

令和 6 年 6 月 3 日現在

機関番号：24405

研究種目：若手研究

研究期間：2022～2023

課題番号：22K14140

研究課題名（和文）粒界工学による高性能材料開発に向けたデータ科学支援メソスケール組織予測手法

研究課題名（英文）Data science-assisted mesoscale microstructural prediction method for developing high-performance materials via grain boundary engineering

研究代表者

三好 英輔（Miyoshi, Eisuke）

大阪公立大学・大学院工学研究科・講師

研究者番号：70880962

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,000,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、構造材料の焼鈍過程における粒界分布の予測・制御で不可欠な「粒界物性の異方性」と「焼鈍双晶形成」の表現を完備したメソスケール数理モデルを構築するため、データ同化を介して原子スケールの分子動力学解析を上位スケールのフェーズフィールド法解析へと定量的に融合させるトランススケール解析手法を示した。これにより、実験測定が困難な粒界の異方的物性を、さまざまな粒界構造に対して一挙に取得することを可能とし、組織予測解析の高精度化に向けた基礎を確立した。さらに、高次欠陥である粒界多重点の物性を表現できる新規モデルを開発し、データ同化の援用により多重点物性の評価をも可能とした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

焼鈍過程における高特性粒界（低値粒界や低エネルギーのファセット粒界など）の増加を利用した材料の高機能化、すなわち粒界工学の技術は、合金化に依らない省資源型材料開発において重要な役割を担う。本研究は、原子計算、連続体モデル、データ科学の融合により、粒界組織制御に不可欠でありながら従来欠落していた異方的粒界物性値や多重点物性値の情報を容易に取得可能とした。これらは、粒界工学の高度化による材料開発加速に資する基盤的枠組を示すものであり、学術・産業両面での貢献が期待できる。

研究成果の概要（英文）：To achieve a quantitative prediction of grain boundary network evolution during annealing processes, this study presented a trans-scale analysis method that quantitatively integrates atomic-scale simulations with continuum-scale phase-field simulations through data assimilation. The present method enabled anisotropic (inclination-dependent) grain boundary properties, which are difficult to measure experimentally, to be efficiently estimated for various types of grain boundary structures, establishing a promising basis for highly accurate precision of annealing phenomena. Furthermore, we developed a novel phase-field model capable of representing the properties of grain boundary multi-junctions and realized the evaluation of the multi-junction properties through data assimilation.

研究分野：計算材料学

キーワード：微視組織 粒界 粒界多重点 焼鈍 フェーズフィールド法 分子動力学 データ同化

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料の開発が急務となっている。このためには、巨視的材料特性を支配するメソスケール (0.01~100 μm) の材料組織を適切に制御する技術が必須である。特に近年では、組織中の粒界性格 (構造) 分布が材料の強度・破壊靱性・耐食性に深く関わるということが明らかとなったことを受け、低 Σ 粒界、低エネルギー粒界などの高特性粒界の頻度を向上させることで合金化に頼らず材料性能を引き出す粒界工学が注目を集めている[1][2]。粒界性格分布の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結晶粒の競合的粗大化、すなわち再結晶・粒成長であり、これらに伴う焼鈍双晶形成を利用した大量の低エネルギー粒界の導入は粒界工学における指導原理をなす。しかしながら、求められる材料性能は日々高度化し、試行錯誤的実験による再結晶・粒成長制御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、**phase-field (PF)** 法の利用が必須である。PF 法は粒界の曲率効果を内包した連続体モデルであり、複雑な多結晶粒成長を実時間・実空間と対応付けて再現できる最も強力な手法として定着している[3]。しかしながら、PF モデルによる再結晶・粒成長予測は「粒界・多重点の物性値データ」「焼鈍双晶核形成モデル」の不備不足といった未解決課題を抱え、特に粒界性格分布、粒サイズ・形状分布などの統計的挙動予測は実用化に程遠い。

2. 研究の目的

データ同化[4] (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) を中心としたデータ科学手法により、原子スケールの分子動力学 (MD) 解析を上位スケールの PF 法解析へと定量的に融合させる。これにより、粒界・多重点の異方性物性と新規結晶の核形成を正確に反映したメソスケール焼鈍組織予測を可能とし、粒界工学の高度化に向けた新技術を提示することを目的とする。

3. 研究の方法

(1) MD-PF データ同化による粒界物性の面方位依存性の評価／焼鈍双晶核形成のモデル化

粒界エネルギーは粒界面方位に対して依存性を持ち、焼鈍過程においては低エネルギーの面方位を取る粒界を増やすよう粒界ファセット形成が進行する。この現象は低エネルギー粒界などの高特性粒界を増加させる上で重要であるが、粒界物性面方位依存性のデータは不十分であり、PF 法によるファセット形成の再現は定性的段階に留まっている。

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。そこで、MD 粒成長を観測データとして PF 計算にデータ同化を適用し、PF モデルのパラメータを最適化することで、面方位依存の粒界物性値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)** [5] を採用する。さらに、MD の活用についてはもう一歩推し進め、MD による焼鈍双晶形成シミュレーションを実施し、その結果を基に焼鈍双晶の核形成条件をモデル化し PF モデルに組み込む。

(2) データ同化による粒界多重点の物性評価

複数の粒界の交わる粒界多重点はしばしば有限の易動度を持ち、粒界移動を妨げて組織粗大化を停滞させる。このような多重点によるドラッグ効果は、特に微細結晶粒材料の組織制御において重要であるが、多重点の物性値は測定が難しくデータがきわめて乏しい。本研究では、多重点の有限易動度を再現するパラメータを導入した新規 PF モデルを構築し、同モデルに EnKF に基づくデータ同化を適用することで、多重点物性値の逆問題解析を可能とする。

4. 研究成果

(1) MD-PF データ同化による粒界物性の面方位依存性の評価／焼鈍双晶核形成のモデル化

ここでは例として、純アルミニウム (Al) 二結晶系に対する MD 計算結果を PF とのデータ同化に用いる。二結晶構造は、Fig. 1(a)左端のパネルに示すように、MD 計算セル中央の円形領域内の原子群を[111]軸回りに 10° 回転させることで作成する。MD 計算の各種計算条件は次のとおりである：時間増分 0.005 ps、温度 600 K、圧力 0 Pa、周期境界条件、NPT アンサンブル、EAM ポテンシャル[6]。計算を実行すると、Fig. 1(a)のように、円形結晶粒が徐々にファセット面を形成し、六角形で平衡状態となる。

文献[7]の組織変換手法により、Fig. 1(a)の MD 計算結果を Fig. 1(b)の秩序変数 ϕ 分布に変換し、これを観測データとして PF モデルとのデータ同化を実施し、各面方位の粒界エネルギー $\gamma(\theta)$ を推定した。なお、面方位 θ は面法線と x 軸とのなす角として定義し、粒界のコーナー近傍では角度刻み 2°、ファセット近傍では角度刻み 14°の離散値として扱った。PF 計算における時間増分 Δt および粒界モビリティ M はそれぞれ $\Delta t = 0.35$ ps および $M = 1.0 \times 10^{-12}$ m⁴/Js、データ同化の α

ンサンプル数 $N_{\text{ens}}=256$ とした。256 個の計算を並列に実行する必要があるため、Cuda C により GPU 加速を実装することで計算を高速化した。

データ同化により推定された組織発進および粒界エネルギー $\gamma(\theta)$ を Fig. 1(c), (d) に示す。Fig. 1(c) より、データ同化における粒界形態は円形から六角形へと変化して平衡状態となっており、観測データである MD 計算結果を良好に再現していることがわかる。また、Fig. 1(d) より、推定された $\gamma(\theta)$ 値は粒界コーナー近傍で大きく、ファセット近傍で小さい。一般に、粒界は低エネルギー方位でファセットを形成して系のエネルギーを低下させるよう移動する。したがって、構築した手法による $\gamma(\theta)$ の推定結果は妥当と考えられる。

次いで、MD による焼鈍双晶形成シミュレーションを実施した。初期構造として、ポロノイ分割により作成した Fig. 2(a) の純銅 (Cu) 多結晶系を用い、さまざまな焼鈍温度で原子群を 2500 ps 高温保持した。その他の MD 計算の各種計算条件は次のとおりである：時間増分 0.005 ps, 圧力 0 Pa, 周期境界条件, NPT アンサンブル, EAM ポテンシャル[8]。計算結果の例として、温度 700 K における 1250 ps, 2500 ps 時の焼鈍組織をそれぞれ Fig. 2(b), (c) に示す。赤色の原子で示される直線状の粒界が焼鈍双晶に相当し、MD により双晶形成が再現できていることがわかる。現在、このような計算結果から焼鈍双晶の核形成条件（蓄積エネルギーとその勾配、結晶方位とその勾配など）を抽出する作業を進めているが、一定の法則性を見出すには至っていない。今後、機械学習などのデータ科学手法を援用した法則性の発見を進める予定である。

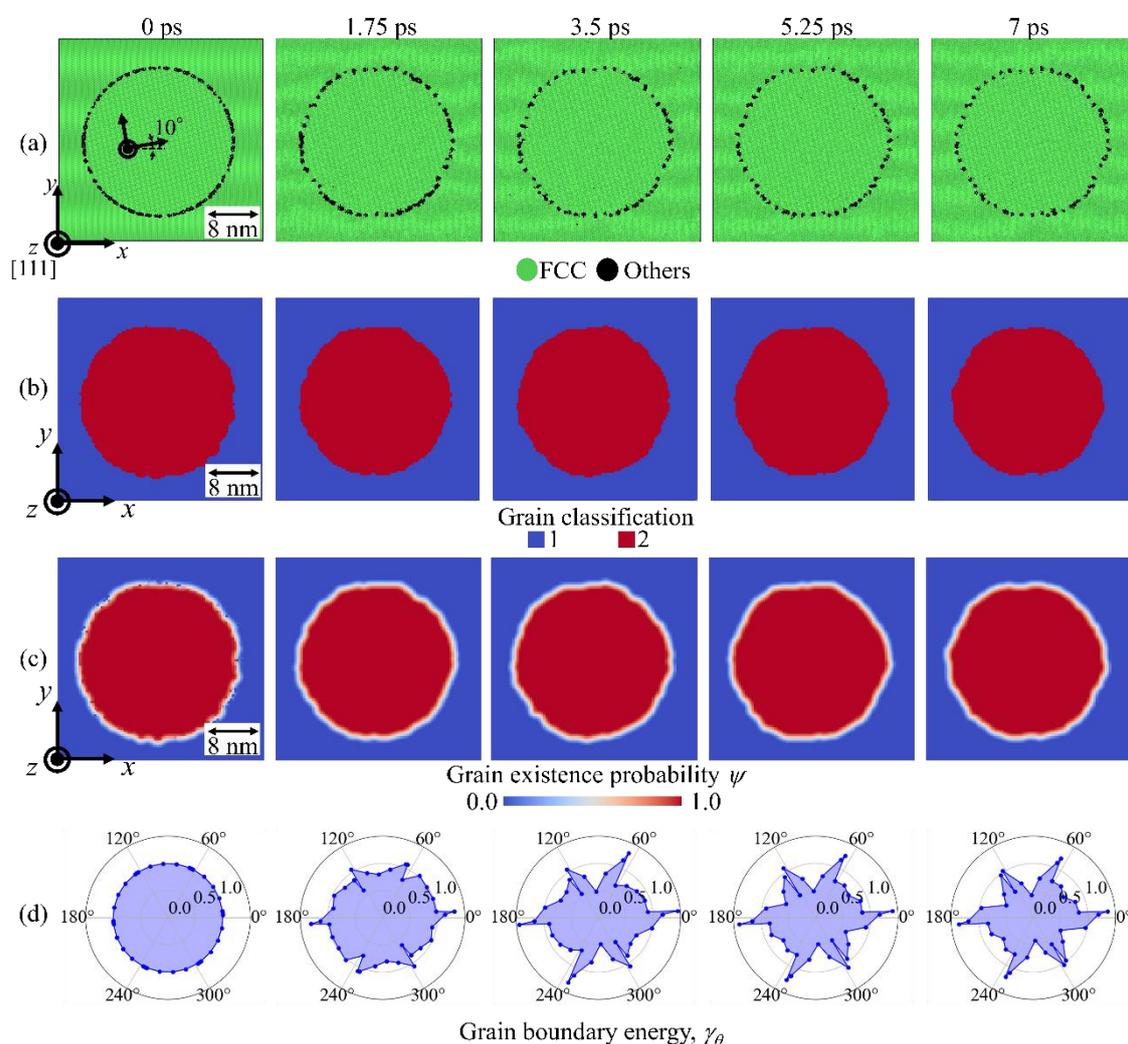


Fig. 1 (a—c) Temporal evolutions of a circular grain shape in an aluminum bicrystal system: (a) MD-simulated data, (b) PF variable distribution converted from (a), (c) PF variable distribution predicted by data assimilation. (d) Grain boundary energies for each inclination estimated by data assimilation.

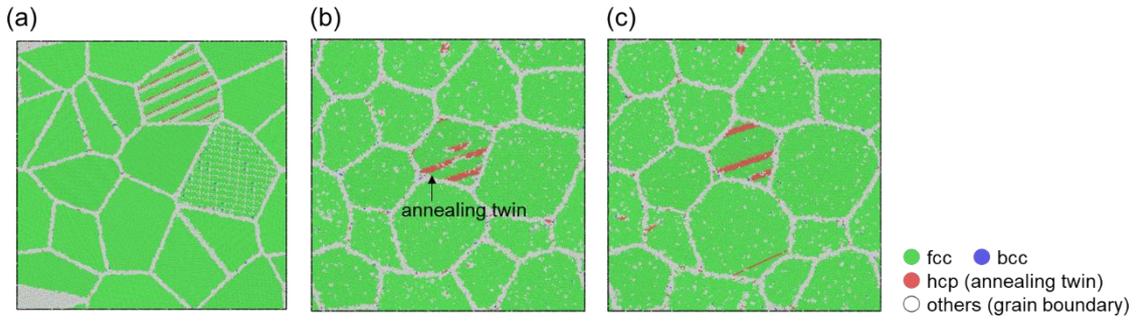


Fig. 2 MD annealing simulation for a Cu polycrystalline system: (a) initial state (time $t = 0$), (b) $t = 1250$ ps, (c) $t = 2500$ ps.

(2) データ同化による粒界多重点の物性評価

Steinbach と Pezzolla [9]のマルチフェーズフィールド(MPF) モデルを基に、粒界三重点の易動度を表現するパラメータ μ_{TJ} を加えた新規 MPF モデルを構築した. Fig. 3 は、同モデルによる三結晶系の粒界移動シミュレーション結果の例である. Fig. 3(a)を初期構造として計算を実行すると、青色の結晶粒が半円状の粒界を形成し、三重点（青・赤・白の結晶粒が交わる点）が一定速度 V で右側に移動する. 三重点の易動度が無限大の場合に相当する(b) $\mu_{TJ} = 1$ に比べ、三重点易動度が有限の(c) $\mu_{TJ} = 0.01$ では三重点での粒界接触角が鋭角化し、粒界移動が遅延していることがわかる. この結果から、新規 MPF モデルを用いることで、三重点による粒界移動へのドラッグ効果を再現可能であると確認できる.

次いで、上記の MPF モデルに EnKF データ同化を適用することで三重点易動度 μ_{TJ} を推定可能とし、同推定手法の妥当性を双子実験と呼ばれる数値実験により検証した. 双子実験では、まず、真値と仮定した粒界易動度 $\mu_{GB,true}$ 、三重点易動度 $\mu_{TJ,true}$ を用いた MPF 粒成長シミュレーションを行う. このシミュレーション結果を疑似観測データとしてデータ同化を実行し、推定された各粒界の物性値 $\mu_{GB,est}$ 、 $\mu_{TJ,est}$ を真値 $\mu_{GB,true}$ 、 $\mu_{TJ,true}$ と比較することで、データ同化による物性推定の精度を評価する.

Figure 4 に、双子実験の疑似観測データに用いた MPF シミュレーションのスナップショットを示す. 4 個の結晶粒と 6 個の粒界、4 個の三重点を含む計算領域を一辺 $\Delta x = 1$ の規則差分格子により 96×96 に分割し、時間増分 $\Delta t = 0.0625$ 、境界条件はすべて周期境界条件として時刻 $t = 24000 \Delta t$ までのシミュレーションを行った. 各粒界・三重点の易動度の真値は、 $\mu_{GB,true} = 0.25 \sim 1.0$ 、 $\mu_{TJ,true} = 0.05 \sim 1.0$ の範囲でランダムに与えた. また、データ同化に用いるアンサンブル数は $N_{ens} = 192$ 、データ同化の実施間隔（フィルタリング間隔） $\Delta t_{filter} = 800 \Delta t$ とした. データ同化により推定された粒界易動度 $\mu_{GB,est}$ 、三重点易動度 $\mu_{TJ,est}$ の時間変化を Fig. 5 に示す. 図中の異なる色の実線は計 6 個または 4 個の異なる粒界または三重点に対する推定結果であり、各結果は真値に対する相対値 $\mu_{GB,est}/\mu_{GB,true}$ 、 $\mu_{TJ,est}/\mu_{TJ,true}$ として示した. この結果より、推定値はいずれも時刻 $10000 \Delta t$ までに真値付近に収束することがわかる. 最終的な推定値の相対誤差はたかだか 3% 以内であり、粒界易動度に加え、実験測定困難な多重点易動度も通常の多結晶粒成長の観察から一挙に高精度抽出できることが確認された.

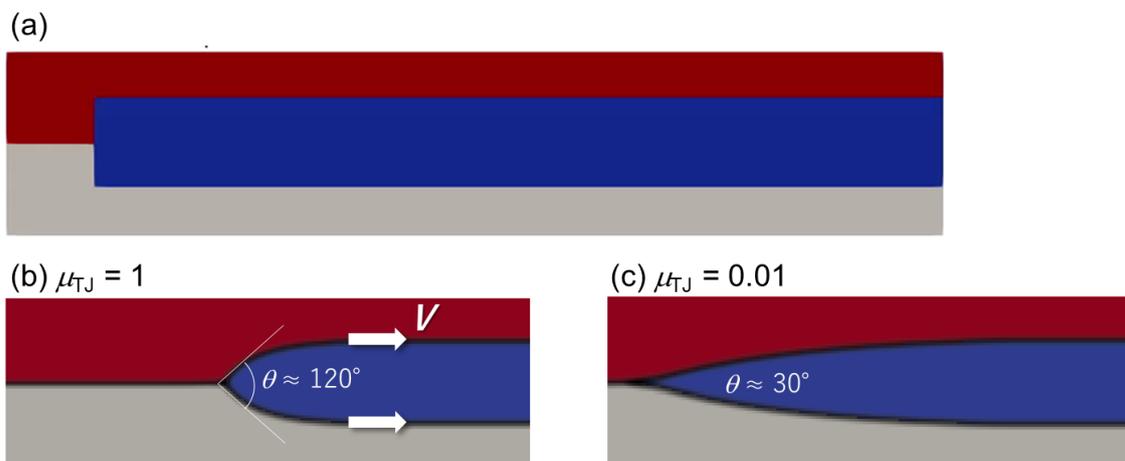


Fig. 3 MPF simulation of triple-junction motion in a tricrystal system: (a) initial state, (b, c) steady states for the conditions of (b) infinite triple-junction mobility $\mu_{TJ} = 1$ and (c) finite triple-junction mobility $\mu_{TJ} = 0.01$.

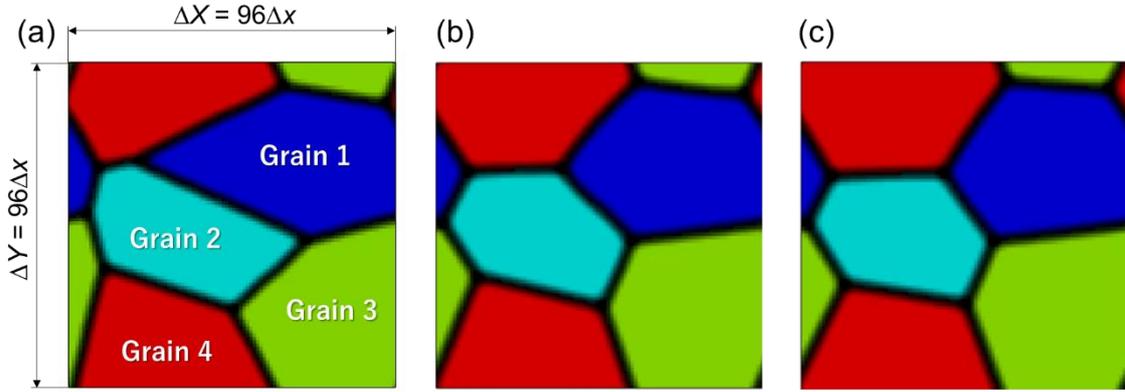


Fig. 4 Snapshots of the MPF grain growth simulation used as the synthetic observation data for twin experiment: (a) initial state (time $t = 0$), (b) $t = 12000\Delta t$, (c) $t = 24000\Delta t$.

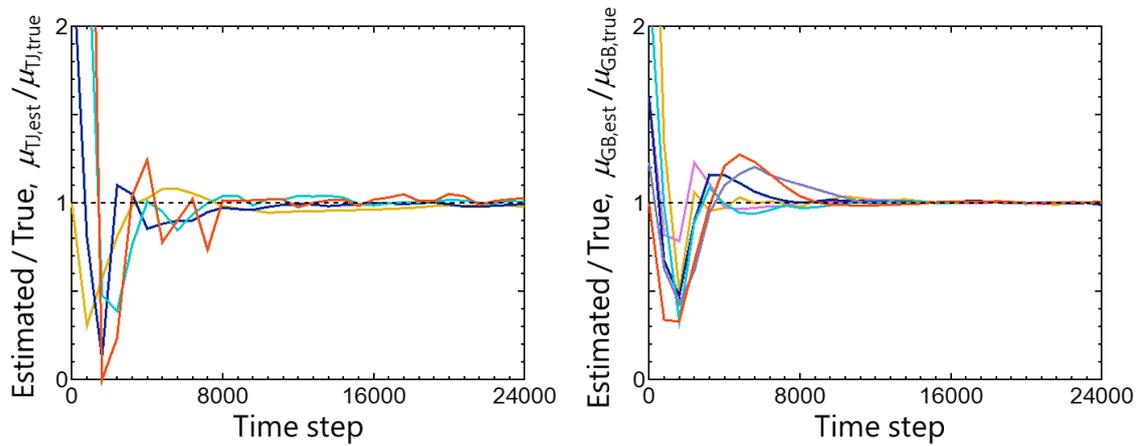


Fig. 5 Temporal variations in the estimated values of triple-junction mobility μ_{TJ} and grain-boundary mobility μ_{GB} . Solid lines with different colors indicate the results for different triple junctions or grain boundaries.

参考文献

- [1] T. Watanabe, Grain boundary engineering: historical perspective and future prospects, *J. Mater. Sci.* 46 (2011) 4095-4115.
- [2] (4) B. Sadeghi, P. Cavaliere, Ali. Shabani, "Design strategies for enhancing strength and toughness in high performance metal matrix composites: A review, *Mater. Today Commun.*, 37(2023) 107535.
- [3] I. Steinbach, Phase-field models in materials science, *Modell. Simul. Mater. Sci. Eng.* 17 (2009) 073001.
- [4] T. Tsuyuki, T. Miyoshi, Recent progress of data assimilation methods in meteorology, *J. Meteorol. Soc. Japan.* 85 B (2007) 331-361.
- [5] T. Miyoshi, Ensemble Kalman Filtering: A Meeting Point between Data Assimilation and Ensemble Forecasting, *TENKI.* 52 (2005) 3-14.
- [6] Y. Mishin, et al., Interatomic potentials for monoatomic metals from experimental data and ab initio calculations, *Phys. Rev. B* 59 (1999) 3393.
- [7] E. Miyoshi, T. Takaki, Y. Shibuta, M. Ohno, Bridging molecular dynamics and phase-field methods for grain growth prediction, *Comput. Mater. Sci* 152(2018) 118-124.[8] Y. Mishin, et al., Structural stability and lattice defects in copper: Ab initio, tight-binding, and embedded-atom calculations, *Phys. Rev. B* 63 (2001) 224106.
- [9] I. Steinbach, F. Pezzolla, A generalized field method for multiphase transformations using interface fields, *Physica D* 134 (1999) 385-393.

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 Miyoshi Eisuke, Ohno Munekazu, Shibuta Yasushi, Yamanaka Akinori, Takaki Tomohiro	4. 巻 57
2. 論文標題 Validating a mean-field theory via large-scale phase-field simulations for abnormal grain growth induced by nonuniform grain boundary properties	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Materials Science	6. 最初と最後の頁 16690-16709
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1007/s10853-022-07660-4	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9件（うち招待講演 3件/うち国際学会 5件）

1. 発表者名 E. Miyoshi, M. Ohno, Y. Shibuta, A. Yamanaka, T. Takaki
2. 発表標題 Combined Bayesian inference and phase-field modelling for evaluating triple-junction drag on grain boundary migration
3. 学会等名 The 10th International Conference on Multiscale Materials Modeling (MMM2022)（国際学会）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 A. Yamanaka, E. Miyoshi, A. Ishiii
2. 発表標題 Bayesian Data Assimilation for Phase-field Simulation of Microstructure Evolution
3. 学会等名 The 10th International Conference on Multiscale Materials Modeling (MMM2022)（招待講演）（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 大規模フェーズフィールドシミュレーションによる異常粒成長理論の検証
3. 学会等名 日本機械学会第35回計算力学講演会
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7回マルチスケール材料力学シンポジウム
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 藤原倫男, 三好英輔, 山中晃徳
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粒界特性の面方位依存性の評価
3. 学会等名 第28回計算工学講演会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 E. Miyoshi
2. 発表標題 Inverse analysis of grain boundary properties based on Bayesian data assimilation and phase-field simulation
3. 学会等名 JSME-KSME Joint Symposium on Computational Mechanics & CAE 2023 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 T. Fujiwara, E. Miyoshi, A. Yamanaka
2. 発表標題 Evaluation of inclination-dependent grain boundary properties via data assimilation for molecular dynamics and phase-field simulations
3. 学会等名 17th European Congress and Exhibition on Advanced Materials and Processes (FEMS EUROMAT2023) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 三好英輔
2. 発表標題 データ駆動型フェーズフィールド法シミュレーションによる粒界特性の逆問題解析
3. 学会等名 (公財) 科学技術交流財団 第1回デジタルツイン多結晶創成研究会 (招待講演)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 E. Miyoshi
2. 発表標題 Phase-field analysis of the pinning effects of coherent/incoherent second-phase particles on microstructural coarsening
3. 学会等名 The 11th International Conference on Multiscale Materials Modeling (MMM2024) (国際学会)
4. 発表年 2024年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 山中晃徳, 三好英輔	4. 発行年 2023年
2. 出版社 丸善出版	5. 総ページ数 178
3. 書名 Pythonによるフェーズフィールド法入門: Pythonによるフェーズフィールド法入門 Pythonによるフェーズフィールド法入門 基礎理論からデータ同化の実装まで	

〔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
---------	---------------------------	-----------------------	----

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