

令和 4 年 6 月 9 日現在

機関番号：12605

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2020～2021

課題番号：20K22393

研究課題名（和文）材料組織制御のためのデータ同化援用マルチスケール加工熱処理モデルの開発

研究課題名（英文）Data assimilation-assisted multi-scale modelling for controlling material microstructures during thermomechanical processes

研究代表者

三好 英輔（Miyoshi, Eisuke）

東京農工大学・工学（系）研究科（研究院）・助教

研究者番号：70880962

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,200,000円

研究成果の概要（和文）：本研究は、従来の再結晶・粒成長シミュレーション手法の抱えてきた「物性値」「再結晶核生成」「計算規模」の不備不足を解決し、材料組織予測の大幅な高度化をもたらすことを目的に実施した。具体的には、連続体スケールのフェーズフィールド（PF）モデルと、原子スケールの分子動力学（MD）計算をデータ科学・高性能計算により融合することで、未知の粒界物性値を抽出する新しい物性評価法を構築した。さらに、再結晶核形成の主要メカニズムである異常粒成長現象に対し、大規模PF計算による系統的評価を実施し、異常成長の発現条件の精密な定量化に成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

再結晶・粒成長に伴う材料組織変化の高精度予測・制御は、合金添加に頼らず材料の性能を引き出す「材料組織設計」において極めて重要である。しかしながら、従来の数値手法は「物性値」「再結晶核生成」「計算規模」に課題があり、実組織予測への適用は停滞していた。本研究では、PF法・MD法・データ科学・高性能計算を横断的に用いることで、物性値取得法の確立や核生成条件の同定を推し進め、上記課題に解決策を与えた。これらは、材料科学・計算科学における先端的研究の融合を通じて、組織設計技術の高度化による材料開発加速に向けた基盤を提示したものであり、学術・産業面での貢献が期待できる。

研究成果の概要（英文）：This study was conducted to improve the prediction of material microstructures by solving the following problems of conventional simulation methods for recrystallization and grain growth: physical properties, recrystallization nucleation, and computational scale. Specifically, by integrating continuum-scale phase-field (PF) models and atomic-scale molecular dynamics (MD) calculations based on data science and high-performance computing techniques, we developed a new method to extract unknown physical properties of grain boundaries. Furthermore, we succeeded in accurately quantifying the conditions for abnormal grain growth, which is one of the dominant mechanisms for recrystallization nucleation, by performing systematic evaluations of the phenomenon using very large-scale PF simulations.

研究分野：計算材料科学

キーワード：材料微視組織 再結晶 粒成長 粒界 フェーズフィールド法 分子動力学 データ同化 HPC

1. 研究開始当初の背景

省資源・省エネルギー化への社会的要請に伴い、軽量で高性能な構造用金属材の開発が急務となっている。このためには、巨視的な材料特性を支配するメソスケール (0.01~100 mm) の材料組織を適切に制御する技術が必須である。組織制御にあたって鍵となるのが、材料加工後の熱処理で生じる新結晶粒の形成と競合的粗大化、すなわち再結晶・粒成長であり、これらを通じた組織発展は所望の材料特性を得るために古くから利用されてきた。しかしながら、求められる材料性能は日々高度化し、実験による試行錯誤的組織制御のみに依拠した材料開発は極めて長期の時間を要するようになりつつある。この状況を受け、系統的な組織評価を可能とし材料開発を加速させる数値シミュレーションへの期待が高まっている。

シミュレーションによるメソスケール組織予測では、複雑な多結晶粒界移動を実時間・実空間と対応付けて再現可能な連続体モデルであるフェーズフィールド (PF) 法[1]が、最も有力な数値手法である。近年、このような連続体モデルを基礎に、再結晶・粒成長を統一的に記述するシミュレーション手法が多数提案され、注目を集めてきた。しかしながら、PF 法を含めた既存の連続体モデルは、実組織予測で不可欠な①物性情報、②再結晶核生成、③計算規模の不備不足が未解決課題として残り、実組織予測への適用は依然停滞している。

2. 研究の目的

本研究では、連続体スケールの PF 粒成長モデルと、原子スケールの分子動力学 (MD) 計算とをデータ科学により融合することで、未知物性値を効率的かつ高精度に取得可能な新しい物性評価システムを確立する。さらに、高性能計算技術を援用した大規模 PF 計算により、再結晶核生成条件の精密な定量化を図る。これらを通じて、上記の課題①~③を解決し、材料組織予測の大幅な高度化をもたらすことを目的とする。

3. 研究の方法

(1) MD-PF データ同化による粒界物性取得

粒界物性値の入力を要する PF 法に対し、MD 法では物性が計算結果に自然に反映される。この点に着目し、MD 粒成長を観測データとして PF 計算にデータ同化[2] (計算結果が観測データに合うように、モデル中の未知パラメータを最適化する方法) を適用し、PF モデルのパラメータを最適化することで、多結晶系から個々の粒界のエネルギーと易動度を逆問題的に算出する。データ同化手法としては、再結晶・粒成長のような非線形問題への適用性に優れた Ensemble Kalman Filter (EnKF) [3] を採用する。

(2) 大規模 PF 計算による異常粒成長発生条件の評価

再結晶核生成の主要メカニズムである異常粒成長現象 (少数の結晶粒が周囲の結晶粒群を蚕食して優先成長する現象) に着目し、系統的な PF シミュレーションによる異常粒成長発生条件を同定することを試みる。具体的には、特定の結晶粒 (specific grain) とその他の均質なマトリクス粒群 (matrix grains) からなるモデルシステムを対象に、特定粒-マトリクス間の粒径比 ($R/\langle R \rangle$)、粒界エネルギー比 ($\gamma/\langle \gamma \rangle$)、易動度比 ($M/\langle M \rangle$) を 60 通り以上に変化させ、特定粒の異常成長挙動を評価する。PF シミュレーションは複数 GPU 並列化により高速化し、東京工業大学の GPU スパコン TSUBAME3.0 を用いることで、超大規模かつ系統的な計算を可能とする。

4. 研究成果

(1) MD-PF データ同化による粒界物性取得

計算条件：PF モデルとして、多結晶系の粒界移動を精度良く表現可能な Steinbach と Pezzolla [4] のマルチフェーズフィールド (MPF) モデルを使用した。PF モデルとのデータ同化のための MD データとしては、Fig. 1(a) に示す純 Al の擬 2 次元 3 結晶系 (約 19 万原子) での粒成長計算結果を用いた。各結晶粒の初期形状は矩形とし、結晶粒 1, 2, 3 に対して、それぞれ [001] 軸回りに $\theta = 0^\circ, -12^\circ, 48^\circ$ の結晶方位を与えた。すなわち、1-2 粒界、1-3 粒界、2-3 粒界の方位差 $\Delta\theta$ はそれぞれ $12^\circ, 42^\circ, 30^\circ$ である。境界条件は周期境界条件、温度 700 K、時間増分 5 fs とし、NPT アンサンブルと Mishin ら [5] の EAM ポテンシャルを用いて 9200 ps までの計算を行った。

データ同化においては、状態や物性値をばらつかせた多数の PF シミュレーション (アンサンブル) を並列実行し、MD から得た観測データが存在する時刻では、EnKF に基づくフィルタリングにより各アンサンブルの状態を補正する。この手順を繰り返すことで、状態および物性値が推定される。本研究のデータ同化におけるアンサンブル数は 192、フィルタリング間隔は 400 ps と設定した。

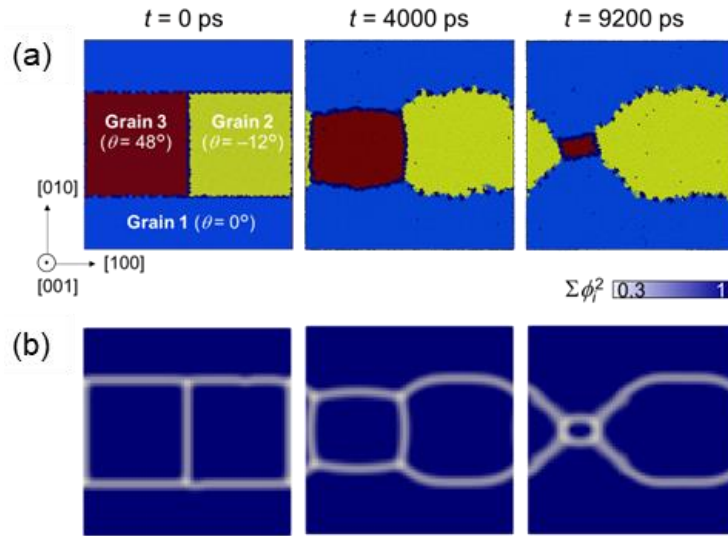


Fig. 1 (a) MD simulation results for Al grain growth. (b) PF interfacial profiles estimated by the data assimilation.

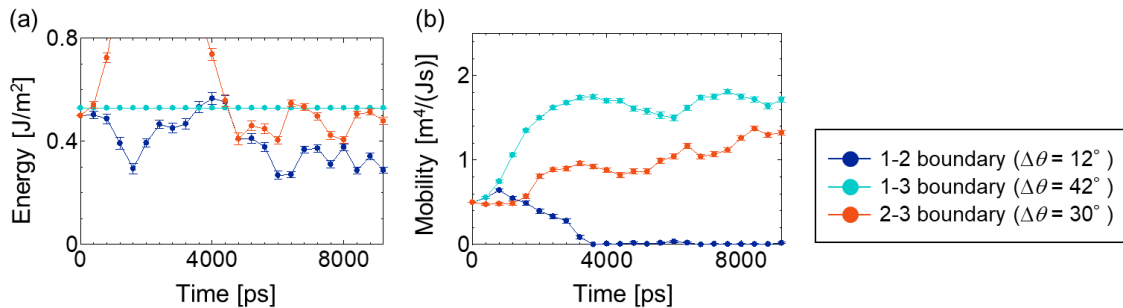


Fig. 2 Grain boundary properties estimated by the data assimilation: (a) energy and (b) mobility.

計算結果： 以上の MD データおよび EnKF を用いて、PF 粒成長モデルとのデータ同化を行うことで、Fig. 1(a)の各粒界のエネルギー、易動度を推定した。なお、推定結果の収束性を高めるため、1-3 粒界（方位差 $\Delta\theta = 42^\circ$ ）のエネルギーは文献値の 0.53 J/m^2 [6]で固定し、推定対象から除外した。

Figure 1(b)は、データ同化により推定された PF 変数分布の時間変化を PF 変数の自乗和 $\Sigma\phi^2$ により示す。なお、各格子点における PF 変数値は、全アンサンブルの平均として求めた。この結果より、MD 計算結果の組織発展（Fig. 1(a)）を良好に推定できていることがわかる。

Figure 2 は、各粒界のエネルギー、易動度の推定値の時間変化を示す。図中のプロットは全アンサンブルの平均、エラーバーは標準偏差である。推定結果は計算の初期において大きく変動するが、約 6000 ps の経過後にはおおよそ一定値に収束する。方位差 $\Delta\theta > 15^\circ$ の大角粒界（1-3 粒界、2-3 粒界）のエネルギーは 0.5 J/m^2 、易動度は $1 \sim 2 \times 10^{-8} \text{ m}^4/(\text{Js})$ ほどに収束し、いずれも純 Al の典型的なオーダーの値[6,7]である。また、小角粒界（1-2 粒界）のエネルギーや易動度は、大角粒界のそれらに比べ小さく、特に易動度の小ささは顕著である。このような小角粒界の低エネルギー、極低易動度の傾向は実験・原子計算から多く報告されており[7]、本研究の提案手法による物性推定の妥当性を裏付けるものと考えられる。

以上のように本研究では、任意の粒界に対するエネルギーと易動度の取得を可能とするため、PF-MD データ同化に基づく粒界物性評価法を提案し、その妥当性を示した。提案手法は、従来の材料組織予測のボトルネックであった物性値情報の不足を解決するための技術基盤として、大きな貢献が期待できる。本成果の関連論文は国際誌 *Materials & Design* (IF = 7.991) にて発表済みである[8]。

(2) 大規模 PF 計算による異常粒成長発生条件の評価

計算条件： 数値モデルには、上記と同じく MPF モデルを採用した。計算領域サイズは、2D で $12,288^2 \Delta x^2$ ($\Delta x = 1$: 差分格子間隔)、3D で $1280^3 \Delta x^3$ とし、時間増分 Δt は陽解法の安定条件を満たす範囲でなるべく大きく設定した。Figure 3(a)に例示するように、粒径 R 、粒界エネルギー γ 、易動度 M の円形結晶粒（特定粒）を中央に配置し、周囲を平均粒径 $\langle R \rangle$ 、粒界エネルギー $\langle \gamma \rangle$ 、易動度 $\langle M \rangle$ の約 30 万の結晶粒群（マトリクス）で充填した。2D 計算には 16GPUs、3D 計算には 64GPUs を用いた。

以上の条件の下，特定粒とマトリクスとの初期粒径比 $\rho_{ini} = R_{ini} / \langle R \rangle_{ini}$ ，粒界エネルギー比 $\Gamma = \gamma / \langle \gamma \rangle$ ，モビリティ比 $\mu = M / \langle M \rangle$ を変化させて計算を行い，特定粒の異常成長挙動（異常粒成長の有無，異常成長発生時の到達粒径）を評価した．

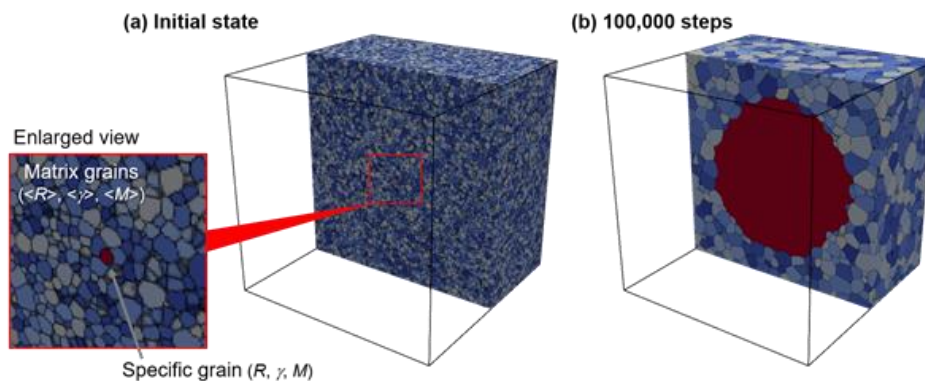
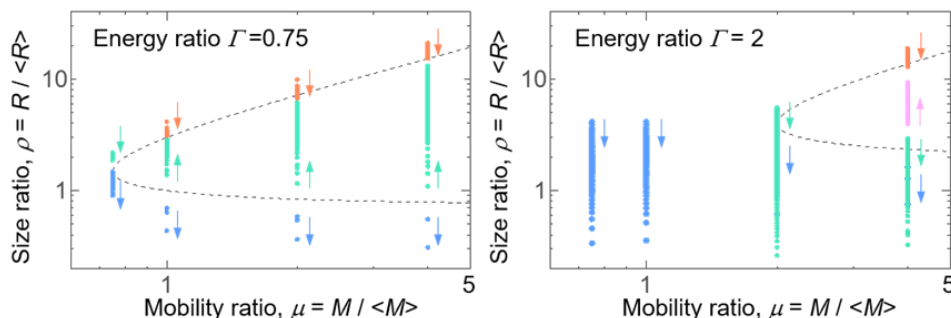


Fig. 3 3D polycrystalline system for simulating the abnormal growth of a specific grain: (a) initial state, (b) 100,000 steps. The matrix grains are visualized only for a half of the entire domain to make the specific grain visible.

(a) 2D simulations



(b) 3D simulations

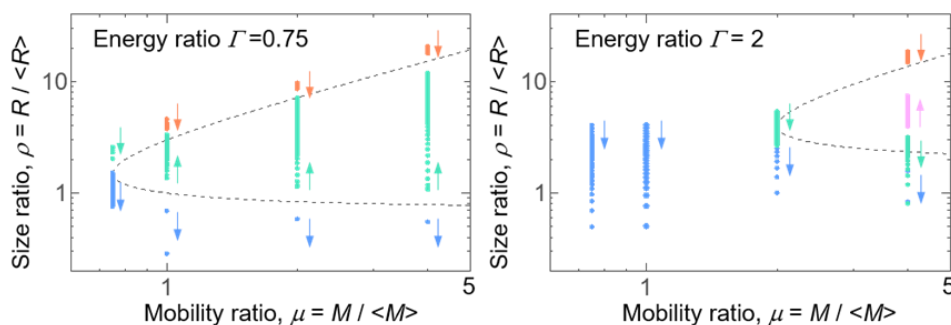


Fig. 4 Abnormal growth conditions of the specific grain shown in Fig. 2 as a function of the grain size ratio, boundary energy ratio, and mobility ratio.

計算結果： Figure 3(b)は，異常粒成長の計算結果の例として，粒界エネルギー比 $\Gamma = 0.75$ ，モビリティ比 $\mu = 4$ の条件における 100,000th step 時の組織形態を示す．特定粒が周囲のマトリクスを蚕食して成長する，異常粒成長の典型的描像が再現されている．

Figure 4 は，粒界エネルギー比 $\Gamma = 0.75 \sim 2$ ，モビリティ比 $\mu = 0.75 \sim 4$ と変化させ，さまざまな初期粒径比から計算を行い，得られた粒径比 $\rho = R / \langle R \rangle$ の時間変化を $\rho - \mu$ 平面上にプロットしたものである．ここで，異なる色のプロットにより，異なる初期粒径比 $\rho_{ini} = R_{ini} / \langle R \rangle_{ini}$ からスタートした計算結果を区別している．プロットの近くに示した矢印は，粒径比 ρ の時間変化の方向（上矢印：増大 [$d\rho/dt > 0$]，下矢印：減少 [$d\rho/dt < 0$])を示す．また，図中の破線は Humphreys [9] の平均場理論による予測結果であり，破線の内側では特定粒の異常成長が生じる（すなわち， $d\rho/dt > 0$ ）と予測される．Figure 4 より，異常粒成長の発生の有無（ $d\rho/dt$ の正負）は，ほとんどの結果において平均場理論による予測と一致することがわかる．さらに，異常成長発生時の最終的な粒径比は，同理論による予測値の近傍に収束している．

以上より、マトリクス中の特定粒の異常成長挙動（異常成長の発生の有無や最終到達サイズ）は粒径比・粒界エネルギー・粒界モビリティの関数として記述でき、平均場理論による予測と良好に一致することが示された。これは、連続体モデルにより再結晶を記述する際に必要な核生成条件の設定において、特に有益な知見を与えるものと考えられる。以上の内容に加え、より詳細・広範なデータや、計算と理論との若干のずれの原因に関する考察を盛り込んで論文化し、現在、国際誌に投稿中である。

参考文献

- [1] 高木知弘, 山中晃徳, フェーズフィールド法—数値シミュレーションによる材料組織設計, 養賢堂, 2012.
- [2] T. Tsuyuki, T. Miyoshi, Recent progress of data assimilation methods in meteorology, *J. Meteorol. Soc. Japan*. 85 B (2007) 331–361.
- [3] T. Miyoshi, Ensemble Kalman Filtering: A Meeting Point between Data Assimilation and Ensemble Forecasting, *TENKI*. 52 (2005) 3–14.
- [4] I. Steinbach, F. Pezzolla, A generalized field method for multiphase transformations using interface fields, *Physica D*. 134 (1999) 385–393.
- [5] Y. Mishin, D. Farkas, M.J. Mehl, D.A. Papaconstantopoulos, Interatomic potentials for monoatomic metals from experimental data and ab initio calculations, *Phys. Rev. B*. 59 (1999) 3393–3407.
- [6] M.A. Tschopp, S.P. Coleman, D.L. McDowell, Symmetric and asymmetric tilt grain boundary structure and energy in Cu and Al (and transferability to other fcc metals), *Integr. Mater. Manuf. Innov.* 4 (2015) 176–189.
- [7] G. Gottstein, L.S. Shvindlerman, *Grain Boundary Migration in Metals: Thermodynamics, Kinetics, Applications*, CRC Press, Boca Raton, 1999.
- [8] E. Miyoshi, M. Ohno, Y. Shibuta, A. Yamanaka, T. Takaki, Novel estimation method for anisotropic grain boundary properties based on Bayesian data assimilation and phase-field simulation, *Mater. Des.* 210 (2021) 110089.
- [9] F.J. Humphreys, A unified theory of recovery, recrystallization and grain growth, based on the stability and growth of cellular microstructures—I. The basic model, *Acta Mater.* 45 (1997) 4231–4240.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2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 1件）

1. 著者名 Eisuke Miyoshi, Munekazu Ohno, Yasushi Shibuta, Akinori Yamanaka, Tomohiro Takaki	4. 巻 210
2. 論文標題 Novel estimation method for anisotropic grain boundary properties based on Bayesian data assimilation and phase-field simulation	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Materials & Design	6. 最初と最後の頁 110089 ~ 110089
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.matdes.2021.110089	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 Miyoshi Eisuke, Takaki Tomohiro, Sakane Shinji, Ohno Munekazu, Shibuta Yasushi, Aoki Takayuki	4. 巻 186
2. 論文標題 Large-scale phase-field study of anisotropic grain growth: Effects of misorientation-dependent grain boundary energy and mobility	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Computational Materials Science	6. 最初と最後の頁 109992 ~ 109992
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.commatsci.2020.109992	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7件（うち招待講演 1件/うち国際学会 3件）

1. 発表者名 Eisuke Miyoshi, Munekazu Ohno, Yasushi Shibuta, Akinori Yamanaka, Tomohiro Takaki
2. 発表標題 Abnormal Grain Growth Induced by Nonuniform Grain Boundary Properties: Large-scale Phase-field Simulation vs. Mean-field Theory
3. 学会等名 15th World Congress on Computational Mechanics & 8th Asian Pacific Congress on Computational Mechanics (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 三好英輔, 大野宗一, 澁田靖, 山中晃徳, 高木知弘
2. 発表標題 分子動力学とフェーズフィールド法のデータ同化による多結晶粒成長からの粒界物性抽出
3. 学会等名 第2回マルチスケールマテリアルモデリングシンポジウム
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 三好英輔
2. 発表標題 フェーズフィールド法を主軸とした結晶粒成長過程の計算科学的研究
3. 学会等名 日本鉄鋼協会高温プロセス部会若手フォーラム 2021年度第2回研究会（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 三好英輔，大野宗一，澁田靖，山中晃徳，高木知弘
2. 発表標題 Phase-field法とベイズ推論に基づく多結晶粒成長観察からの粒界物性抽出法
3. 学会等名 日本機械学会第34回計算力学講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 三好英輔，高木知弘，坂根慎治，大野宗一，澁田靖，山中晃徳，青木尊之
2. 発表標題 3次元セル構造におけるパターン形成の大規模マルチフェーズフィールド法解析
3. 学会等名 日本機械学会M&M2021材料力学カンファレンス
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Miyoshi Eisuke, Takaki Tomohiro, Shibuta Yasushi, Ohno Munekazu
2. 発表標題 Validation of a novel measurement method for anisotropic grain boundary properties based on data assimilation and multi-phase-field simulation
3. 学会等名 The 3rd International Conference on Computational Engineering and Science for Safety and Environmental Problems (COMPSAFE 2020) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Miyoshi Eisuke, Takaki Tomohiro, Shibuta Yasushi, Ohno Muneказu
2. 発表標題 Data assimilation-based approach to estimate grain boundary properties using phase-field grain growth simulations
3. 学会等名 TMS 2021 150th Annual Meeting & Exhibition (TMS2021) (国際学会)
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

東京農工大学 三好英輔 ホームページ https://web.tuat.ac.jp/~miyoshi/

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

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