

jh240012

## 六方晶合金デンドライト凝固のデータ同化システム開発と形態評価

高木 知弘（京都工芸繊維大学）

本研究では、亜鉛合金を対象とした界面異方性係数と凝固形態の関係評価、多結晶等軸凝固問題における複数の結晶方位を同時に推定するデータ同化の開発、そして適合格子細分化 (AMR) を PF 計算に用いる AMR 加速データ同化の開発を行った。亜鉛合金に関するテーマでは、界面エネルギーの球面調和関数の係数を系統的に変化させたデンドライト成長計算を実施し、異方性がデンドライト形態に与える影響を詳細に考察するとともに、SPring-8 において観察された特徴的な成長形態の再現性について評価を行った。多結晶体に対するデータ同化の開発においては、ensemble transform Kalman filter (ETKF) およびその局所化版である LETKF を導入した。その結果、ETKF は少ないアンサンブルサイズでも高い推定精度を実現でき、さらに、局所化を適用することでその効果が一層向上することを確認した。また、等軸多結晶体における複数の結晶方位とデンドライト形態の同時推定が可能であることを示した。最後に、AMR 加速データ同化を開発し、計算容量を大幅に削減しつつ、均一格子と同等の精度でデータ同化が可能であることを示した。

### 1. 共同研究に関する情報

#### (1) 共同利用・共同研究を実施している拠点名

東京科学大学 情報基盤センター

#### (2) 課題分野

大規模計算科学課題分野

#### (3) 参加研究者一覧と役割分担

高木 知弘（京都工芸繊維大学 機械工学系）：  
研究全体の総轄。

青木 尊之（東京科学大学 総合研究院 スーパー  
コンピューティング研究センター）：大規模  
GPU 計算の総轄，並列 GPU コードのチュー  
ニング。

坂根 慎治（京都工芸繊維大学 機械工学系）：  
並列 GPU コード開発，データ処理用コードの  
作成，データ処理&考察，論文執筆。

山村 彩乃（京都工芸繊維大学 工芸科学研究  
科）：モデル構築，並列 GPU コード開発，計  
算の実行，データ処理&考察，論文執筆。

神吉 俊輔（京都工芸繊維大学 工芸科学研究  
科）：モデル構築，並列 GPU コード開発，計  
算の実行，データ処理&考察，論文執筆。

### 2. 研究の目的と意義

凝固組織はすべての材料組織形成の出発点であり、その高精度な予測は材料組織制御の鍵を握る。合金凝固における代表的な成長形態はデンドライトであり、これまで多くの研究が立方晶合金を対象に行われてきた。しかしながら、近年注目を集めているマグネシウム合金や亜鉛合金などの六方晶合金に関する研究は依然として乏しい。六方晶合金では、合金組成によって界面エネルギーの異方性が大きく変化することが報告されているものの、その定量的評価手法は確立されておらず、これが高精度組織予測の障壁となっている。

本研究では、六方晶合金に焦点を当て、時間分解 X 線 CT (4D-CT) で得られる複雑な等軸多結晶組織データから、結晶方位を高精度に抽出可能なデータ同化システムの開発を目的とする。加えて、先行研究の 4D-CT で観察された特徴的なデンドライト形態の再現性について議論し、精度の高い凝固組織予測に資する基礎データの蓄積を図る。

とりわけ、合金のデンドライト成長に対し

て、大型放射光施設によるその場観察と phase-field (PF) 法による数値計算を直接比較・融合する研究は、これまで実現されていない。本研究の意義は、GPU スーパーコンピュータを活用した大規模 PF 計算と 4D-CT 観察を統合し、六方晶合金に対する世界初のデータ同化を実現することで、凝固組織の理解と予測技術の飛躍的進展に貢献する点にある。

### 3. 当拠点の公募型共同研究として実施した意義

本共同研究では、PF 法を用いた材料組織予測に関する先進的な大規模シミュレーション研究を継続的に展開している。とりわけ、GPU スーパーコンピュータ TSUBAME の活用により、PF 計算の大幅な高速化を実現し、その計算性能が極めて優れていることを確認した。また、複数 GPU による並列計算によって、世界のいかなる研究グループも未だ到達していない時空間スケールでの材料組織形成シミュレーションを可能とした。

これらの成果は国内外の学术界から高く評価されており、本研究のさらなる発展は、計算材料科学の進展に資するだけでなく、日本の計算科学の国際的な存在感を一層高めるものとなる。このような研究の遂行には、複数 GPU による超大規模計算環境が不可欠であり、TSUBAME の計算資源は本研究の中核的な基盤である。

さらに、本研究グループは、PF 法、材料組織学、データ科学、高性能計算 (HPC) といった分野において国際的に活躍する専門家および学生により構成されており、日本発の世界最先端研究を推進できる体制を有している。以上の点から、本研究を当拠点の公募型共同研究として実施した意義は極めて大きい。

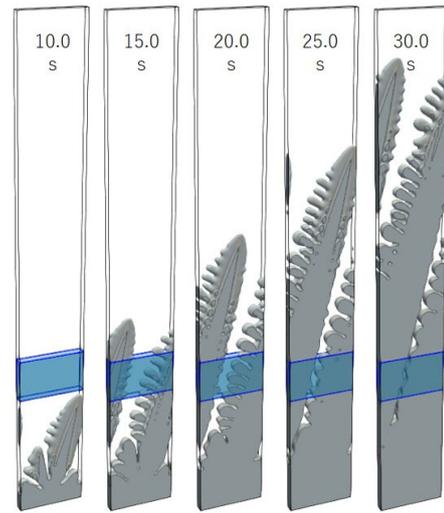


図1 双子実験における観測データとして用いた Al-3wt%Cu 合金の一方方向凝固の PF シミュレーション結果。

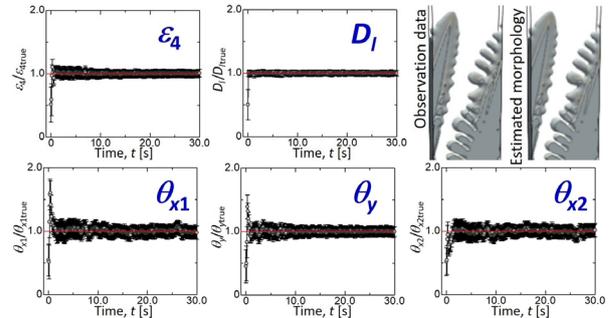


図2 図1を観測データとする双子実験結果。

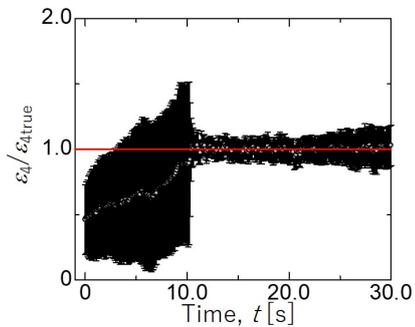


図3 図1の水色領域で推定された  $\varepsilon_4$ 。

### 4. 前年度までに得られた研究成果の概要

本研究は、JHPCN においては今年度からの新規課題であるが、昨年度の HPCI (課題番号: hp230126) で得られた研究成果を基盤としている。以下に、その成果の概要を示す。

二元合金の一方方向凝固に伴う柱状 dendrite 成長を対象とし、PF 法に基づくデータ同化システムを構築した。データ同化には、逐次データ同化手法の一つであるアンサンブルカルマンフィルタ (ensemble Kalman filter,

EnKF) を採用した. 図 1 は, その場観察実験の代替として用いた PF 法による柱状デンドライト成長のシミュレーション結果であり, この結果を観測データと見なしてデータ同化を行う双子実験を実施した.

双子実験の結果を図 2 に示す. 図より, 2 つの物性値 (界面エネルギーの異方性強度  $\epsilon_4$ , 液相内の溶質の拡散係数  $D_l$ ) に加えて結晶方位を表現する 3 つのオイラー角, およびデンドライト形態の同時推定に成功した. このデータ同化には 128 のアンサンプルサイズ (すなわち 128 並列の PF 計算) が必要であり, その計算コストは極めて高かった. この課題に対処するため, 領域分割法と, 計算領域の一部のみをデータ同化の対象とする計算コスト低減手法を開発した.

図 3 は, 図 1 中に示す水色領域に限定して,  $\epsilon_4$  を推定した結果である. デンドライト先端がこの領域に侵入する約 11 秒付近から急激に推定が進み, さらに先端通過後に 2 次アームが発達する約 20 秒付近までは高精度な推定が維持されていることが確認された. このように, 計算領域を限定したデータ同化においても高精度に物性値推定が可能であることを示し, 計算コストを大幅に低減できることを確認した.

以上の成果は, 材料科学分野の国際的なトップジャーナルである *Acta Materialia* (IF = 8.3) に掲載された[A. Yamamura et al., *Acta Mater.* 281 (2024) 120356].

## 5. 今年度の研究成果の詳細

溶融亜鉛めっきは, 工業的に極めて重要なプロセスであるが, その過程で形成されるスパンクルと呼ばれるデンドライト組織の形成メカニズムは未だ明らかになっておらず, 数値シミュレーションによる評価が不可欠である. しかしながら, 亜鉛合金における界面エネルギーやその異方性関数が不明であることが, モデル構築の大きな障壁となっている. さらに, マグネシウム合金や亜鉛合金

は核生成しやすく, 図 1 に示すような明瞭な柱状晶の形成が困難である. その結果, 組織は等軸化しやすく, 結晶方位の取得が難しいという点が実験において重要な課題となっている.

以上の背景を踏まえ, 本研究では以下の 3 つのテーマに取り組んだ. ① 亜鉛合金を対象とした界面異方性と凝固形態の関係解明, ② マグネシウム合金および亜鉛合金における等軸多結晶組織に対するデータ同化システムの開発, ③ 適合格子細分化 (adaptive mesh refinement, AMR) 加速データ同化システム開発である. 以下に, それぞれの研究成果について詳述する.

### 5.1 界面異方性と凝固形態の関係解明

本テーマでは, 産業的需要が非常に高い一方で, 界面物性に関する情報がほとんど存在しない亜鉛合金を対象としている. SPring-8 における Zn-4mass%Al 合金の凝固過程を対象とした 4D-CT 観察では, 図 4(a) に示す等軸多結晶内において, 図 4(b) に示すような, c 軸方向に 6 回対称アームが枝分かれする特徴的なデンドライト形態が確認された[H. Yasuda et al., *IOP Conf. Ser. Mater. Sci. Eng.*, 1281 (2023) 012064]. 亜鉛合金の界面エネルギーの異方性関数は, 球面調和関数により以下のように表現されるとされている.

$$a_s(\tilde{\mathbf{n}}) = \bar{a} (1 + a_2^0 H_2^0 + a_4^0 H_4^0 + a_6^0 H_6^0) \quad (1)$$

この異方性関数の係数  $a_2^0, a_4^0, a_6^0$  を系統的に変化させ, 大規模 PF シミュレーションを実行することで, 界面異方性とデンドライト凝固形態との関係を解明することを目的とした. 図 5 には, それぞれの異方性係数を変化させた PF 計算により得られたデンドライト形態を示す. 計算には  $1024^3$  の格子を用い, 図 4 に示す実験と同一の凝固条件を設定した. この多数の大規模シミュレーションを通じて, 界面エネルギーおよびスティフネスの観点から, 異方性が凝固組織の形態に与える影

響を考察した (図 6). この結果, 界面エネルギーの異方性が  $\langle 10\bar{1}0 \rangle$ ,  $\langle 0001 \rangle$  の 8 方向に成長する典型的な六方晶系デンドライト形態を呈する状態であっても, 図 7 に示すように溶質拡散場との相互作用によって 6 回対称の 1 次アームが  $\langle 0001 \rangle$  に枝分かれして 14 方向に成長するデンドライト形態となる可能性を示した. ただし, 今回の PF 計算では, 4D-CT 観察で得られた図 4(a)に見られるような 14 方向成長は再現されなかった. この結果は, 式(1)による異方性関数の妥当性やその拡張に関する再検討の必要性を示している.

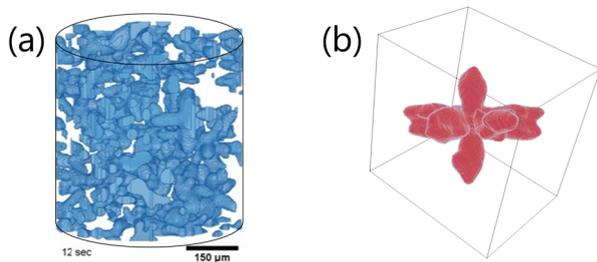


図 4 SPring-8 による Zn-4mass%Al 合金凝固の 4D-CT 観察結果: (a) 円柱サンプル全体の多結晶組織, (b) 1つの等軸デンドライト形態.

以上の成果は論文としてまとめられ, 鉄と鋼 [山村ら, 鉄と鋼, 111 (2025) 326-335] に掲載されたほか, その内容は ISIJ International に転載された [A. Yamamura et al., ISIJ Int. 65 (2025) 695-703].

## 5.2 等軸多結晶に対するデータ同化システムの開発

マグネシウム合金や亜鉛合金において観察される等軸多結晶組織を対象としたデータ同化システムの開発に向けて, 基礎的な検討を段階的に進めた. まず, 六方晶合金の凝固問題に対し, 単結晶を対象としたデータ同化の構築を行い, 異方性パラメータおよび結晶方位の推定を可能とする手法を確立した. 次に, 多結晶体への応用に向け, 局所化手法を導入したデータ同化アルゴリズムを開発した. 最後に, 等軸多結晶組織を対象としたデータ同化を実施し, 開発した手法が多結晶

体の結晶方位推定に対して有効に機能することを確認した.

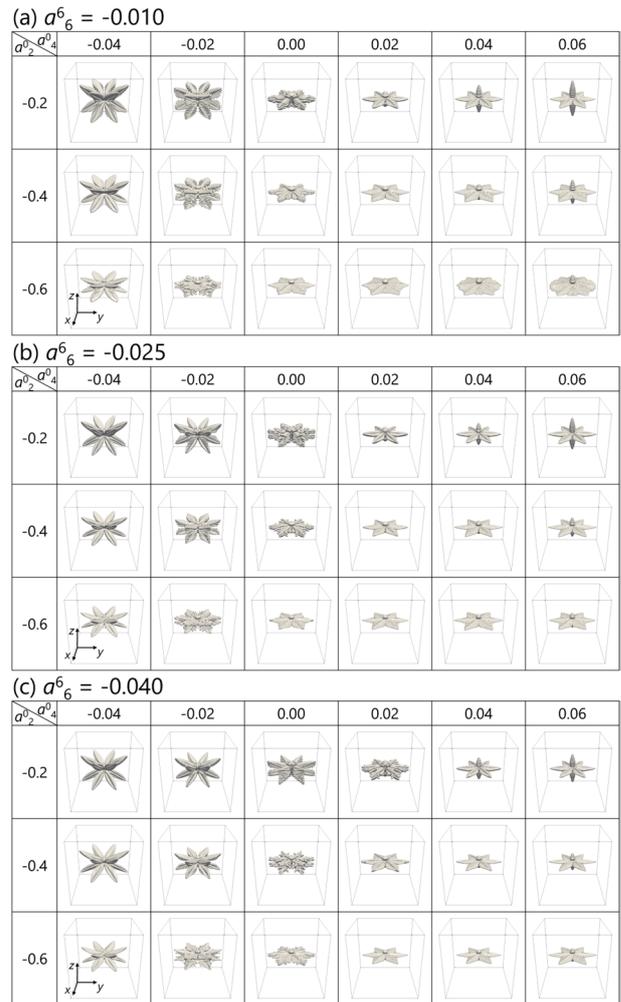


図 5 異方性係数  $a_2^0$ ,  $a_4^0$ ,  $a_6^6$  を系統的に変化させたデンドライト凝固の PF シミュレーション結果: (a)  $a_6^6 = -0.010$ , (b)  $a_6^6 = -0.025$ , (c)  $a_6^6 = -0.040$ .

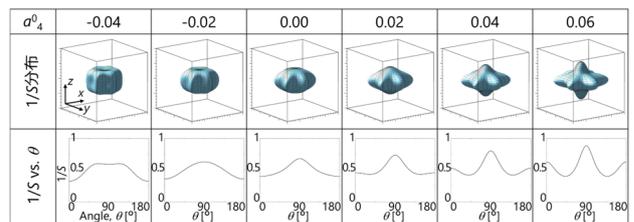


図 6 異方性係数  $a_2^0 = -0.2$ ,  $a_6^6 = -0.01$  の場合のスティネス  $S$  の逆数  $1/S$  の 3 次元分布と  $\varphi = 30^\circ$  のときの  $1/S$  の  $\theta$  方向変化.  $\bar{\gamma} = 1$  と正規化している.

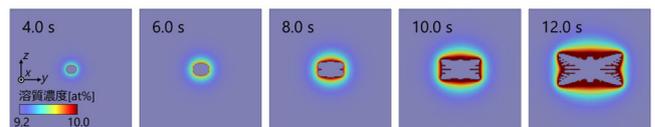


図 7  $a_2^0 = -0.2$ ,  $a_4^0 = -0.02$ ,  $a_6^6 = -0.01$  の場合の  $x = L/2$  面での溶質濃度分布と固相形態 (黒線).

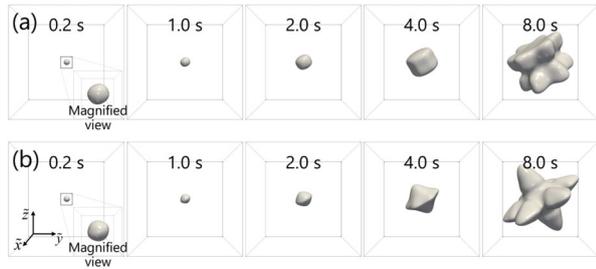


図 8 観測データとして用いる等軸デンドライト成長計算結果 : (a) ( $a^0_2 = -0.2, a^0_4 = -0.04, a^0_6 = -0.01$ ), (b) ( $a^0_2 = -0.2, a^0_4 = 0.06, a^0_6 = -0.01$ ).

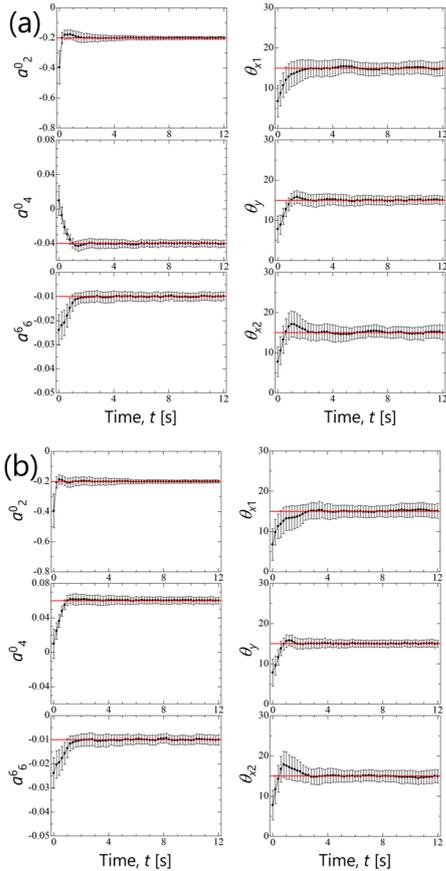


図 9 3 種類の異方性係数と結晶方位を表す 3 つの角度の合計 6 パラメータの同時推定結果 : (a) ( $a^0_2 = -0.2, a^0_4 = -0.04, a^0_6 = -0.01$ ), (b) ( $a^0_2 = -0.2, a^0_4 = 0.06, a^0_6 = -0.01$ ).

### 5.2.1 六方晶系合金に対するデータ同化

先に構築した EnKF を用いたデータ同化システムを式(1)の異方性関数を用いた六方晶系二元合金の等温凝固問題に拡張した。6 方向に成長するアームが c 軸方向に枝分かれする条件と、典型的な 8 方向にアームが成長する 2 条件で実施した PF シミュレーション結果を図 8 に示す。

図 8 の結果を観測データと見なして双子実

験を実施し、式(1)の異方性パラメータ  $a^0_2, a^0_4, a^0_6$  に加えて結晶方位を表す 3 つの角度、計 6 つのパラメータの同時推定を試みた。図 9 にその推定結果を示す。いずれの凝固条件においても、すべてのパラメータに対して、高い精度での推定が達成されていることを確認した。

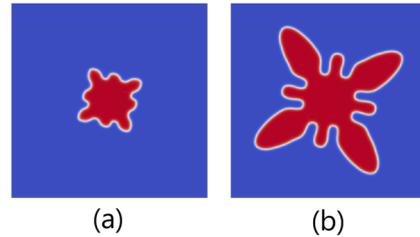


図 10 観測データとして用いる等軸デンドライト成長計算結果 : (a) 10,000<sup>th</sup> step, (b) 50,000<sup>th</sup> step.

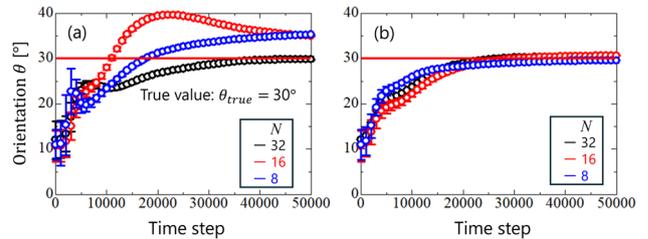


図 11 (a) ETKF と (b) LETKF による双子実験による結晶方位の推定結果。

### 5.2.2 局所化の導入

多結晶体の結晶方位を推定するにあたっては、領域全体を対象とする従来のデータ同化よりも、先に構築した領域分割法の方が有効である。この領域分割法を格子スケールにまで適用する手法は、一般に「局所化」と呼ばれ、本研究では EnKF に対してこの局所化の導入を試みた。さらに、計算コストの削減を図るため、従来のデータ同化システムで採用していた逐次データ同化の観測擾乱 (perturbed observation, PO) 法に代わり、気象分野で広く用いられているアンサンブル変換カルマンフィルタ (ensemble transform Kalman filter, ETKF) を導入した。

図 10 に、観測データとして用いた等軸デンドライト成長の PF 計算結果を示す。データ同化手法の検証を目的として、ここでは 2 次元問題を対象とした。図 11 には、この観測

データに対して実施した双子実験の結果を示す。(a)は局所化を用いない ETKF, (b)は ETKF に対して局所化を導入した局所 ETKF (LETKF) による結果である。それぞれ, アンサンブルサイズ  $N = 32, 16, 8$  として比較評価を行った。その結果, 局所化を導入することでアンサンブルサイズが小さい場合でも高精度な推定が可能となり, アンサンブル数の削減による計算コストの低減効果を確認した。

### 5.2.3 等軸多結晶体に対するデータ同化

単一の PF 変数を用いた多結晶凝固シミュレーションを実現することで, 単結晶を対象としたデータ同化システムを多結晶系へと拡張し, 複数の結晶方位を同時に推定可能とした。図 12(a)に示すように, 2次元等軸多結晶 dendrait の成長を対象とした PF シミュレーションを実施し, この結果を観測データと見なして双子実験を行った。ここでは, 複数の dendrait 形態と, 各結晶粒の結晶方位を同時に推定することを試みた。

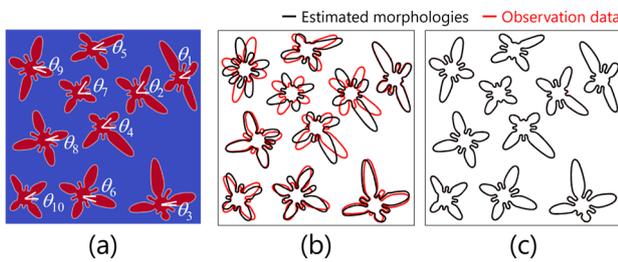


図 12 (a) 観測データとして用いる等軸多結晶 dendrait 成長計算結果。(b) ETKF と(c) LETKF によるデータ同化で得られた形態推定結果。アンサンブルサイズ  $N = 8$ 。

図 12 に, アンサンブルサイズ  $N = 8$  に設定した双子実験の結果を示しており, (b)は ETKF, (c)は LETKF による形態推定結果(黒線)と観測データ(赤線)をそれぞれ示している。また, 図 13 には, 図 12(c)に対応する全結晶粒における結晶方位の推定結果を示す。これらの結果から, 局所化を導入したデータ同化手法により, 等軸多結晶体における dendrait 組織の形態と各結晶粒の結晶

方位を, 高精度に同時推定できていることが確認された。

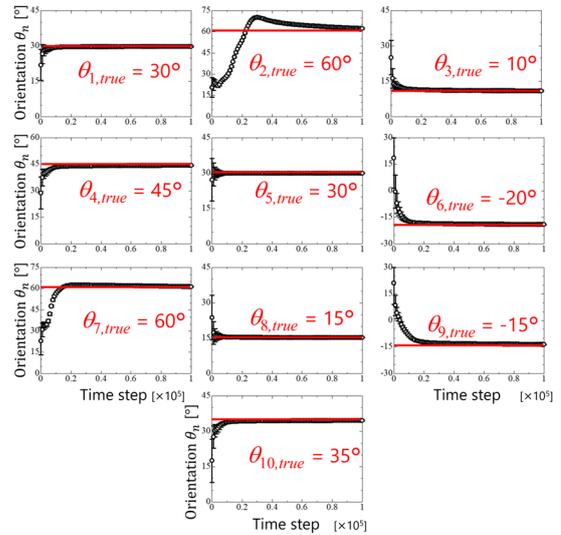


図 13 LETKF を用いたデータ同化 (図 12(c)) における全ての結晶粒の方位推定結果。

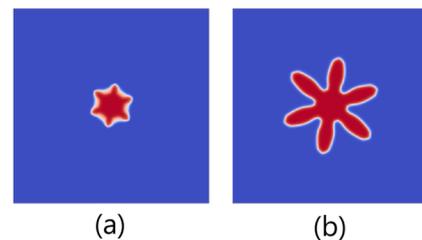


図 14 観測データとして用いる六方晶等軸 dendrait 成長計算結果: (a) 10,000<sup>th</sup> step, (b) 50,000<sup>th</sup> step。

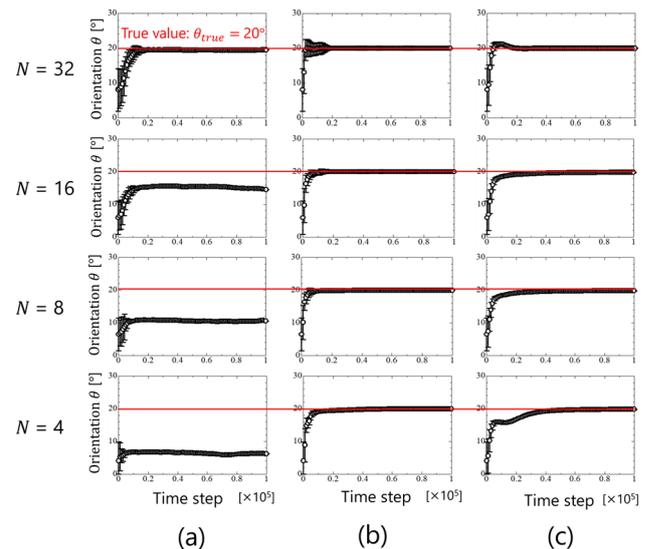


図 15 (a) PO 法, (b) ETKF, (c) LETKF を用いた場合の結晶方位の推定結果。アンサンブルサイズ  $N = 32, 16, 8, 4$ 。

また, 本データ同化システムを, マグネシウム合金を対象とした六方晶系に拡張し, 図

14 に示す等軸晶成長を対象として双子実験を行い、PO 法と ETKF の比較、また局所化の効果を評価した。図 15 は、アンサンブルサイズ  $N=8$  とした (b) PO 法, (b) ETKF, (c) LETKF での結晶方位の推定結果を示す。この結果、六方晶のデータ同化では ETKF の導入によって、アンサンブルメンバーの削減による計算コストの低減が可能であることを確認した。

### 5.3 AMR 加速データ同化システムの開発

実際の X 線その場観察結果を用いたデータ同化を実現するためには、5.2 で開発したデータ同化の効率化手法に加え、PF 計算自体の高速化も必須である。そこで、PF 計算側からデータ同化を加速するために、AMR 加速データ同化システムを開発した。図 16 は、開発した AMR ブロック分割データ同化のイメージである。アンサンブルメンバーごとに異なる dendrite 形態を有することがフィルタリングの障壁となる点が課題であった。この問題を解決するため、全アンサンブルメンバーに対して共通の AMR 格子を用いる手法を開発した。

開発した AMR 加速データ同化の性能評価として、図 1 に示す薄膜内での柱状 dendrite 成長を対象とした双子実験を実施し、AMR 高速化と均一格子を用いた従来のデータ同化の計算効率を比較した。図 17 は、AMR 格子 (黒線) と均一格子 (青線) を用いた双子実験結果であり、異なるアンサンブルサイズのデータ同化に対して、均一格子ではそれぞれ (a) 2, (b) 4, (c) 8 GPU を必要としたのに対し、AMR 格子ではすべてのケースで 1 GPU での実行が可能であったことから、計算コストの大幅な削減が確認された。

さらに、先行研究では計算コストの制約から実施が不可能であった、実験と同一サイズの大規模な計算領域を用いたデータ同化においても、AMR 加速データ同化を適用する

ことで物性値推定が可能であることを確認した (図 18)。

以上の研究成果は、2025 年 6 月にスペイン・マドリードで開催される凝固の国際会議、ICASP7 にて発表予定である。また、本成果は、同会議の論文集として IOP Conference Series: Materials Science and Engineering に投稿した。

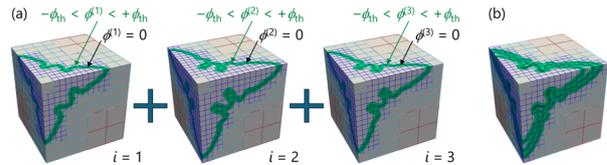


図 16 AMR ブロック分割データ同化のイメージ. (a) 異なる物性値を用いた 3 つの PF 計算での AMR 格子. (b) アンサンブルサイズ  $N=3$  での AMR 加速データ同化の AMR 格子.

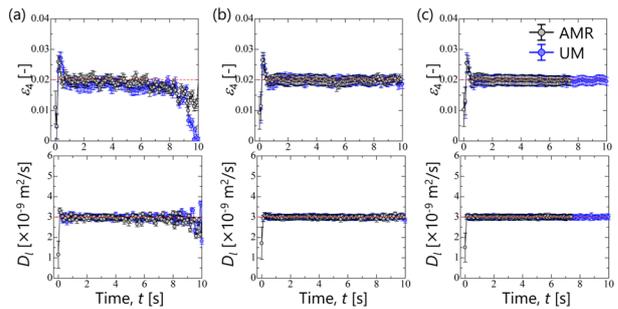


図 17 図 1 を観測データとし、AMR 格子 (黒線) と均一格子 (青線) を用いた双子実験結果。アンサンブルサイズ  $N=(a) 32, (b) 64, (c) 128$ 。

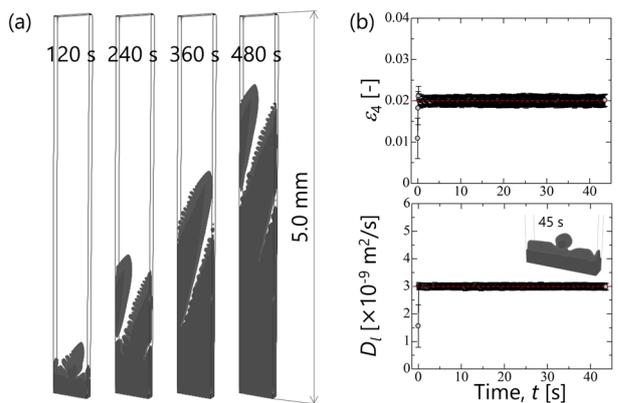


図 18 (a) 観測データとして用いる、実験結果と同じ計算領域サイズの柱状 dendrite 成長計算結果. (b)  $N=128$  での物性値推定結果.

## 6. 進捗状況の自己評価と今後の展望

本研究では、亜鉛合金を対象とした界面異方性係数と凝固形態の関係評価、多結晶等軸凝固問題における複数の結晶方位を同時に推定するデータ同化手法の開発、AMR 加速データ同化の開発を行った。

亜鉛合金に関する検討では、界面エネルギーの異方性関数として一般的に用いられる球面調和関数の係数を系統的に変化させ、デンドライト成長のシミュレーションを実施した。これにより、異方性がデンドライト形態に与える影響を詳細に考察するとともに、SPring-8 において観察された特徴的な成長形態の再現性についても評価を行った。しかしながら、従来の球面調和関数では、実験で観察された 14 方向へのアーム成長を再現するには至らなかった。

多結晶体に対するデータ同化の開発においては、ETKF およびその局所化版である LETKF を導入した。その結果、ETKF は従来の PO 法に比べ、より少ないアンサンブル数

でも高い推定精度を実現できることを確認した。さらに、局所化を適用することでその効果が一層向上することを確認した。また、等軸多結晶体における複数の結晶方位とデンドライト形態の同時推定が可能であることも示した。

PF 計算の高速化を目的として AMR を導入したデータ同化を実現するため、全アンサンブルメンバーに対して共通の AMR 格子を適用する AMR 加速データ同化手法を開発した。これにより、計算容量を大幅に削減しつつ、均一格子と同等の精度でデータ同化が可能であることを示した。

現在は、球面調和関数に新たな項を導入した異方性関数に対して、同様のデンドライト形態評価を実施中であり、SPring-8 で観察された成長形態を再現可能な異方性関数の探索を進めている。さらに、多結晶データ同化システムの 3 次元化を図り、実際の X 線その場観察データに適用可能なフレームワークの構築を目指して研究を進めている。