



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	データ同化に基づく金属の凝固シミュレーションのパラメータ推定 [全文の要約]
Author(s)	岡, ゆきみ
Description	この博士論文全文の閲覧方法については、以下のサイトをご参照ください。 https://www.lib.hokudai.ac.jp/dissertations/copy-guides/
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(工学)
Dissertation Number	甲第14431号
Issue Date	2021-03-25
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/81321
Type	doctoral thesis
File Information	Yukimi_Oka_summary.pdf



博士論文内容の要約

学位論文題名

データ同化に基づく金属の凝固シミュレーションのパラメータ推定

(Parameter estimation for simulations of solidification in metals based on data assimilation)

氏名 岡 ゆきみ

計算機による金属の凝固シミュレーションは、凝固過程の理解および予測のために有効な手段である。そのため、現在、解析対象に応じた様々なシミュレーション・モデルが提案され、実際に材料開発の場で活用されている。しかし、未知の材料や新規のプロセスを対象とする場合、入力パラメータの値の欠如が多く、シミュレーションで共通の問題となっている。本研究ではデータ科学の手法であるデータ同化[1]を凝固シミュレーションに応用し、拡張性と簡便さを兼備した高精度なパラメータ推定方法の構築を試みた。

第 1 章では、凝固シミュレーションの重要性と入力パラメータの決定に関する既存の問題を指摘した。そして、データ同化の概要について説明した。本論文では、凝固シミュレーションの方法として、メゾスケールのフェーズフィールド法とマクロスケールの凝固伝熱解析のそれぞれに着目した。

メゾスケールの凝固組織を考えると、柱状晶や等軸晶の割合とサイズ、デンドライトアーム間隔、およびマイクロ偏析など、鑄片品質に影響を与える多くの因子がある。鑄造材の物性・品質はこれらの組織因子によって直接決定される。したがって、金属材料の製造において、凝固組織を高精度にコントロールすることは大変重要な課題である。凝固組織の形成を予測し制御する方法としてセルオートマトン法やモンテカルロ法などいくつかの方法が開発されてきたが、現在ではフェーズフィールド法が最も高精度かつ効率的にデンドライトなどの組織形成を予測する手段として発展しており、様々なプロセスや合金系に適用されている。ただし、この計算には界面エネルギー等の固液界面物性値を入力する必要があるが、全ての固液界面物性値を求めることは実験的に極めて困難である。また、原子シミュレーションを用いたとしても、様々なアプローチを組み合わせる非常に煩雑な解析が必要である。さらには、本来フェーズフィールド法の計算に必要な過冷状態の固液界面物性値を算出する方法は開発されていない。このような理由により、全ての固液界面物性値が報告されている金属は非常に限定されており、フェーズフィールド法の適用範囲が限定される大きな原因となっている。

一方、凝固伝熱解析は製品レベルの鑄型や鑄物を対象としたマクロスケールの手法であり、鑄型内で溶湯がどのように凝固するかを予測することを目的としている。このとき、鑄

型－溶湯間の熱伝達係数に如何に適切な値を設定するかが大きな問題となっている。熱伝達係数は鋳型や溶湯から測定した冷却曲線と伝熱解析の結果が一致するように、試行錯誤によって決定する方法がとられることが多い。しかし試行錯誤には非常に大きな手間がかかる。その上、試行錯誤の方法で決定された熱伝達係数は一般に大きなノイズを含んでいる。さらに、熱伝達係数は一般に時間変化する値である。したがって、熱伝達係数を決定するには、事前にその時間変化を表す近似式を仮定しなくてはならないが、その近似式が常に正しいとは限らないという懸念もある。熱伝達係数は鋳型や鋳物の表面状態、鋳型や溶湯の種類、冷却条件や鋳造条件など、様々な要因によって変化するため、個々の状況に応じて決定する必要がある。試行錯誤に依らずに熱伝達係数を決定する様々な方法も発展してきたが、それらは限定された条件にのみ適用可能であったり、熱伝達係数の時間変化に事前の仮定が必要であったり、問題点が多いのが現状である。

様々な分野において、計算に必要な未知のパラメータを決定する場合には、一般に逆解析の手法がよく用いられる。逆解析とは、観測が容易な変数に関してシミュレーション結果と実際に得られた値を比較し、観測が困難なパラメータを求める解析である。本研究では逆解析に用いられる方法として、データ同化に着目した。データ同化は、シミュレーションに観測データを取り入れることでシミュレーションを修正し、システムの状態やパラメータを推定する方法である。逆解析の方法には最小二乗法や最適化法、遺伝的アルゴリズム、粒子群最適化法といった方法が存在するが、これらの方法が目的関数を最小化する方法であるのに対して、データ同化は確率分布を計算する方法である。解が確率分布として与えられることで、解の信頼性や多様性の把握が可能となるメリットがある。データ同化の方法の中でもアンサンブルカルマンフィルタと粒子フィルタは強い非線形性のある問題への適用が可能な強力な方法である。しかし、マクロ・メゾスケールの凝固シミュレーションのパラメータ推定にデータ同化を応用した例はない。そこで、本論文ではデータ同化に基づいた金属の凝固シミュレーションにおけるパラメータ推定方法を構築することを目的とした。主に対象としたのはデンドライト成長のフェーズフィールド・シミュレーションにおける固液界面物性値と、鋳造の凝固伝熱シミュレーションにおける鋳型－溶湯間の熱伝達係数である。データ同化を用いることで、従来の方法では決定が難しい固液界面物性値や時間依存の熱伝達係数を簡便かつ高精度に推定できる方法が構築できることを期待した。

第 2 章では、本研究で用いたデータ同化の手法の粒子フィルタとアンサンブルカルマンフィルタのアルゴリズムを説明した。粒子フィルタとアンサンブルカルマンフィルタは、モンテカルロ法を用いた逐次型のデータ同化手法である。モンテカルロ法は、粒子と呼ばれる多数の実現値で確率密度分布を近似する方法である。アンサンブルカルマンフィルタと粒子フィルタは、それぞれ観測データを用いて確率密度分布を修正するフィルタリングの方法のみが異なっている。粒子フィルタでは観測データに対する実現値の尤度を計算し、尤度に比例する確率に従って粒子の復元抽出を行うことで、確率密度分布を修正する。一方、ア

アンサンブルカルマンフィルタではカルマンフィルタの手順に基づいてフィルタリングを行う。アンサンブルカルマンフィルタは粒子フィルタよりも次元数の大きな問題への応用に適している。一方で、粒子フィルタはアンサンブルカルマンフィルタよりも実装が容易であるという特長がある。

また、等温凝固におけるミクロスケールの凝固組織の時間変化を対象としたフェーズフィールド法と、鋳造を対象とした凝固伝熱解析のモデルを第 2 章で説明した。フェーズフィールド法には高過冷度の凝固に適用可能な Bragard らによって提案されたモデルを用いた[2]。また、凝固伝熱解析については、本研究では金型鋳造と連続鋳造を扱った。その際に用いたバルクの熱伝導方程式と鋳型－溶湯間の熱伝達式について説明した。

第 3 章では、固液界面物性値の推定に対する粒子フィルタの有効性を双子実験によって検証し、固液界面物性値を高精度に推定する方法を開発した。

本研究では、分子動力学法の組織変化のデータを観測データとしてフェーズフィールド法とのデータ同化に用いる、新しいパラメータ推定方法の構築に取り組んだ。これはメゾ・ミクロスケールの新しい相補的アプローチの開発にも相当する。ただし、実際の推定を行う前に、この方法の妥当性を含め、適切な推定条件や推定方法を検討する必要がある。そこで、双子実験によって固液界面物性値の推定に適切な条件や方法を検討し、粒子フィルタの有効性を検証した。双子実験はデータ同化の有効性を検証するためによく用いられる数値実験の方法であり、あらかじめ推定対象とするパラメータの真の値を仮定し、それを用いたシミュレーション結果の一部のデータを観測データとする方法である。この観測データを用いてデータ同化を行えば、その推定結果の精度を適切に検証することが可能であるから、データ同化の効率を調査するとともにアルゴリズムの最適化をはかることができる。本研究では、固液界面物性値に真の値を仮定し、それらを用いたフェーズフィールド法のシミュレーション結果を観測データとした。本研究の双子実験におけるデータ同化では、推定対象の固液界面物性値に様々な候補値を用意し、それらを用いたフェーズフィールド・シミュレーションを多数同時に行う。そして、逐次、観測データを使ってそれらの候補値をベイズ推定に基づいて修正していく。

本研究では純 Al の固液界面物性値の推定を試みた。初期条件として、695K まで過冷した液相の中心に固相の核を配置した。このとき、(110)面上の二次元的な固相の成長を扱った。これは固液界面エネルギーの二つの異方性パラメータ ε_1 と ε_2 を独立に推定するためである。融点や比熱、潜熱といった熱力学量には、第 4 章で用いる分子動力学法の原子間ポテンシャルから計算された値を用いた[3]。これらの初期条件とパラメータを用い、フェーズフィールド・シミュレーションによって固相の成長を計算し、その組織変化の時系列データの一部を観測データとした。

まず、界面カイネティック係数の平均値の推定を試みた。その結果、粒子フィルタによって粒子が更新され、界面カイネティック係数の平均値が高精度に推定できることが確認さ

れた。次に、全ての固液界面物性値を同時に推定する場合について粒子フィルタの有効性を検証した。その結果、界面カイネティック係数の平均値と異方性パラメータを高精度に推定可能であることが示された。更に、フィルタリングを行う時間間隔や初期の粒子分布の大きさといった推定条件を変更しても、界面カイネティック係数の平均値と異方性パラメータは高精度に推定できることが明らかとなった。そこで、界面カイネティック係数の平均値と異方性パラメータの推定結果を得た後、固液界面エネルギーの平均値と異方性パラメータを推定することで、推定精度を向上させる新しい方法を考案した。実際に、界面カイネティック係数の平均値と異方性パラメータを既知としたとき、固液界面エネルギーの平均値と異方性パラメータの推定精度は向上することが示された。本研究ではこのように同時推定するパラメータを段階的に減らすことで推定精度を向上させる方法を多段階推定と呼び、様々な条件でその有効性を検証した。格子点間隔やシステムサイズが異なる場合にも、多段階推定によって全ての固液界面物性値を推定可能であることが示された。

多段階推定では単一の分子動力学法の結果から全ての固液界面物性値を推定可能であり、また、過冷状態における固液界面物性値を推定することができた。これは従来の方法にはない本アプローチの利点である。

第4章では、第3章で開発した粒子フィルタの多段階推定法によって、実際に分子動力学法で得られた観測データから過冷状態の固液界面物性値を推定した。観測データとしては、東京大学の澁田靖准教授のグループから提供を受けた分子動力学法の計算結果を用いた。分子動力学法では、純 Al の液相の中心に固相の核を配置し、695 K に保持することで固相を等温成長させた。このとき(110)面上の擬二次元的な成長を解析した。そして得られた結果をフェーズフィールド法へ取り入れられる形に変換した。変換の手順を説明する。まず、分子動力学法の結果を 128^2 の格子点に分割し、ある格子点が液相であれば秩序変数を -1、固相であれば 1 とした。次に、駆動力と曲率の効果を除去したフェーズフィールド方程式を解くことで、階段関数となっている秩序変数のプロファイルを拡散させ、固相と液相の間に連続界面を生成した。そして得られた結果を観測データとして推定に用いた。また、データ同化では、各粒子の初期状態を凝固開始から 200 ps 後の観測データと同じものとした。これは、固相が安定して成長し、異方性が明確に表れるのが凝固開始から 200 ps 程度経過した後であるためである。

分子動力学法で得られた観測データを用いて、多段階推定によって固液界面物性値の推定を行った。まず一段階目として、全ての固液界面物性値を粒子フィルタによって同時に推定した。その結果、界面カイネティック係数の平均値の推定結果として $4.5 \times 10^{-3} \text{ s m}^{-1}$ が得られた。次に、多段階推定の二段階目として、界面カイネティック係数の平均値を既知として推定を行った結果、界面カイネティック係数の異方性パラメータは 0.69、固液界面エネルギーの平均値は 0.18 J m^{-2} という推定結果が得られた。更に、多段階推定の三段階目として、固液界面エネルギーの異方性パラメータ ε_1 と ε_2 を同時に推定した結果、 ε_1 は 0.007 と求まっ

た。多段階推定の四段階目として ε_2 を推定すると、-0.0027 という結果が得られた。

次に、これらの推定結果の妥当性を検証した。純 Al の固相が液相の中心から等温凝固する過程を対象に、上述の通り推定した結果を用いてフェーズフィールド法によって解析し、分子動力学法の結果と比較した。フェーズフィールド法の初期状態を凝固開始から 200 ps 後の観測データとしたとき、フェーズフィールド法の結果は分子動力学法の結果と良い一致を示した。つまり粒子フィルタの多段階推定法によって全ての固液界面物性値を推定することができた。なお、初期状態を凝固開始から 0 ps の観測データに変更したとき、フェーズフィールド法と分子動力学法の結果の差が大きくなったが、この原因については更なる調査が必要である。

以上のことから、粒子フィルタによる多段階推定で全ての固液界面物性値を推定可能であることが示された。本アプローチでは、単一の分子動力学法の結果のみから全ての固液界面物性値の推定が可能である。さらに、過冷状態の固液界面物性値を推定できるという特長は、他の固液界面物性値の決定方法にはない利点である。

第 5 章では、粒子フィルタとアンサンブルカルマンフィルタに基づく凝固伝熱解析のパラメータ推定を行った。まず、金型鑄造について、鑄型－溶湯間の熱伝達係数と溶湯の熱伝導率の推定に対するデータ同化の有効性を双子実験によって検証した。このとき、溶湯は Al-4.0 wt.% Cu 合金、鑄型は鑄鉄として、鑄型と溶湯を含む一次元領域を解析対象とした。データ同化の方法にはアンサンブルカルマンフィルタを用いた。観測データは鑄型や溶湯から測定された冷却曲線とした。まず、熱伝達係数のみを推定する場合について、温度の測定点の位置やノイズの大きさといったハイパーパラメータが推定精度に及ぼす影響について調査を行った。その結果、鑄型と溶湯内のそれぞれ 1 点ずつ、合計 2 点から冷却曲線が測定された場合、冷却曲線のみから熱伝達係数を推定可能であることが示された。このとき、測定点が鑄型－溶湯界面に近いほど推定精度が向上した。また、熱伝達係数の時間変化を事前に仮定する必要はなく、自動的に推定することができた。次に、熱伝導率のみを推定する場合について適切な推定条件を調査した。その結果、鑄型内の 1 点と溶湯内の 2 点から冷却曲線が得られたとき、アンサンブルカルマンフィルタによって熱伝導率を推定可能であることが示された。また、このとき溶湯内の測定点のうち 1 点は鑄型－溶湯界面近傍に設置される必要があった。最後に、熱伝達係数と熱伝導率の同時推定を試みた。その結果、鑄型と溶湯内のそれぞれ 2 点ずつから冷却曲線が得られたとき、熱伝導率と時間変化する熱伝達係数を同時に推定可能であることが示された。また、このとき鑄型と溶湯内のそれぞれの測定点のうち、1 点は鑄型－溶湯界面近傍に設置される必要があった。したがって、凝固伝熱解析のパラメータ推定に対するデータ同化の有効性が示された。特に、熱伝達係数の時間変化に事前に近似式を仮定することなく自動的に推定可能であった。

次に、炭素鋼の連続鑄造を対象に、実測データを観測データとして、粒子フィルタによって鑄型－溶湯間の熱伝達係数を推定した。観測データとして、文献[4]から抽出した鑄型内

の温度変化を用いた。その結果、鋳型内の2点で得られた冷却曲線のみから時間変化する熱伝達係数を自動的に推定することができた。また、推定された熱伝達係数を用いた伝熱解析によって、実際に測定された温度変化を再現することができた。したがって、実際に測定された温度のみから鋳型－溶湯間の熱伝達係数を推定可能であることが示された。

以上のことから、データ同化に基づく凝固伝熱解析のパラメータ推定では、鋳型や溶湯から得られた温度のみからパラメータを高精度に推定可能であることが示された。特別な装置などを用意する必要がなく、温度が測定可能であれば推定が可能であるため、汎用性の高い推定方法であると言える。また、逐次型のデータ同化の方法を用いているため、パラメータのオンライン推定が可能であることも期待できる。更に、熱伝達係数の時間変化を事前に仮定することなく、温度のみから自動的に推定できる新しい方法であると言える。

第6章では本論文を総括した。

参考文献

- [1] 樋口知之：データ同化入門—次世代のシミュレーション技術—，朝倉書店(2011)
- [2] J. Bragard, A. Karma and Y.H. Lee, *Interface Science*, 10 (2002) 121.
- [3] R.R. Zope and Y. Mishin, *Physical Review B*, 68 (2003) 024102.
- [4] M. Hanao, M. Kawamoto, A. Yamanaka, *ISIJ International*, 49 (2009) 365.