

jh170018

分子動力学法とフェーズフィールド法の融合による 粒成長の高精度解析法の構築

高木知弘（京都工芸繊維大学）

金属材料は多結晶組織を有しており、この組織を如何に微細化し高強度化を達成するかが、金属材料の軽量化や新材料開発において鍵となる。このため、多結晶組織を形作る粒成長過程を高精度に予測することが重要である。昨年度の研究において、分子動力学法による自発的凝固核生成から粒成長までを連続して評価可能な計算に成功した。一方で、粒成長は粒界移動の駆動力が小さく、特に粒サイズが大きくなると組織発展が極端に遅くなり、分子動力学法のみによる計算は困難となる。そこで本研究では、分子動力学法とフェーズフィールド法計算を連続して行うことで、凝固核生成から粒成長後期までを連続して表現可能な、新しい高精度粒成長解析法の構築を目指す。本年度は、分子動力学法による 1 億原子系に対する長時間の粒成長計算を行った。また、分子動力学計算から得られる多結晶構造を初期構造とするマルチフェーズフィールド法による粒成長計算を可能とした。

1. 共同研究に関する情報

(1) 共同研究を実施した拠点名

東京工業大学

(2) 共同研究分野

- 超大規模数値計算系応用分野
- 超大規模データ処理系応用分野
- 超大容量ネットワーク技術分野
- 超大規模情報システム関連研究分野

(3) 参加研究者の役割分担

高木 知弘（京都工芸繊維大学・機械工学系）
研究全体の総轄，GPU 並列コーディング，大規模フェーズフィールド計算実行，データ処理&考察，論文執筆

青木 尊之（東京工業大学・学術国際情報センター）

大規模 GPU 計算の総轄，並列 GPU コードのチューニング

大野 宗一（北海道大学・大学院工学研究院）
定量的フェーズフィールドモデル構築，データ整理&考察，論文執筆

澁田 靖（東京大学・大学院工学系研究科）
大規模分子動力学計算の実行，大規模分子動力学計算データ整理&考察，論文執筆

下川辺 隆史（東京大学・情報基盤センター）
並列 GPU コードのチューニング，大規模デー

タ処理&可視化サポート

坂根 慎治（京都工芸繊維大学・工学科学研究科）

GPU 並列コーディング，データ処理用コードの作成

三好 英輔（京都工芸繊維大学・工学科学研究科）

大規模フェーズフィールド計算実行，フェーズフィールド計算データ処理&考察，論文執筆

大喜多 慎（東京大学・大学院工学系研究科）

大規模分子動力学計算の実行，分子動力学計算データ処理&考察，論文執筆

2. 研究の目的と意義

通常の金属材料は多結晶組織を有しており、この組織を如何に微細化し高強度化を達成するかが、金属材料の軽量化や新材料開発において鍵となる。多結晶組織を形作る粒成長 (grain growth) は高温の材料内部で生じる現象であり、実験による観察は不可能である。そのため、コンピュータシミュレーションによる再現が不可欠となる。

昨年度の研究において、分子動力学 (molecular dynamics : MD) 法による自発的

凝固核生成から粒成長までを連続して評価可能な計算に世界で初めて成功した。これは、演算性能の高い Graphics Processing Unit (GPU)による計算の高速化と、複数 GPU 並列化による計算の大規模化によって達成された。しかしながら粒成長は粒界駆動力が小さく、特に粒サイズが大きくなる粒成長後期は MD による計算は極めて困難となる。そこで本研究では、凝固核生成から粒成長後期までを連続して表現可能な、MD とフェーズフィールド (phase-field: PF) 計算を連続して行う、新しい高精度粒成長解析法の構築を目的とする。

材料開発を加速させるための新しい潮流であるマテリアルズ・インフォマティクス戦略が世界各国で立ち上がり、競争が激化している。構造材料開発においては、メゾスケールにおける材料組織を精度良く表現可能な PF 法の利用が不可欠である。しかしながら実材料の挙動を表現するには、①モデルの精度が不十分であること、②界面物性値の情報が不足していること、③計算コストが高いことの3つの未解決問題が残っており、マテリアルズ・インフォマティクスで用いる準備が整ったとはいえない状況である。このため、PF 計算における上記問題の解決が喫緊の課題である。本研究はこれらの問題解決に取り組むものであり、マテリアルズ・インフォマティクスを成功させ新材料開発を加速させるために極めて重要かつ意義深い研究である。また、異なるスケールを扱う MD 法と PF 法を連続して用いる計算法は殆ど例がなく、特に大規模シミュレーションを適用したものは皆無である。このように、新しい手法の提案という点において極めて独創性が高く、当該分野に与えるインパクトの大きい研究である。

3. 当拠点公募型共同研究として実施した意義

申請者らのこれまでの研究成果より、GPU の利用によって PF 計算と MD 計算の極めて良好な高速化を達成可能であることが示された。また、両手法の複数 GPU 並列計算によって、世界的にまだどのグループも達成できない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が可能であることを示した。本一連の研究は、国内外で極めて高く評価されており、本研究を発展させることは計算材料学の更なる発展に大きく寄与し、また日本の研究力を世界に示すことができる。この研究は複数 GPU を用いた大規模計算によって初めて達成できるため、GPU スパコン TSUBAME の利用が不可欠である。加えて、本研究グループは、PF 法 (高木・大野)、MD 法 (澁田)、材料学 (高木・大野・澁田)、大規模計算 (青木・下川辺) の各分野の研究を牽引する研究者によって構成され、本共同研究を行うことで日本発の世界一の研究が可能となる。以上のことから、本研究を当拠点公募型共同研究として実施する必要性は極めて高い。また、当該分野において最先端の研究を行うという点で意義深い研究である。

4. 前年度までに得られた研究成果の概要

粒成長に関する研究は、平成 27 年度から行っている。以下、27 年度と 28 年度の過去 2 年間の成果を示す。

4.1 MD コードの GPU 化と単一 GPU 計算

純鉄に対する Finnis-Sinclair (FS)ポテンシャルを用いた単一 GPU 用コードを作成し、MD 計算の高速化に対しても GPU 計算は効果的であることを確認した。

図 1 は、単一 GPU を用いた MD 計算による、純 Fe 過冷却融液からの自発的均質核生成とその後の凝固過程の結果である [Acta Mater. 105 (2016) 328-337]。詳細な考察の結果、核生成速度は、融液内の 20 面体クラスターの密度と自己拡散の大きさのバランスによ

って決定され、それによってある温度において核生成速度が最大となることを明らかにした。

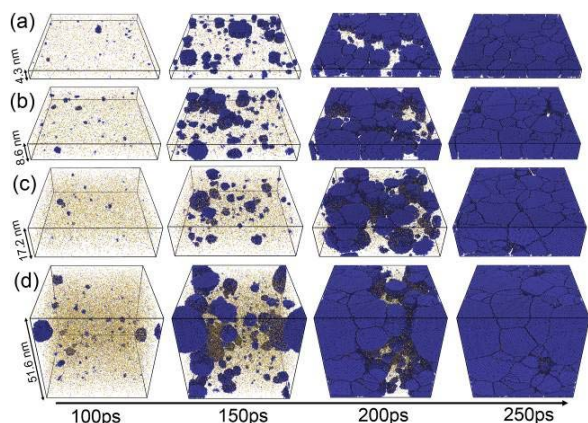


Fig. 1 Effects of system thickness on MD simulations during nucleation and solidification from undercooled pure Fe. [Acta Mater. 105 (2016) 328-337]

4.2 超大規模 MD シミュレーション

MD 計算を大規模かつ高速化するため、複数 GPU 並列コーディングを行い、良好な並列演算性能を確認した。次いで、10 億原子の超大規模シミュレーションに成功した。この規模の計算になると可視化およびデータ処理が困難になる。このため、原子情報を規則格子情報に落とし込む粗視化と、粒方位や隣接粒との方位差などを決定するデータ処理を TSUBAME 上で行うコードも作成した。

上記 10 億原子系超大規模 MD シミュレーションのデータを整理し、詳細な考察を行うことで論文を執筆し、Nature Communications に掲載された [Nature Communications, 8 (2017) 10]. 図 2 に計算より得られたスナップショットを示す。系の初期サイズは $236.8 \times 236.8 \times 236.8 \text{ nm}^3$ 、鉄原子数は 1.024×10^9 個である。ポテンシャルには bcc Fe に対する FS ポテンシャルを用い、温度は融点 T_m に対して $0.58T_m$ と $0.67T_m$ を対象とし、2,000 ps の計算を 512 GPU を用いて行った。この結果より、凝固終了直後の方位分布は完全にランダムであり統計的に十分な領域サイズであること、均質核生成は完全にランダムではなく

先に核生成した核周辺に不均質な核生成が生じやすいことなど、新しい発見を得た。

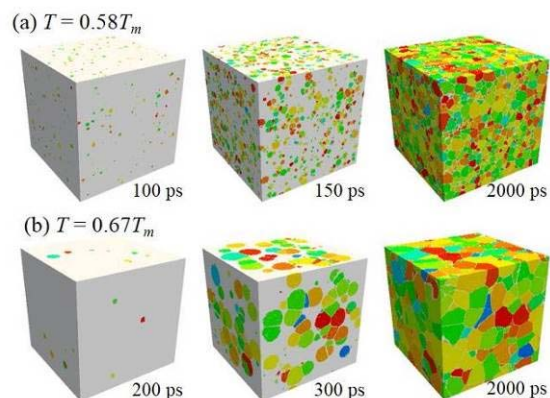


Fig. 2 Snapshots during very-large-scale MD simulations with spontaneous homogeneous nucleation and solidification. [Nature Communications, 8 (2017) 10]

4.3 大規模粒成長 MD シミュレーション

図 2 に示した MD 計算を更に長時間行くと粒成長を見ることが出来る。しかしながら、図 2 の計算で用いた領域は超大規模であり、これを長時間続けることは現実的ではない。このため、約 1/10 の 1 億原子（正確には 113,246,208 原子）、 $110 \times 110 \times 110 \text{ nm}^3$ の初期領域サイズを対象として粒成長シミュレーションを行った。温度 T は、図 6 と同じ $0.58T_m$ と $0.67T_m$ を対象とし、128 GPU を用いて並列計算を行った。図 3 は、 $T = 0.58T_m$ における組織変化のスナップショットである。粒が粗大化し粒数が減少していることがわかる。

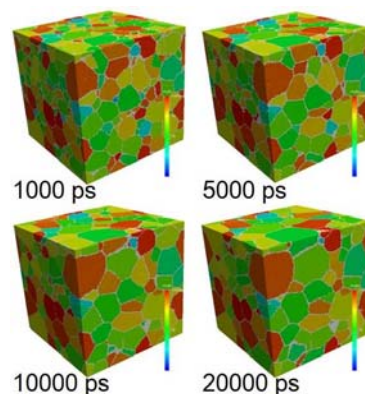


Fig. 3 Snapshots during large-scale MD simulation of grain growth.

4.3 MPF モデルの並列 GPU コーディング

PF 法によって図 3 のような粒成長を表現する場合、図 4 に示すように粒毎に PF 変数 ϕ_i を用いるマルチフェーズフィールド (multi-phase-field: MPF) モデルを用いる。つまり、例えば 100 万個の結晶粒を取り扱う場合、100 万個の ϕ_i を各格子点に保存する必要がある。しかしながら、これは膨大なメモリを必要とする。このため、active parameter tracking (APT) と呼ばれる手法を用いることでメモリを節約し、MPF モデルの GPU 並列化を行った。

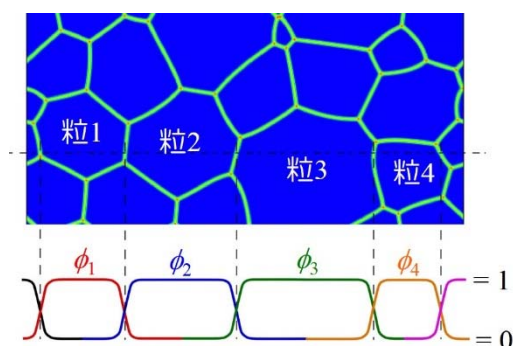


Fig. 4 Multi-phase-field variables for polycrystalline system.

4.4 超大規模 PF 粒成長シミュレーション

図 5 に、構築した GPU 並列 MPF コードを用いた超大規模理想粒成長シミュレーションの結果を示す [npj Computational Materials 3 (2017) 25]. 格子点数は $2,560^3$ 、初期粒数は 3,125,000 個、使用した GPU 数は 800 である。本シミュレーションは、これまで行われた粒成長シミュレーションのサイズを圧倒する世界最大の理想粒成長シミュレーションであり、35,000 ステップから 75,000 ステップ間において定常成長状態を達成することができた。図 6 は、定常成長時 (75,000 ステップ) における粒サイズ分布を示している。実線はこれまで正しいと信じられてきた Hillert 理論である。図 6 からわかるように、本計算で得られた実際の粒サイズ分布は Hillert 理論とは異なる分布を示し、これまで広く認められて

きた理論を覆す成果を得た。また、本成果に基づき、理想粒成長に関する幾つかの新しい理論式を提案した。

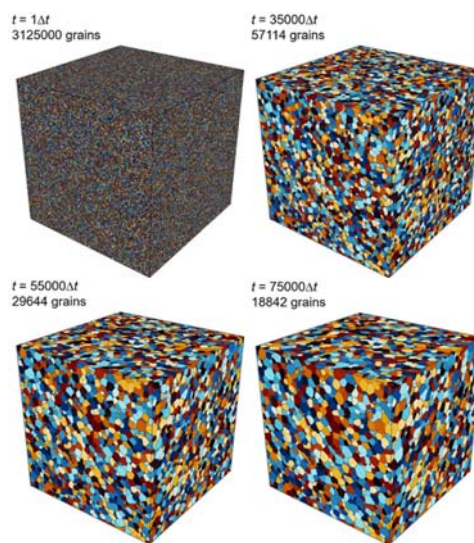


Fig. 5 Snapshots during very-large-scale MPF grain growth simulation.

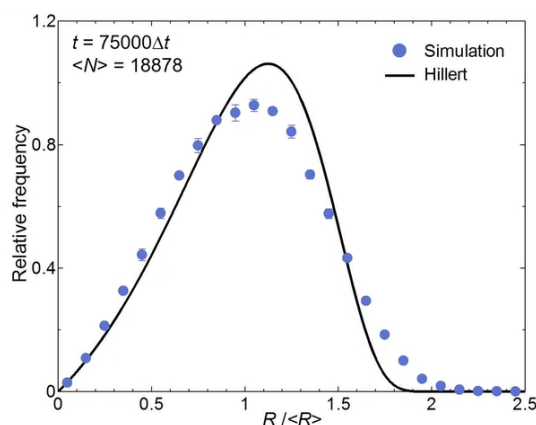


Fig. 6 Grain size distribution at steady state growth condition (75,000th step).

5. 今年度の研究成果の詳細

第 4 章で示したように、過去 2 年間の MD と MPF を用いた本粒成長研究は極めて良好に進行している。今年度は、昨年度までの成果によって Nature 系のジャーナルに 2 編の論文を掲載するに至った。いずれも超大規模計算によってのみ達成できた成果であり、本共同研究が極めて効果的に行われていることを示している。本年度は、図 3 に示した大規模 MD 粒成長計算を継続して行い、結果を考察することで論文を執筆し掲載された。ま

た、MD 計算結果を MPF 計算の初期構造とする MD と MPF の連続計算を可能とする手法を構築し、論文を投稿した。以下、各成果を説明する。

5.1 大規模 MD 粒成長シミュレーション

図 3 に示す MD 粒成長シミュレーションを、初期原子位置を変えて 2 通り、30,000 ps まで行い、結果に対する詳細な考察を行った。図 7 に多結晶形態の時間変化を示す。図(a)は液相からの固相核生成とその後の凝固、図(b)は粒成長過程である。 $t = 500$ ps において約 1500 個の粒が、 $t = 30000$ ps において 150 個まで単調に減少し、2 つのシミュレーションにおいてほぼ同じ粒サイズで変化していることがわかる。このため、粒成長を表現するには十分な空間を確保できていることがわかる。図 8 は、2 乗平均粒半径 $\langle r(t) \rangle^2$ の時間変化を示している。等方性粒界特性における理想粒成長においては、

$$\langle r(t) \rangle^2 - \langle r(t_0) \rangle^2 = KM\sigma(t - t_0) \quad (1)$$

で表される放物線成長則が成り立つことが知られており、図 8 中の実線で示すように粒成長初期は式(1)に従った変化が確認される。しかしながら、 $t = 5000$ ps 以降では変化が直線からずれていることがわかる。なお、式(1)において、 K は粒構造の幾何学的な情報を反映したカイネティック係数、 M は粒界モビリティ、 σ は粒界エネルギーであり、理想粒成長問題ではいずれも定数である。 $t = 5000$ ps における理想粒成長からのずれは、 $KM\sigma$ が変化したことにより生じる。これを詳細に考察した結果、 K は粒成長の過程ではほぼ一定で、 *reduced mobility* と呼ばれる $M\sigma$ が時間とともに単調に減少することに起因することを明らかにした。

上記の成果は、冶金学の分野で最も権威のあるジャーナルの一つである *Acta Materialia* (IF = 5.301) に投稿し採択された。

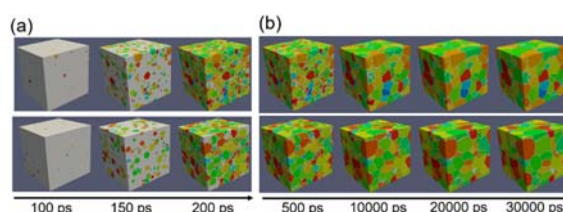


Fig. 7 Snapshots of simulation cells for (a) initial nucleation, solidification and (b) subsequent grain growth for two independent calculations of 30000 ps.

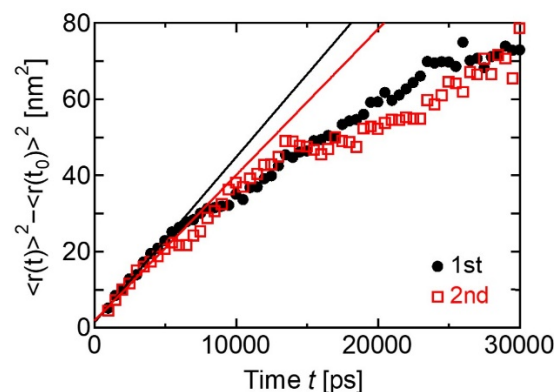


Fig. 8 Squared average grain size as a function of time.

5.2 MD 粒構造を用いた MPF 計算法の開発

MD と MPF により粒成長計算を連続的に行うために、MD 計算で得られる多結晶構造を MPF データに変換する方法を構築した。図 9 に擬 2 次元計算の結果を示す。MD 計算は、[Scientific Reports 5 (2015) 13534]の結果を用いた。図 9 は MD 粒成長計算結果 (左図) から、MPF 計算用初期データ (右図) を作成する流れを示したものである。まず、MD 計算結果に対して、方位差 3° 以下の隣接原子を一つの単結晶と判断するクラスタ判定を行う (左図)。次いで、原子配置に対して MPF 計算で用いる差分格子を重ね、格子点の方位を決定する。この際、格子点の方位情報は完全にステップ状であるため、曲率効果を排除した MPF 緩和計算を行い、MPF 計算用初期構造 (右図) を得る。

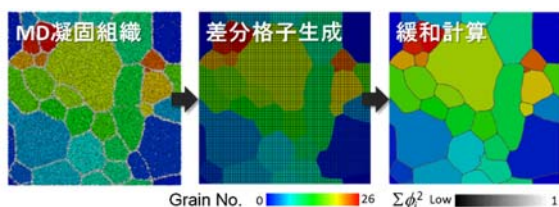


Fig. 9 Procedure to develop an initial polycrystalline structure for MPF simulation from MD simulation result.

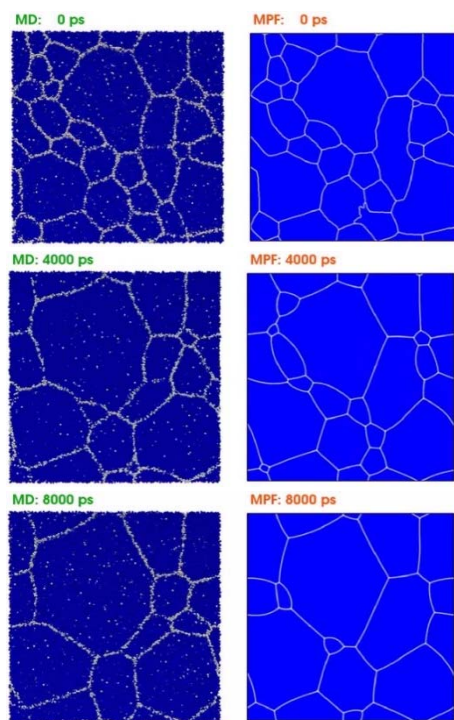


Fig.10 MD and MPF grain growth simulations from the same initial polycrystalline structure.

図 10 は、図 9 の多結晶構造からの MD (左図) と MPF (右図) による粒成長計算結果である。粒界を 3° 以上としているため、MD と MPF 間において初期構造から少しの違いがあり、時間発展とともに多結晶構造の違いが大きくなっている。本 MPF 計算は、粒界特性を等方性としているため、MD 計算結果と一致しないのは仕方ないが、全体的な粒成長の傾向は予想していたよりもよく一致しており、極めて興味深い結果である。また、図 11 に示すように、3 次元問題でも同様の作業とシミュレーションを可能とし、5.1 節の MD 粒成長シミュレーション結果の考察において用いられた。

上記の成果は論文を執筆し、現在ジャーナルに投稿中である。

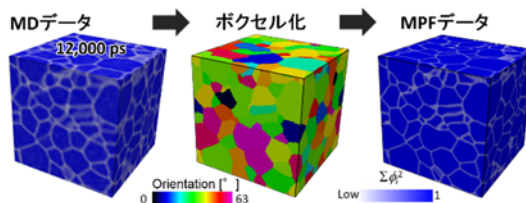


Fig. 11 Computational procedure to initiate MPF polycrystalline structure from three-dimensional MD simulation result.

5.3 3D 組織とその 2D 断面組織の関連付け

図 5 に示す超大規模理想粒成長マルチフェーズフィールドシミュレーションのデータを用いて、3 次元多結晶組織とその 2 次元断面組織の関係付けを可能とする理論式の導出に成功した。実際の組織観察は、今日でも 2 次元断面組織観察が主流であり、2 次元断面組織から 3 次元組織を予測する技術の確立は材料開発の分野において大変重要である。

上記の成果は論文を執筆し、現在ジャーナルに投稿中である。

6. 今年度の進捗状況と今後の展望

今年度は、研究成果が Nature 系ジャーナルである Nature Communications (IF = 13.092) と npj Computational Materials の 2 編のジャーナルに出版され、いずれに対してもプレスリリースを行うに至った。また、これらの継続研究の成果が Acta Materialia (IF = 5.301) に掲載され、確実に研究が進んでいることを証明している。1 年間に渡って継続的に TSUBAME による計算を行うことができ、ポイントを計画的に消費することができた。さらに、MD から PF への連続した粒成長シミュレーションを可能とし、新しいマルチスケール解析法の構築に至った。今後、本手法の高精度化を図るべく研究を継続する。

7. 研究成果リスト

(1) 学術論文

E. Miyoshi, T. Takaki, M. Ohno, Y. Shibuta, Bridging molecular dynamics and phase-field methods for grain growth prediction, (2018). (submitted)

E. Miyoshi, T. Takaki, M. Ohno, Y. Shibuta, S. Sakane, T. Shimokawabe, T. Aoki, Correlation between three-dimensional and cross-sectional characteristics of ideal grain growth: Large-scale phase-field simulation study, (2018). (submitted)

S. Okita, E. Miyoshi, S. Sakane, T. Takaki, M. Ohno, Y. Shibuta, Grain growth kinetics in submicrometer-scale molecular dynamics simulation, Acta Materialia (2018). (in press)

Y. Shibuta, S. Sakane, E. Miyoshi, S. Okita, T. Takaki, M. Ohno, Heterogeneity in homogeneous nucleation from billion-atom molecular dynamics simulation of solidification of pure metal, Nature Communications 8 (2017) 10.

S. Okita, W. Verestek, S. Sakane, T. Takaki, M. Ohno, Y. Shibuta, Molecular dynamics simulations investigating consecutive nucleation, solidification and grain growth in a twelve-million-atom Fe-system, Journal of Crystal Growth 474 (2017) 140-145.

E. Miyoshi, T. Takaki, M. Ohno, Y. Shibuta, S. Sakane, T. Shimokawabe, T. Aoki, Ultra-large-scale phase-field simulation study of ideal grain growth, npj Computational Materials 3 (2017) 25.

E. Miyoshi, T. Takaki, Multi-phase-field study of the effects of anisotropic grain-boundary properties on polycrystalline grain growth, Journal of Crystal Growth 474 (2017) 160-165.

(2) 国際会議プロシーディングス

無し

(3) 国際会議発表

Y. Shibuta, S. Sakane, E. Miyoshi, S. Okita, T. Takaki, M. Ohno, Molecular dynamics approach to solidification microstructure [invited], TMS 2018 Annual Meeting & Exhibition (TMS2018), March 11-15, 2018, Phoenix Convention Center, Phoenix, Arizona, USA

E. Miyoshi, T. Takaki, M. Ohno, Y. Shibuta, S. Sakane, T. Shimokawabe, T. Aoki, Statistical behavior of ideal grain growth: an ultra-large-scale phase-field simulation study, TMS 2018 Annual Meeting & Exhibition (TMS2018), March 11-15, 2018, Phoenix Convention Center, Phoenix, Arizona, USA

E. Miyoshi, T. Takaki, M. Ohno, Y. Shibuta, S. Sakane, T. Shimokawabe, T. Aoki, Phase-field study on the comparison of grain growth microstructures from three-dimensional and cross-sectional observations, 10th Pacific Rim International Conference on Modeling of Casting and Solidification Processes (MCSP2017), Aug. 21-23, 2017, Macrolink Legend Hotel, Beijing, China.

Y. Shibuta, S. Sakane, E. Miyoshi, S. Okita, T. Takaki, M. Ohno, Molecular dynamics approach to nucleation and solidification [Invited], 10th Pacific Rim International Conference on Modeling of Casting and Solidification Processes (MCSP2017), Aug. 21-23, 2017, Macrolink Legend Hotel, Beijing, China.

S. Okita, S. Sakane, E. Miyoshi, T. Takaki, M. Ohno, Y. Shibuta, Grain growth in large-scale

molecular dynamics simulation, 10th Pacific Rim International Conference on Modeling of Casting and Solidification Processes (MCSP2017), Aug. 21-23, 2017, Macrolink Legend Hotel, Beijing, China.

Y. Shibuta, S. Sakane, E. Miyoshi, S. Okita, T. Takaki, M. Ohno, Very large scale molecular dynamics simulation of solidification [Invited Lecture], 6th Decennial International Conference on Solidification Processing (SP17), 25th-28th July 2017, Beaumont Estate, Old Windsor, UK.

(4) 国内会議発表

○三好英輔, 高木知弘, 澁田靖, 大野宗一, 分子動力学計算による生成組織を初期構造とした Multi-Phase-Field 粒成長計算, 日本機械学会 第 30 回計算力学講演会, 2017/9/16-18. (近畿大学 東大阪キャンパス)

○三好英輔, 高木知弘, 大野宗一, 澁田靖, 坂根慎治, 青木尊之, 断面観察からの立体的結晶粒組織の推定に関する Phase-Field 法による研究, 日本鉄鋼協会第 174 回秋期講演大会, 2017/9/6-8. (北海道大学 札幌キャンパス)

○大喜多慎, 澁田靖, 坂根慎治, 高木知弘, 大野宗一, 粒成長停滞機構解明に向けた超大規模分子動力学法シミュレーション, 日本鉄鋼協会第 174 回秋期講演大会, 2017/9/6-8. (北海道大学 札幌キャンパス)

○三好英輔, 高木知弘, 大野宗一, 澁田靖, 坂根慎治, 下川辺隆史, 青木尊之, 大規模 3D multi-phase-field 計算に基づく 2D 断面上の粒成長挙動評価, 第 22 回計算工学講演会, 2017/5/31-6/2. (ソニックシティー)

(5) その他 (特許, プレス発表, 著書等)

理想粒成長の統計的ふるまいを超大規模シミュレーションにより解明 (京都工芸繊維大学

<https://www.kit.ac.jp/2017/07/nature-partner-journal/>), E. Miyoshi, T. Takaki, M. Ohno, Y. Shibuta, S. Sakane, T. Shimokawabe, T. Aoki. Ultra-large-scale phase-field simulation study of ideal grain growth, npj Computational Materials 3 (2017) 25.

完全な均質核生成は起こりえるのか? — スパコンを用いた超大規模分子動力学シミュレーションで実証 — (東京大学, 京都工芸繊維大学, 北海道大学 http://www.t.u-tokyo.ac.jp/foe/press/setnws_20170406154030766965468182.html), Y. Shibuta, S. Sakane, E. Miyoshi, S. Okita, T. Takaki, M. Ohno. Heterogeneity in homogeneous nucleation from billion-atom molecular dynamics simulation of solidification of pure metal, Nature Communications 8 (2017) 10.