialia, 4 (2018) 553 (5-).
- [8] K. Ueno, Y. Shibuta, Comp. Mater. Sci., 167 (2019) 1-7 (5-).

5 . 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 16 件)

K. Ueno, Y. Shibuta

"Composition dependence of solid-liquid interfacial energy of Fe-Cr binary alloy from molecular dynamics simulations"

Computational Materials Science, 167 (2019) 1-7. [doi:10.1016/j.commatsci.2019.05.023] (査読有)

Y. Shibuta, S. Sakane, E. Miyoshi, T. Takaki, M. Ohno

"Micrometer-scale molecular dynamics simulation of microstructure formation linked with multi-phase-field simulation in same space scale"

Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering, 27 (2019) 054002.

[doi:10.1088/1361-651X/ab1d28] (査読有)

E. Miyoshi, T. Takaki, M. Ohno, Y. Shibuta, S. Sakane, T. Aoki

"Large-scale phase-field simulation of three-dimensional isotropic grain growth in polycrystalline thin films", Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering, 27 (2019) 054003.

[doi:10.1088/1361-651X/ab1e8b] (査読有)

T. Fujinaga, Y. Shibuta

"Molecular dynamics simulation of athermal heterogeneous nucleation of solidification"

Computational Materials Science, 164 (2019) 74-81. [doi:10.1016/j.commatsci.2019.03.061] (査読有)

Y. Shibuta

"Estimation of thermodynamic and interfacial parameters of metallic materials by molecular dynamics simulations", Materials Transactions, 60 (2019) 180-188. [doi:10.2320/matertrans.ME201712] (査読有)

K. Ueno, Y. Shibuta

"Solute partition at solid-liquid interface of binary alloy from molecular dynamics simulation"

Materialia, 4 (2018) 553-557. [10.1016/j.mta.2018.11.011] (査読有)

Y. Shibuta, M. Ohno, T. Takaki

"Advent of cross-scale modeling: High-performance computing of solidification and grain growth"

Advanced Theory and Simulations, 1 (2018) 1800065. [doi:10.1002/adts.201800065] (査読有)
(招待論文)

E. Miyoshi, T. Takaki, M. Ohno, Y. Shibuta, S. Sakane, T. Shimokawabe, T. Aoki
"Correlation between three-dimensional and cross-sectional characteristics of ideal grain growth:
large-scale phase-field simulation study"
Journal of Materials Science, 53 (2018) 15165-15180. [doi:10.1007/s10853-018-2680-y] (査読有)

E. Miyoshi, T. Takaki, Y. Shibuta, M. Ohno
"Bridging molecular dynamics and phase-field methods for grain growth prediction"
Computational Materials Science, 152 (2018) 118-124.[doi:10.1016/j.commatsci.2018.05.046] (査読有)

S. Okita, E. Miyoshi, S. Sakane, T. Takaki, M. Ohno, Y. Shibuta
"Grain growth kinetics in submicrometer-scale molecular dynamics simulation"
Acta Materialia, 153 (2018) 108-116. [doi:10.1016/j.actamat.2018.04.060] (査読有)

澁田靖「金属材料の組織形成および凝固プロセスに関する分子動力学」
分子シミュレーション研究会会誌「アンサンブル」, 19(3) (2017) 158-164.
[doi:10.11436/mssj.19.158] (査読有, 解説論文)

E. Miyoshi, T. Takaki*, M. Ohno, Y. Shibuta, S. Sakane, T. Shimokawabe, T. Aoki
"Ultra-large-scale phase-field simulation study of ideal grain growth"
npj Computational Materials, 3 (2017) 25. [doi:10.1038/s41524-017-0029-8] (査読有)

S.K. Deb Nath, Y. Shibuta, M. Ohno, T. Takaki, T. Mohri
"A molecular dynamics study of partitionless solidification and melting of Al-Cu alloys"
ISIJ International, 57 (2017) 1774-1779. [doi:10.2355/isijinternational.ISIJINT-2017-221] (査読有)

Y. Shibuta, S. Sakane, E. Miyoshi, S. Okita, T. Takaki, M. Ohno
"Heterogeneity in homogeneous nucleation from billion-atom molecular dynamics simulation of
solidification of pure metal"
Nature Communications, 8 (2017) 10. [doi:10.1038/s41467-017-00017-5] (査読有)

S. Okita, W. Verestek, S. Sakane, T. Takaki, M. Ohno, Y. Shibuta
"Molecular dynamics simulations investigating consecutive nucleation, solidification and grain growth
in a twelve-million-atom Fe-system"
Journal of Crystal Growth, 474 (2017) 140-145. [doi:10.1016/j.jcrysgro.2016.11.120] (査読有)

S. Okita, Y. Shibuta
"Grain growth in large-scale molecular dynamics simulation: linkage between atomic configuration and
von Neumann-Mullins relation"
ISIJ International, 56 (2016) 2199-2207. [doi:10.2355/isijinternational.ISIJINT-2016-408] (査読有)

[学会発表](計 17 件)

澁田靖・大喜多慎・三好英輔・坂根慎治・高木知弘・大野宗一
「超大規模分子動力学法シミュレーションによる核生成・凝固・粒成長過程の統一的理解」
日本鉄鋼協会 第 177 回春季講演大会, 東京, 2019 年 3 月

Y. Shibuta, S. Okita, S. Sakane, E. Miyoshi, T. Takaki, M. Ohno
"Microstructure formation in large-scale molecular dynamics simulation"
MMM2018, Osaka, Japan, 2018 年 10 月 (招待講演)

藤永拓也・澁田靖「分子動力学法シミュレーションによる Al 過冷融液からの不均質核生成」
日本金属学会 2018 年秋期講演大会, 仙台, 2018 年 9 月

折原駿介・澁田靖
「Ni 過冷融液からの均質核生成・組織生成過程の分子動力学シミュレーション」
日本金属学会 2018 年秋期講演大会, 仙台, 2018 年 9 月

上野健祥・澁田靖「分子動力学法シミュレーションによる Fe-Cr 合金固液界面物性の導出」
日本鉄鋼協会 第 176 回秋期講演大会, 仙台, 2018 年 9 月

Y. Shibuta, S. Sakane, E. Miyoshi, S. Okita, T. Takaki, M. Ohno

"Molecular dynamics approach to solidification microstructure"
CDMS2018, Phoenix, AZ, USA, 2018年3月(招待講演)

Y. Shibuta, S. Sakane, E. Miyoshi, S. Okita, T. Takaki, M. Ohno
"Heterogeneity in homogeneous nucleation from billion-atom molecular dynamics simulation by multi-GPUs parallel computation"
2017 MRS Fall Meeting & Exhibit, Boston, USA, 2017年11月

大喜多慎・澁田靖「粒成長停滞機構解明に向けた超大規模分子動力学法シミュレーション」
日本鉄鋼協会 第174回秋季講演大会, 札幌, 2017年9月

Y. Shibuta, S. Sakane, E. Miyoshi, S. Okita, T. Takaki, M. Ohno
"Molecular dynamics approach to nucleation and solidification"
MCSP2017, Beijing, China, 2017年8月(招待講演)

S. Okita, S. Sakane, E. Miyoshi, T. Takaki, M. Ohno, Y. Shibuta
"Grain growth in large-scale molecular dynamics simulation", MCSP2017, Beijing, China, 2017年8月

Y. Shibuta, S. Sakane, E. Miyoshi, S. Okita, T. Takaki, M. Ohno
"Very large scale molecular dynamics simulation of solidification"
SP17 (6th Decennial International Conference on Solidification Processing)
Old Windsor, UK, 2017年7月(招待講演)

澁田靖「組織形成・凝固に係る分子動力学研究の確立」
日本金属学会 2017年春期大会, 東京, 2017年3月

澁田靖「凝固組織の合金組成依存性 - 大規模分子動力学の現状と展望 - 」
日本鉄鋼協会 第173回春季講演大会, 東京, 2017年3月

Y. Shibuta, S. Okita, S. Sakane, T. Takaki, M. Ohno,
"Atomic nature in solidification and grain growth by large-scale molecular dynamics simulation on GPU supercomputer", 2016 MRS Fall Meeting & Exhibit, Boston, USA, 2016年12月

S.K.D. Nath, Y. Shibuta, M. Ohno, T. Takaki, T. Mohri
"Interfacial free energy of Cu-Al alloys by atomistic simulations"
日本金属学会 2016年秋期大会, 大阪, 2016年9月

大喜多慎・澁田靖「超大規模分子動力学法シミュレーションによる粒成長過程解析」
日本鉄鋼協会 第172回秋季講演大会, 大阪, 2016年9月

澁田靖・大喜多慎・坂根慎治・高木知弘・大野宗一
「大規模分子動力学から見る凝固組織生成」
日本鉄鋼協会 第172回秋季講演大会, 大阪, 2016年9月

6. 研究組織

(1) 研究分担者

研究分担者氏名: 大野 宗一
ローマ字氏名: Munekazu Ohno
所属研究機関名: 北海道大学
部局名: 工学研究院
職名: 准教授
研究者番号(8桁): 30431331

研究分担者氏名: 高木 知弘
ローマ字氏名: Tomohiro Takaki
所属研究機関名: 京都工芸繊維大学
部局名: 機械工学系
職名: 教授
研究者番号(8桁): 50294260

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。