

TSUBAME 共同利用 令和 5 年度 学術利用 成果報告書

フェーズフィールド法と分子動力学法の連携による多結晶組織形成解
Coupled phase-field and molecular dynamics analysis for polycrystalline microstructure formations

三好 英輔
Eisuke Miyoshi

大阪公立大学大学院工学研究科
Graduate School of Engineering, Osaka Metropolitan University

多結晶材料の高特性化のためには、製造工程における相変態、再結晶・粒成長などを通じた組織形成の高精度制御が鍵となる。本研究では、高効率な組織計算が可能な現象論的手法：フェーズフィールド (PF) 法と、物性値等の入力不要で組織発展を扱える原子論的手法：分子動力学 (MD) とをデータ科学により融合することで、原子レベルの物理を反映した大規模・定量的な多結晶組織予測の実現を図る。今年度は、純金属及び合金系を対象に、MD より得られた粒成長観測データをデータ同化により PF モデルに統合することで、組織発展の支配因子である粒界エネルギーの異方性 (粒界面方位依存性) を逆解析する手法を構築した。

The ability to control polycrystalline microstructure formation through phase transformation, recrystallization, and grain growth is a key to develop superior materials. In this study, we aim to realize a large-scale quantitative prediction of polycrystalline microstructures considering atomic-level physics by integrating the phase field (PF) and molecular dynamics (MD) methods through a data science-based technique. Specifically, we developed a method for incorporating grain growth observation data obtained from MD simulation into the PF model, which allowed for the inverse analysis of grain boundary energy anisotropy (boundary inclination dependence) for pure metal and alloy systems.

Keywords: Polycrystal, Microstructure, Phase-field model, Molecular dynamics, Data assimilation

背景と目的

高性能な金属材料の開発においては、固相変態や再結晶・粒成長などを通じた多結晶組織形成の適切な予測・制御が鍵となる。このためには、連続体ベースの数値モデルによる系統的な組織予測シミュレーションが有望である。とりわけフェーズフィールド (PF) 法は、粒界位置の追従不要で複雑な多結晶組織形成を再現できる有力な数値モデルとして主流となりつつある。

実材料中の粒界のエネルギーや易動度は異方性を有し、粒界の方位差・面方位に応じて多様な値を取る [1]。このような粒界物性の異方性は組織発展挙動に強く影響するため、高精度な組織予測の実現にあたり考慮すべき重要因子である。しかしながら、実験や原子計算に基づく従来の粒界物性測定法は特別な粒界形状を用いる必要があり、適用可能な粒界の種類が限定される。このため、特に面方位に依存した粒界物性の情報は著しく不足しており、PF 法などの数値モデルの高精度化においてボトルネックとなっている。

一方で、近年、シミュレーションの精度を向上させる有力なツールとしてデータ同化 [2] が注目を集めている。データ同化は、実験や原子計算などの観測データを、ベイズ推論に基づきシミュレーションに統合する手法である。この手法を用い、シミュレーション結果が観測データによく一致するよう数値モデル中の各種パラメータ (物性値等) を校正することで、測定困難な物性値の逆問題的算出が可能となるものと期待できる。

本研究では、分子動力学 (MD) より得られた粒成長観測データをデータ同化により PF モデルに統合することで、特別な実験や計算を行うことなく、通常の粒成長観察から粒界物性の面方位依存性を抽出できる新しい物性評価システムを構築した。

概要

PF モデル

粒界エネルギーの面方位依存性を考慮した PF 粒成長モデル [3] を用いる。本モデルは、ある粒内で 1、他の粒

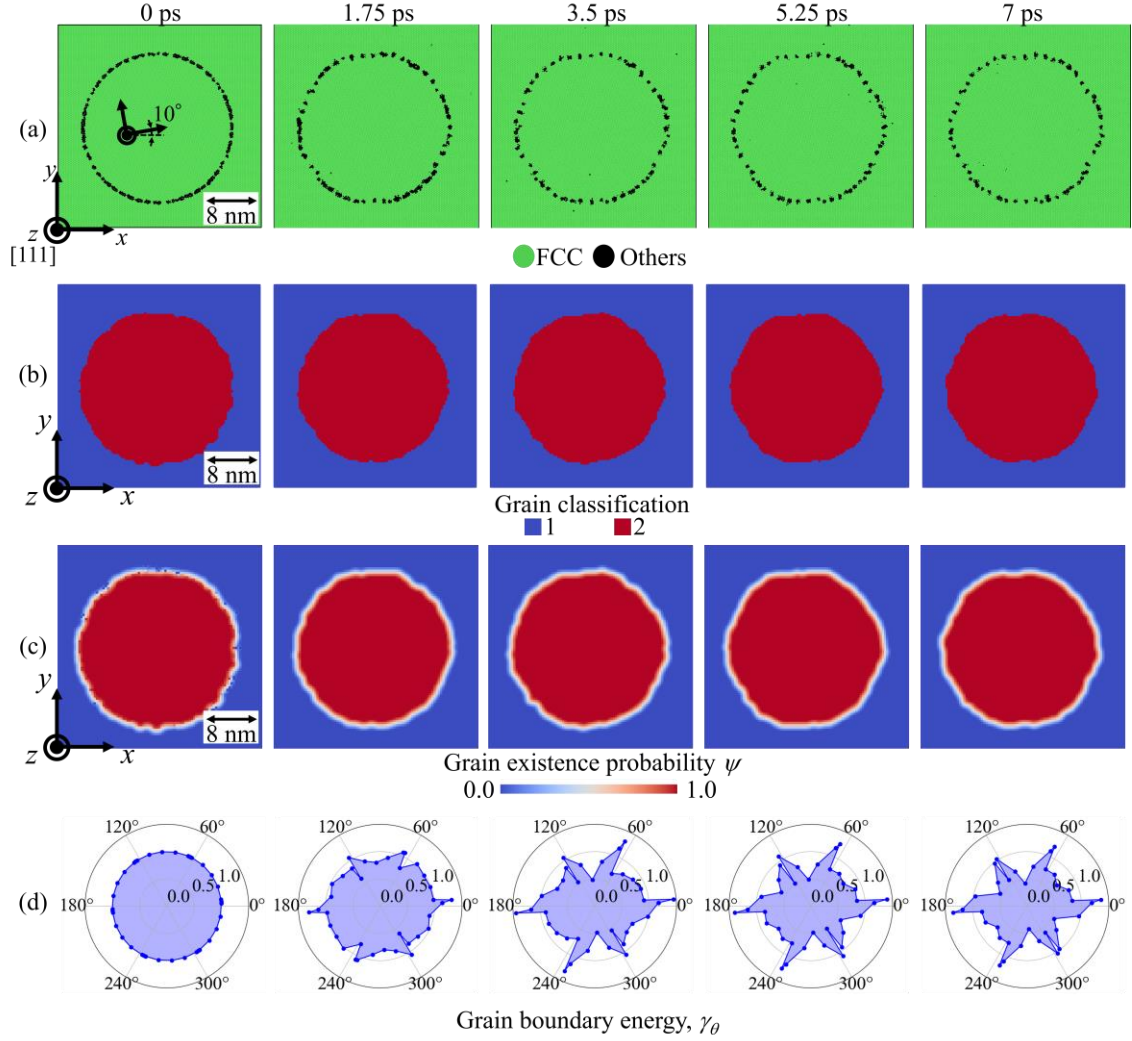


Fig. 1 (a–c) Temporal evolutions of a circular grain shape in a aluminum bicrystal system: (a) MD-simulated data, (b) PF variable distribution converted from (a), (c) PF variable distribution predicted by data assimilation. (d) Grain boundary energies for each inclination estimated by data assimilation.

内で 0, 粒界で $0 < \phi < 1$ の値をとる PF 変数 ϕ を定義し, その時間発展として粒界の移動を記述する. 粒界エネルギーのみを駆動力とした粒成長を考える場合, ϕ の時間発展方程式は次式で与えられる.

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} = M_\phi \left[-\nabla \cdot (a^2 \nabla \phi) - \frac{\partial}{\partial x} \left(a \frac{\partial a}{\partial \theta} \frac{\partial \phi}{\partial y} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(a \frac{\partial a}{\partial \theta} \frac{\partial \phi}{\partial x} \right) \right] + 4W\phi(1-\phi)(\phi-0.5) \quad (1)$$

ここで, M_ϕ , W , a は, それぞれ粒界の PF 易動度, 障壁高さ, 勾配係数であり, 粒界幅 δ , 粒界エネルギー $\gamma(\theta)$, 粒界易動度 M と次のように関係付けられる: $M_\phi = bM/3\delta$, $W = 6b\gamma(\theta)/\delta$, $a = [3\delta\gamma(\theta)/b]^{1/2}$. なお, 粒界エネルギー γ は粒界面方位 θ の関数としている.

データ同化

データ同化手法として, 非線形現象への適用性に優れた ensemble Kalman filter (EnKF) [2] を用いる. ここでは, MD より得た粒成長観測データと PF 計算に基づきさまざまな面方位 θ での粒界エネルギー $\gamma(\theta)$ を推定することを想定し, EnKF によるデータ同化を定式化する.

ある時刻 t_n における PF シミュレーションの状態ベクトルを $\mathbf{x}(t_n) = (\phi_1 \cdots \phi_{N_g} \gamma(\theta_1) \cdots \gamma(\theta_{N_g}))^T$, 観測データベクトルを $\mathbf{y}_i(t_n) = (\phi_i^o \cdots \phi_{N_g}^o)^T$ と定義する. ここで, ϕ_i ($i = 1, 2, \dots, N_g$) は, i 番目の格子点における PF 変数の値, N_g は全格子点数であり, 上付きの添字 o は観測値を示

す。また、 $\gamma(\theta_1), \dots, \gamma(\theta_N)$ は、推定対象とする N 個の面方位における粒界のエネルギーである。

EnKF では、シミュレーション結果は必ず誤差を含むと考え、摂動を加えた個々のシミュレーション(アンサンブル)を並列実行することでその誤差を表現する。各アンサンブルの状態ベクトル $\mathbf{x}_t$ を観測値と比較し、 $\mathbf{x}_t$ の確率密度分布をベイズ推論に基づき補正するフィルタリングを行うことで、観測データがシミュレーションに統合される。アンサンブルの総数を N_{ens} 個とし、 m 番目のアンサンブルの状態ベクトルを $\mathbf{x}_m$ すると、EnKF によるフィルタリングは次式で与えられる。

$$\mathbf{x}_m^*(t_n) = \mathbf{x}_m(t_n) + \mathbf{K}(t_n) (\mathbf{y}(t_n) + \delta\omega_m(t_n) - \mathbf{H}\mathbf{x}_m(t_n)) \quad (2)$$

ここで、 $\mathbf{K}(t_n)$ はカルマンゲイン、 $\mathbf{H}$ は観測演算子行列、 $\mathbf{x}_m^*(t_n)$ は観測データに合わせて補正された状態ベクトル $\mathbf{x}_m(t_n)$ を表す。 $\delta\omega_m(t_n)$ は、観測データに含まれる観測ノイズ $\omega_m(t_n) \sim N(0, \mathbf{R}(t_n))$ ($\mathbf{R}(t_n)$: 観測誤差共分散行列) とそのアンサンブル平均 $\langle \omega_m(t_n) \rangle$ を用いて、 $\delta\omega_m(t_n) = \omega_m(t_n) - \langle \omega_m(t_n) \rangle$ と与えられる。データ同化においては、PF 法の時間発展式(1)を解いて $\mathbf{x}_m(t_n)$ を順次更新し、観測データが存在する時刻では式(2)により $\mathbf{x}_m(t_n)$ 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。

結果および考察

MD 粒成長データ

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[4]。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。

データ同化による粒界エネルギー面方位依存性の推定

文献[5]の組織変換手法により、Fig. 1(a)の MD 計算結果を Fig. 1(b)の PF 変数 ϕ 分布に変換し、これを観測データとして PF モデル(式(1))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, データ同化のアンサンブル数 $N_{\text{ens}} = 256$ 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展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。

まとめ、今後の課題

本研究では、面方位に依存した粒界物性値を推定可能な MD-PF データ同化手法を提示し、Al 二結晶系への適用によりその妥当性を示した。今後は、実用上重要な合金系に対して同手法の適用を進めることが課題となる。これに向けて、現在、モンテカルロ法と MD のハイブリッド計算による合金元素の粒界偏析シミュレーション手法の開発まで完了している、次年度以降はこの計算にデータ同化を適用し、合金系の界面・粒界物性の評価を系統的に行う予定である。

参考文献

- [1] G. Gottstein, L. S. Shvindlerman, Grain Boundary Migration in Metals: Thermodynamics, Kinetics, Applications, CRC Press, Boca Raton, (1999).
- [2] T. Miyoshi, *TENKI* **52** (2005) 3.
- [3] R. Kobayashi, et al., *Physica D* **63** (1993) 410.
- [4] Y. Mishin, et al., *Phys. Rev. B* **59** (1999)

3393.

[5] E. Miyoshi, et al., Comput. Mater. Sci 152
(2018) 118.