

jh250030

Phase-field 法とデータ科学による デンドライト成長計算に必要となる物性値推定

高木 知弘（京都工芸繊維大学）

材料開発のデジタルツインに向けた基盤構築を目的として、phase-field (PF) 法を援用し、限られた実験観察情報から多角的な情報を抽出する技術の開発に取り組んだ。まず、凝固途中に急凍結した試料の 2 次元断面から、界面エネルギーの異方性強度の抽出および 3 次元組織の再構成を可能とする機械学習モデルを構築し、PF シミュレーション結果を教師データとした数値実験によりその精度を評価した。次に、薄膜の X 線その場観察における時系列透過像からの物性値推定および 3 次元再構成を目指し、粒子フィルタを用いたデータ同化システムを構築した。本システムを 2 次元問題に適用した基礎評価の結果、3 次元再構成には至っていないものの、物性値推定と形態再構成が可能であることを確認した。さらに、ベイズ最適化による物性値推定も並行して実施した。以上より、限られた実験観察情報に PF シミュレーションを融合することで、多角的な情報抽出を実現する手法の基盤を構築した。

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，研究の方向性の決定，考察，
論文執筆。

青木 尊之（京都工芸繊維大学 高性能シミュ
レーション研究センター）：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。

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

丸橋 文（京都工芸繊維大学 工芸科学研究
科）：データ同化，並列 GPU コード開発，計
算の実行，データ処理&考察，論文執筆。

矢野 遥己（京都工芸繊維大学 工芸科学研究
科）：機械学習，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

材料開発のデジタルツインに向けた基盤構築が急務であり、phase-field (PF) 法を援用して限られた実験観察情報から多角的な情報を抽出する技術の確立が求められている。本研究では、この課題を解決するために、合金の一方向凝固過程における急凍結試料の 2 次元断面組織から物性値を推定可能な機械学習モデルを開発する（目的 1）。さらに、X 線観察による時系列透過像からデンドライ

トの3次元成長を再構成するとともに、物性値推定を可能とするデータ同化システムを構築する(目的2)。これらの研究では、PF法による数値計算を基盤とし、実験とシミュレーションを多様な次元で融合するデータ科学的な手法の確立を目指す。最終的に、連続体ベースの数値シミュレーションを活用した材料開発のデジタルツイン実現に向けた基盤を構築する。

材料開発は日本が強みを有する研究分野であり、データ科学の導入によって開発速度の飛躍的向上が期待されることから、マテリアルズ・インフォマティクス(MI)の取り組みが進展している。しかしながら、既存のMI研究の多くは原子構造など素材レベルの離散系を対象としており、材料特性を決定づけるメゾスケールの材料組織を対象とした連続体系への適用は未だ十分ではない。本研究は、メゾスケールの材料組織を対象とするMIの基盤を確立し、限られた実験観察情報を入力とすることで、その後の材料挙動を数値シミュレーションにより予測可能とするマテリアルDXの実現手法を構築するものである。これにより、材料開発プロセスの高度化および効率化に大きく貢献することが期待される。

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展開してきた。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するとともに、その計算性能の優位性を示した。さらに、複数GPUによる並列計算により、従来は困難であった時空間スケールにおける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い評価を受けており、本研究のさらなる発展

は、計算材料科学の進展に資するのみならず、日本の計算科学の国際的な存在感を一層高めることが期待される。このような研究の遂行には、複数GPUを用いた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研究者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。

4. 前年度までに得られた研究成果の概要

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結晶方位の同時推定を可能とするデータ同化手法の開発、および適合格子細分化(AMR)をPF計算に導入したAMR加速データ同化の開発を行った。

亜鉛合金に関する研究では、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 dendrite 成長計算を実施し、異方性が dendrite 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を評価した。

多結晶体に対するデータ同化手法の開発では、ensemble transform Kalman filter (ETKF) およびその局所化手法である local ensemble transform Kalman filter (LETKF) を導入した。その結果、ETKFは比較的小さなアンサンブルサイズでも高い推定精度を実現でき、さらに局所化の適用によりその精度が一層向上することを確認した。また、等軸多結晶体において、複数の結晶方位と dendrite 形態の同時推定が可能であることを示した。

AMR加速データ同化手法を開発し、計算コスト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。

5. 今年度の研究成果の詳細

5.1. 断面組織からの物性値推定

2次元と3次元問題を対象として、畳み込みニューラルネットワーク (CNN) を用いた機械学習モデルを構築した。

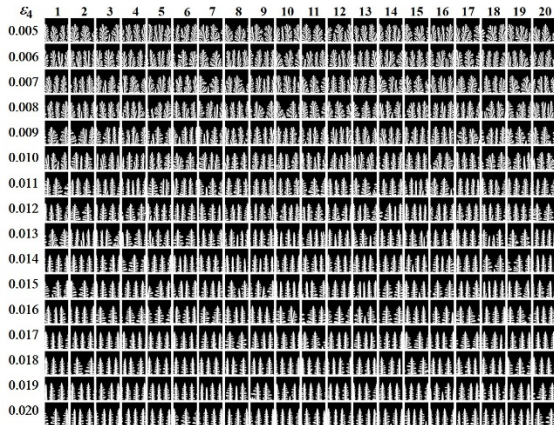


図 1 Al-3wt%Cu 合金の 2 次元一方向凝固計算結果. 白色領域は固相, 黒色領域は液相. 界面エネルギーの異方性強度 ϵ_4 を 16 通り, ノイズを 100 通りに変化させ, 合計 1600 ケースの計算を実施した. ここではそのうちの 320 ケースの結果を示す.

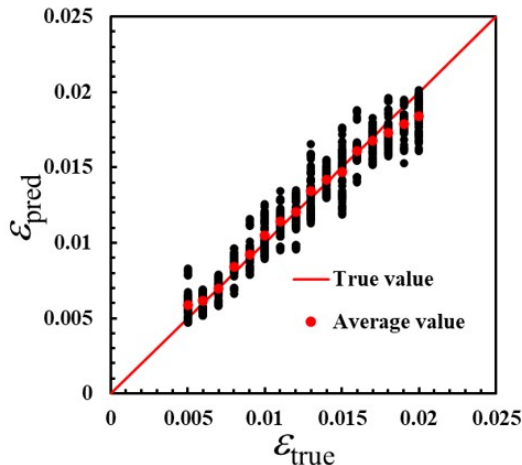


図 2 CNN による ϵ_4 の推定結果. ノイズを 100 通り変化させた結果から 10 データを学習に用い, 残りから 10 データに対して推定を行った. 横軸は ϵ_4 の真値 ϵ_{true} , 縦軸は推定値 ϵ_{pred} . 黒点は 10 個の推定値, 赤点はそれらの平均値, 赤実線は $\epsilon_{pred} = \epsilon_{true}$.

Al-3 wt%Cu 合金の 2 次元一方向凝固シミュレーションを実施した. 界面エネルギーの異方性強度 ϵ_4 を 0.005 から 0.02 まで

0.001 刻みで 16 通りに変化させ, さらに各 ϵ_4 に対してノイズを 100 通り変化させることで, 合計 1,600 ケースのシミュレーションを行った. 図 1 に, 20 通りのノイズ条件における dendritic 形態を示す. 図 2 は, 各 ϵ_4 に対して 10 通りの異なるノイズに対する dendritic 形態で学習した際の ϵ_4 の推定結果であり, 学習に用いていない別の 10 通りのノイズに対する結果に対して推定を行った. その結果, 推定値 ϵ_{pred} は真値 ϵ_{true} を挟んで揺らぐものの, 平均値は ϵ_{true} と良好に一致することが確認された. 学習データ数を増加させることで ϵ_{pred} の揺らぎは減少し, 平均値はより ϵ_{true} に近づき, 本研究で構築した CNN モデルが ϵ_4 を高精度で推定可能であることが示された. また, dendritic が温度勾配方向から傾く場合の評価も試みた. 本成果は国際会議 ICASP7 にて発表され, 国際会議論文として出版された.

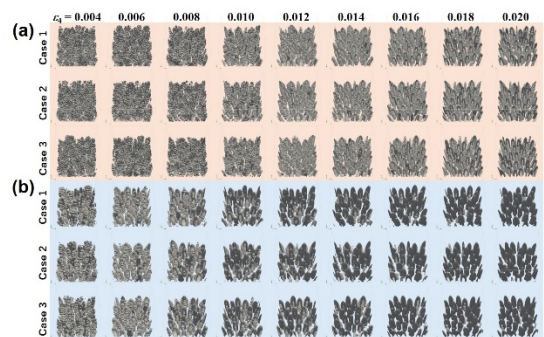


図 3 Al-3wt%Cu 合金の 3 次元一方向凝固計算結果. 界面エネルギー γ を $\gamma =$ (a) 0.10 J/m², (b) 0.25 J/m² とし, 界面エネルギーの異方性強度 ϵ_4 を 9 通り, ノイズを 3 通り (Case 1-3) に変化させ, 合計 54 ケースの計算を実施した.

Al-3 wt%Cu 合金の 3 次元一方向凝固シミュレーションを実施した. 固液界面エネルギー γ を 0.10 J/m² および 0.25 J/m² の 2 通り, 界面エネルギーの異方性強度 ϵ_4 を 0.004 から 0.020 まで 0.002 刻みで 9 通りに変化させ, さらに各組合せに対してノイズを 3 通り設定し, 合計 54 ケースの

シミュレーションを行った。図 3 に、これら 54 ケースで得られたデンドライト形態を示す。また、図 4 には、図 3 の Case 3 において x 方向に 32 格子間隔で取得したデンドライト断面画像を示す。図 5 は、Case 1 と Case 2 から x, y の 2 方向に 32 格子間隔で取得した 1152 枚を学習に用いた際の、各 γ における推定結果であり、Case 3 から同様に取得した 576 枚に対して推定を行った。その結果、いずれの γ においても推定平均値は $\varepsilon_{\text{true}}$ と良好に一致することが確認された。ただし、 γ の大きさによる形態の違いにより推定精度には差が生じ、 $\gamma = 0.10$ の場合の方が高精度であった。

以上の成果については、現在学術論文を執筆中である。

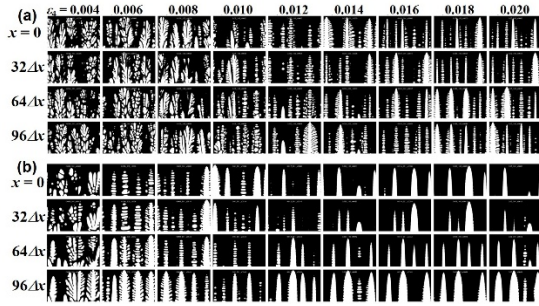


図 4 図 3 の Case 3 の $\gamma =$ (a) 0.10 J/m^2 , (b) 0.25 J/m^2 の結果に対し、 x 方向に 32 格子間隔で取得した断面組織 (yz 面)。白色領域は固相、黒色領域は液相。

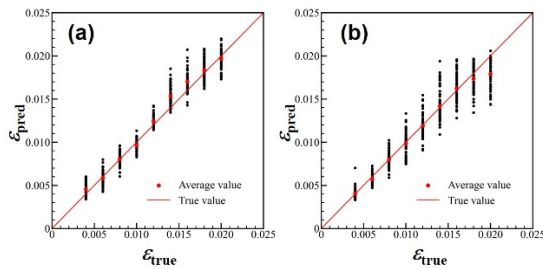


図 5 $\gamma =$ (a) 0.10 J/m^2 , (b) 0.25 J/m^2 における ε_4 の推定結果。Case 1 と Case 2 から 32 格子間隔で取得した 1152 枚を学習に用い、Case 3 から同様に取得した 576 枚に対して推定を行った。横軸は ε_4 の真値 $\varepsilon_{\text{true}}$ 、縦軸は推定値 $\varepsilon_{\text{pred}}$ 。黒点は 64 個の推定値、赤点はそれらの平均値、赤実線は $\varepsilon_{\text{pred}} = \varepsilon_{\text{true}}$ 。

5.2. 時系列透過像からの 3 次元形態推定

逐次データ同化手法の一つである粒子フィルタ (PF) を用いたシステムを構築し、まず純物質の二次元凝固問題に適用し界面物性推定を可能とした。図 6 に示す純 Al の 2 次元等温凝固シミュレーションを行い、その結果を観測データとする EnKF と PF を用いた双子実験を行った結果を図 7 に示す。この結果、粒子フィルタでは粒子数やシステムノイズを適切に設定すれば、フィルタリング間隔が現象に対して長く、線形性が低い場合でも、界面を乱さずに推定可能であることを確認した。一方、EnKF ではより少ない粒子数で推定が可能であり、今後、両手法の融合した手法の開発により、効果的な推定が実施できる可能性がある。この成果は国際会議 ICASP7 で発表され、国際会議論文として出版された。

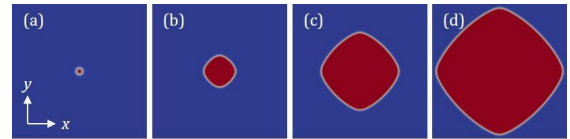


図 6 純 Al の 2 次元等温凝固計算結果。赤色領域は固相、青色領域は液相。この計算で得られた固相形態の時系列データを観測データとする。

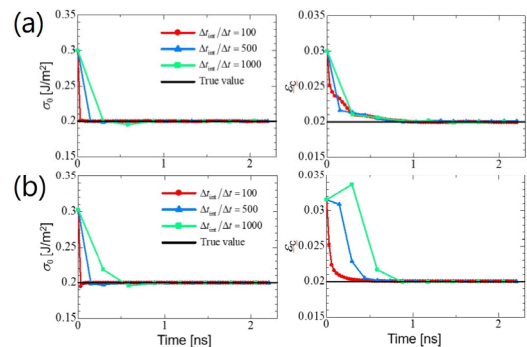


図 7 図 6 の観測データを用いた (a) PF および (b) EnKF による σ_0 と ε_c の推定結果。黒線が真値、色付き実線が推定結果を示し、フィルタリング間隔を 100, 500, 1000 step と変化させた結果を示す。粒子数は 512 とした。

さらに、本システムを二元合金に拡張し、同様の評価を行った。図 8 は Al-3wt%Cu 合金の 2 次元等温凝固シミュレーション結果であり、この結果を観測データとした EnKF と PF による双子実験での形態誤差の推移を図 9 に示す。この結果から、PF と EnKF を比較すると、EnKF では粒子数が 32 程度と小さい場合では形態が乱れ、推定精度が著しく下がる一方で、PF ではより多くの粒子が必要となるものの、形態の不安定化は起こらないことを確認した。この成果については現在、学術論文を執筆中である。

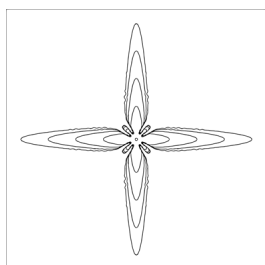


図 8 Al-3wt%Cu 合金の 2 次元等温凝固計算結果。得られた固相形態の時系列データを観測データとする。

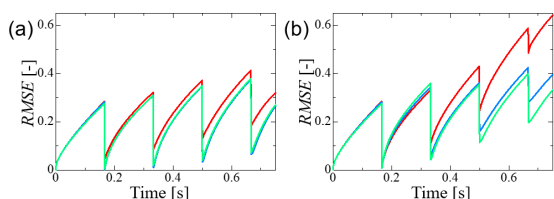


図 9 (a) PF および (b) EnKF を用い、粒子数を変化させた場合の推定結果における形態誤差の時間発展。黒線が真値、色付きの実線が全粒子の平均で得られる推定結果を示し、赤が粒子数 32、青が粒子数 64、緑が粒子数 128 の結果を示す。

以上の成果に立脚し、時系列の透過像データからの 3 次元再構成を PF によって試みるシステムを構築予定である。この目的に向けて、透過像の輝度分布に対応する固相率分布を観測データとする双子実験を実施した。図 10 では、(a)に示す固相形態から求めた、(b)x 方向の固相率分布を観測データとして、(c) PF を用いて物性値を推定した結果を示している。薄膜厚さが大きい場合は、EnKF を用いた先行研究では推定が不安定化したのに対して、PF を用いる

ことで、より安定に推定が行える可能性を確認しており、今後より詳細な評価を行う。

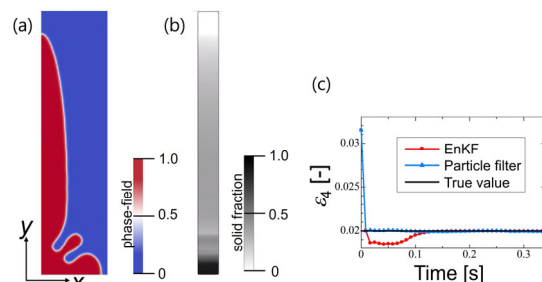


図 10 Al-3wt%Cu 合金の 2 次元一方向凝固計算で得られた (a) デンドライト形態から算出した (b) 固相率分布を用いた PF による (c) 物性値推定結果。

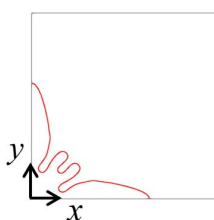


図 11 Al-3wt%Cu 合金の 2 次元等温凝固計算結果。この計算で得られた形態データを正解データとした。

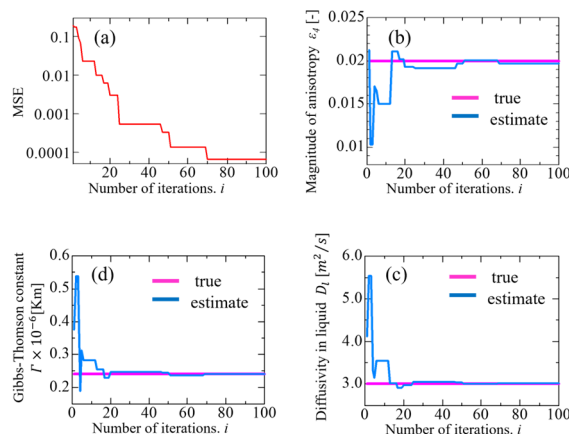


図 12 図 11 の形態を正解としたベイズ最適化での (a) 推定結果における形態誤差および (b) 溶質拡散係数 D_l , (c) ギブストムソン係数 Γ , (d) 異方性強度 ϵ_f の推定結果。

また、少ない情報からのデータ取得手法として、ベイズ最適化を用いた物性値推定手法の開発を目指している。図 11 は Al-3wt%Cu 合金の 2 次元等温凝固計算結果であり、この計算で得られた形態データを正解データとする。0.19 および 0.21 s の 2 つの時刻での正解データとの形態誤差を目

的関数としたベイズ最適化による物性値推定結果を図 12 に示す. この結果から, 少ない時刻のデータからの物性値推定が可能であることを示した. 今後, この手法を発展させ, 薄膜の 2 次元透過像データのみからの情報取得を可能にする手法を開発する.

5.3. 断面組織からの 3 次元組織再構成

5.1 の発展として, 断面組織からの 3 次元組織再構成手法の開発に取り組んだ. 実験的な 3 次元観察は時間と費用の負担が大きいことから, より迅速かつ低コストの 3 次元組織構築手法として, 機械学習を用いた再構成手法が注目されている. しかしながら, 実用化に向けては学習に用いるデータの量と質の確保が課題である. 本研究では, PF シミュレーションによって取得した大規模かつ高精度な 3 次元組織を教師データとして用い, 2 次元断面から 3 次元組織を生成する機械学習モデルを構築した. 図 13(a)は Al-3wt%Cu 合金の 3 次元一方向凝固シミュレーション結果であり, 図 13(b)に示すある高さの範囲での組織を抽出した. このとき, PF 計算の溶質流束のノイズを変更して 10 通りの計算を行い, そのうち 9 つを学習データ, 残り 1 つをテストデータとして数値実験を行った. 学習の際は, 学習データから取得した 2 次元断面画像をエンコーダ・デコーダ型ニューラルネットワークに入力し, 生成された組織と元のデータとの間の誤差を最小化するように機械学習モデルを構築した. 図 14 に, 学習済みのニューラルネットワークにテストデータの断面画像を入力して行った組織再構成結果を示す. 図 14(a)はテストデータの例であり, この組織から得られる, z 方向および x 方向の入力断面を図 14(b)および(c)に示す. これらを入力して生成した 3 次元組織を図 14(d)および(e)に示す. (d)では, 一次アームの位置や形状, 二次アームの大きさ

など, 主要な形態を概ね再現できていることが確認された. (e)では, 一次アームの成長方向や二次アームのおおよその特徴を捉えることができているが, 一次アームの位置や形状の再現には至っていない. つまり, 本モデルにおいては z 断面を入力とした場合の方が, より真の組織形態に近い予測が可能であるといえる. 以上の結果から, PF シミュレーション結果を学習データとして, 2 次元断面から一定の再現性を有する 3 次元組織生成が可能であることを示した.

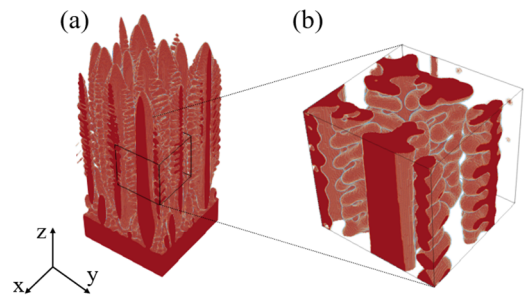


図 13 Al-Cu 合金の 3 次元一方向凝固計算結果. (a)全体に対して, (b)ある高さの領域を取り出して学習データとして用いた.

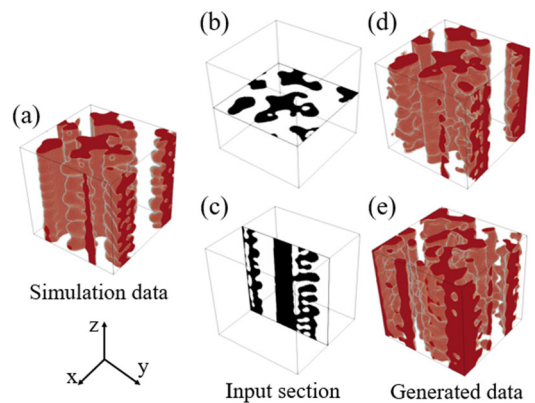


図 14 (a)テストデータ, (b) z 方向および(c) x 方向の入力断面, (d) z 断面から生成した 3 次元 dendrait 形態および(e) x 断面から生成した 3 次元 dendrait 形態.

5.4. 亜鉛合金の界面異方性

昨年度の実施内容である六方晶合金の亜鉛 dendrait 凝固に対するデータ同化研究を発展させた内容について, 論文出

版に至ったため、この成果を報告する。図 15(a)に、大型放射光施設 SPring-8 を用いて得られた Zn-4wt%Al 合金の特徴的なデンドライト形態を示す。このように、 $\langle 0001 \rangle$ 方向に向かって六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得られており、 $\langle 0001 \rangle$ 方向の 2 本のアームと合わせて 14 方向へのデンドライト成長が見られる。

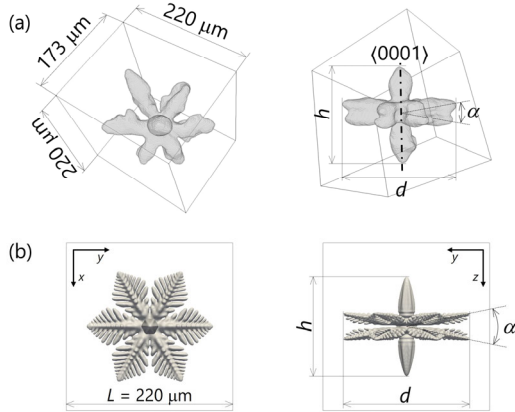
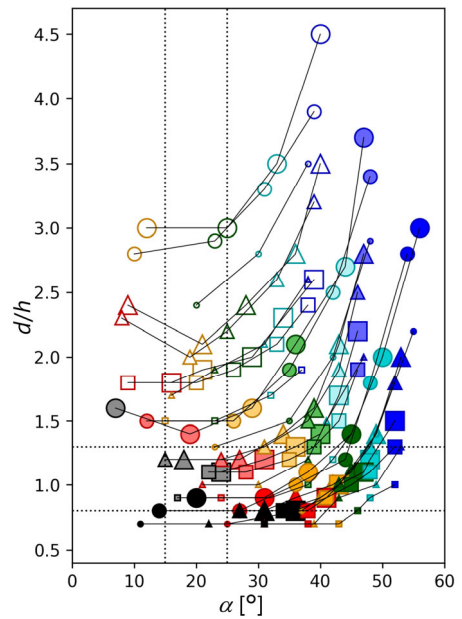


図 15 (a)Zn-4wt%Al 合金の多結晶組織から発見された特徴的なデンドライト形態および(b)それを再現する PF 計算結果。

昨年度の成果では、先行研究において提案されてきた六回対称の界面エネルギー異方性関数に含まれる 3 つの係数 a^0_2 , a^0_4 , a^0_6 を系統的に変化させ、多数の PF シミュレーションを実施することで、各係数が形態に与える影響を詳細に評価した。この結果においては、図 15(a)に示すデンドライト形態は再現されなかった。そこで、今年度には、この結果を発展させ、図 15(a)の形態は従来の界面異方性関数では再現されず、新たな $a^0_6 H^0_6$ 項を導入する必要があることを示した。図 15(b)に、 $a^0_6 H^0_6$ 項を加えた PF シミュレーションで得られた形態を示す。また、図 16 に、デンドライト形態への異方性係数 a^0_2 , a^0_4 , a^0_6 , a^6_6 の影響を評価した結果を示す。この結果より、各係数はそれぞれデンドライト形態に明確に影響を及ぼすことを確認した。図 17 に、図 16 において点線で囲まれた、図 15(a)の実験結果

に近い形態が得られた係数の 10 個の組み合わせ(A)-(J)に対するデンドライト形態（上段）と平衡形（下段）を示す。図 17 の結果より、 a^0_2 以外の係数が平衡形に与える影響はほとんどない一方で、デンドライト形態には大きく影響することを実証した。この結果から、これらの係数は平衡形だけからの取得は困難であり、成長形からの取得が不可欠であることを示した。



a^0_2	a^0_4		a^0_6	a^6_6
-0.2	○	0.02	0.02	●
-0.4	●	-0.02	0.04	▲
-0.6	●	0.00	0.06	■
		0.04	0.06	●
		0.06	0.06	●
				●
				●
				●
				●
				●

図 16 界面異方性係数のデンドライト形態への影響。

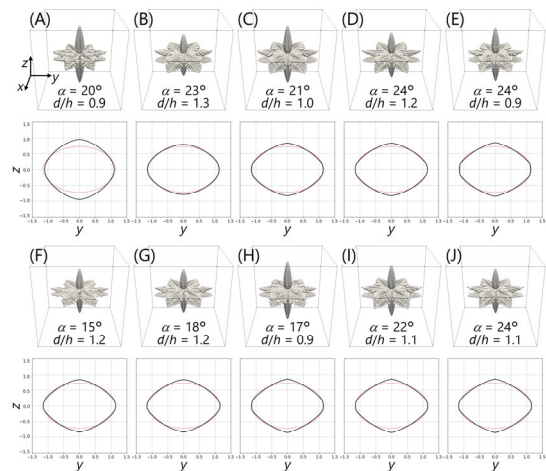


図 17 図 16 の破線枠内の 10 個の係数の組み合わせに対するデンドライト形態（上段）と平衡形断面（下段）。

5.5. 平滑界面からの効果的な物性値推定

昨年度実施した、適合格子細分化 (AMR) 法を導入した AMR 加速 PF データ同化を発展させて今年度実施し、論文出版に至った成果を報告する。

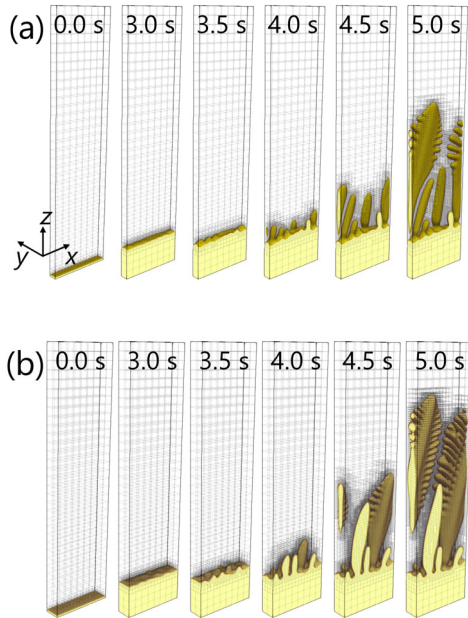


図 18 Al-Cu 合金の平滑界面からの $L_y =$ (a) $32\Delta x$, (b) $64\Delta x$ での 3 次元計算結果. この計算結果を観測データとして用いる.

昨年度の成果として、PF データ同化システムに AMR 加速を導入し、性能評価を行った結果、従来の均一格子の結果に対して AMR 格子では大幅な計算コスト削減が可能であることを示した。また、この結果において、とくに凝固初期で大幅に計算効率化が達成された。このことから、平滑界面からの凝固初期の形態変化に着目することで、効率的に物性値を取得できるのではないかと着想し、平滑界面からの効果的な物性値推定を試み、各物性値がどの形態から推定可能かを評価した。図 18 に、Al-3wt%Cu 合金の平滑界面からの一方向凝固における、薄膜厚さ $L_y =$ (a) $32\Delta x$ および (b) $64\Delta x$ の場合の計算結果を示す。この結果を観測データとしたデータ同化結果をそれぞれ図 19(a) および (b) に示す。この結果から、平滑界面から界面が乱れてセル成長に

遷移するまでの形態から、物性値 D_l , Γ , ε_4 および結晶方位 θ_{x1} , θ_y , θ_{x2} の全パラメータが推定できており、平滑界面からの初期の凝固形態からの効果的な推定が可能であることを示した。

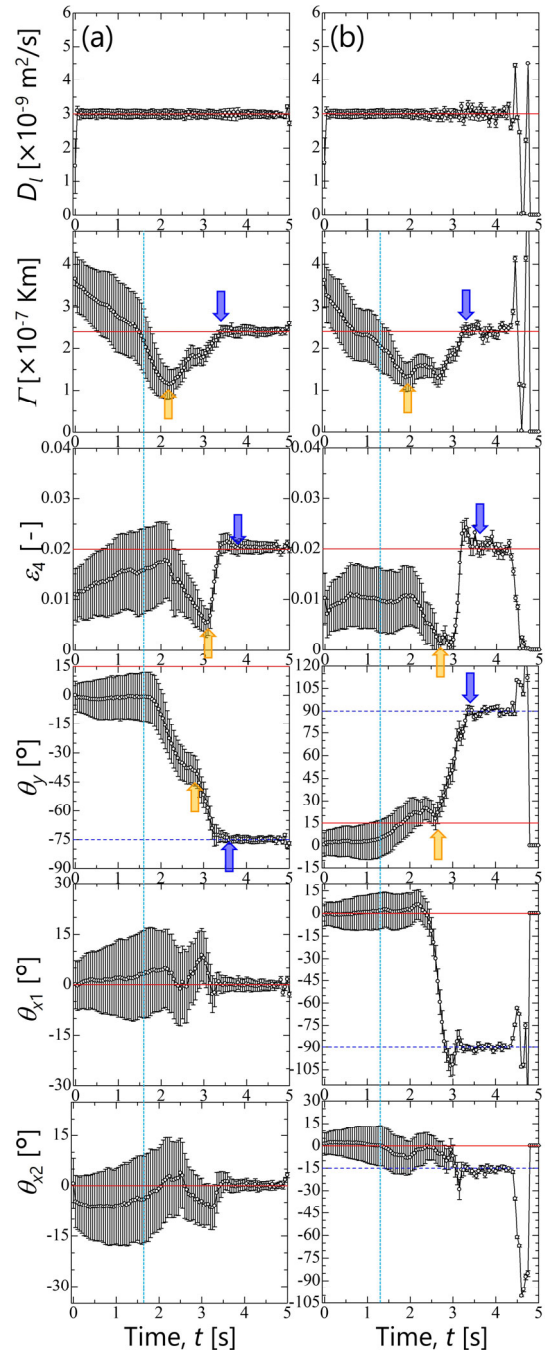


図 19 図 18 の結果を観測データとしたデータ同化結果 (薄膜厚さ $L_y =$ (a) $32\Delta x$ および (b) $64\Delta x$). 平滑界面が乱れてセル成長が始まるまでにすべてのパラメータ (D_l , Γ , ε_4 , θ_{x1} , θ_y , θ_{x2}) が推定できている。

6. 進捗状況の自己評価と今後の展望

2次元断面組織からの物性値推定および3次元構造再構成は、概ね計画通りに進展した。今後は、複数物性値の同時推定、三元系以上の溶質を含む合金への拡張、実験組織への適用、ならびに3次元再構成手法の精度向上に取り組む予定である。

薄膜試料のその場観察を用いる研究では、粒子フィルタを用いたデータ同化の基礎システム構築を達成したものの、3次元化には至っていない。一方で、ベイズ最適化に基づく手法についても並行して開発を進めることができた。今後は、粒子フィルタ、アンサンブルカルマンフィルタ、ベイズ最適化の利点を組み合わせたハイブリッド手法を開発し、さらなる精度向上を図る。

さらに、昨年度から継続している亜鉛合金の界面エネルギー異方性評価およびAMRを用いたデータ同化に関する研究についても進展があり、いずれも学術論文投稿に至った。

以上のように、JHPCNの枠組みで研究を推進することにより、材料開発のデジタルツイン実現に向けた基盤技術は着実に確立されつつあり、全体として順調に進展していると評価できる。今後も関連研究を発展させ、材料開発に資するデジタル技術の高度化を推進していく。